

**ГОСУДАРСТВЕННАЯ КОРПОРАЦИЯ ПО АТОМНОЙ ЭНЕРГИИ «РОСАТОМ»  
ФГУП «НПО «РАДИЕВЫЙ ИНСТИТУТ им. В. Г. ХЛОПИНА»»**

**ТРУДЫ  
РАДИЕВОГО ИНСТИТУТА  
им. В. Г. ХЛОПИНА**

**ТОМ XV**



**Санкт-Петербург  
2011**

УДК 539.1

В XV том вошли результаты работ сотрудников Радиевого института им. В. Г. Хлопина по теоретической и прикладной ядерной физике, выполненных в 2009–2010 гг. Они охватывают почти все направления исследований, характерные для отделения ядерной физики, и отбирались так, чтобы можно было представить тематику отделения и арсенал средств, которым оно располагает. В теоретической части рассмотрены работы по исследованию сечений деления и ядерных выходов под действием протонов и нейтронов разных энергий, схемы распада широко применяемых нуклидов. В прикладной части показано развитие ядерно-физических экспериментов для ядерной медицины, неразрушающего анализа и контроля радиоактивных благородных газов в атмосфере, для космических исследований и для контроля за содержанием бора в защитных чехлах.

*«Труды Радиевого института им. В. Г. Хлопина» включены в Реферативный журнал и базы данных ВИНИТИ и Chemical Abstracts. Сведения о Трудах ежегодно публикуются в международной справочной системе по периодическим и продолжающимся изданиям “Ulrich’s Periodical Directory”.*

## ГЛАВНЫЙ РЕДАКТОР

В. Н. Романовский

## РЕДКОЛЛЕГИЯ

В. Г. Богданов (ответственный секретарь), Л. Г. Царицына (зам. гл. редактора),  
Ю. Л. Каминский (зам. гл. редактора), А. А. Римский-Корсаков, В. Г. Савоненков,  
Д. Н. Суглобов, В. П. Эйсмонт, Б. К. Куделин, Г. В. Сидоренко

ISSN 1996–7748

© ФГУП «НПО “Радиевый институт им. В. Г. Хлопина”», 2011

## Предисловие

А. А. Римский-Корсаков

В нашем сборнике мы представляем работы отделения ядерной физики Радиевого института, выполненные в 2009–2010 годах. Они охватывают почти все направления исследований, характерные для этого отделения, и отбирались так, чтобы можно было представить тематику отделения и арсенал средств, которым оно располагает.

Вначале мы поместили четыре работы, относящиеся к традиционному «чисто ядерно-физическому» направлению – исследованию сечений и выходов ядерных реакций под действием нейтронов и протонов различных энергий, выполненные в лабораториях И. В. Рыжова, В. П. Чечева и Л. М. Солина. Эти работы имеют (помимо чисто научного вклада в библиотеки ядерных данных) и актуальное прикладное значение для ядерной энергетики, ядерной медицины и дозиметрии космических аппаратов.

Следующие пять работ, выполненные в лабораториях Л. М. Солина, И. В. Рыжова, А. В. Кузнецова, А. С. Серебрякова, И. Н. Изосимова и Ю. В. Дубасова, носят более прикладной характер и показывают развитие методик ядерно-физического эксперимента и их приложения в области ядерной медицины, космических исследований, неразрушающего анализа и контроля РБГ в атмосфере. Особенно интересным нам представляется подробный «исторический» обзор Л. М. Солина, описывающий многоступенчатое совершенствование циклотрона МГЦ-20, позволившее многократно повысить его рабочие характеристики и возможности производства на нём радиофармпрепаратов. Интересны результаты работы С. В. Хлебникова по контролю содержания бора в защитных чехлах для топливных сборок ВВЭР-1000.

Сборник завершает работа, выполненная в содружестве с радиохимиками; в ней приведены расчёты топливного цикла перспективных реакторов на быстрых нейтронах.

Широкий спектр работ, выполняемых отделением ядерной физики, показывает, на наш взгляд, востребованность ядерно-физических методов и их результатов в самых разных отраслях науки и технологии и обеспечивает решение ряда актуальных конкретных задач как в атомной отрасли, так и в смежных отраслях.

## ФИЗИКА ЯДРА И ЯДЕРНЫЕ ДАННЫЕ

### Теоретическое моделирование и программный комплекс MCFx для описания деления ядер в реакциях с нуклонами средних и промежуточных энергий

Г. С. Бойков<sup>1</sup>, В. Т. Ипполитов<sup>1</sup>, С. Г. Явшиц<sup>1</sup>, О. Т. Грудзевич<sup>2</sup>, Ю. М. Мартиросян<sup>2</sup>

<sup>1</sup> – ФГУП «НПО «Радиевый институт им. В. Г. Хлопина»», С.-Петербург

<sup>2</sup> – Обнинский институт атомной энергетики, Обнинск

Описаны основные физические модели, положенные в основу программного комплекса MCFx, разработанного для создания полных файлов ядерных данных в формате ENDF-6 по характеристикам реакций с нуклонами на тяжелых ядрах в области энергий 20–1000 МэВ. Приведены примеры сравнения результатов расчётов с широким кругом экспериментальных данных.

#### Введение

Изучение ядерных реакций деления с нуклонами на тяжёлых ядрах связано с решением двух фундаментальных и до конца не исследованных задач – изучением механизма реакций с нейтронами и протонами в широкой области энергий и описанием свойств процесса деления ядер, механизм которого в свою очередь определяется статическими и динамическими свойствами ядерного вещества в процессе глубокой перестройки от составного ядра до разделения на два или более осколков.

Новый интерес к явлению деления ядер возник в последнее время в связи с развитием новых ядерных технологий, основанных на использовании потоков вторичных нейтронов с энергиями до 200–300 МэВ, генерируемых в реакциях расщепления в массивных мишенях под действием пучков высокоэнергетичных протонов. Такие данные необходимы и для решения ряда фундаментальных проблем ядерной физики при переходе к высоким энергиям налетающих частиц, стимулируемым вводом в действие новых высокоэнергетичных нейтронных источников и обновлением существующих, а также для астрофизических исследований, поскольку данные о массах ядер и барьерах деления для нейтронно-избыточных ядер, удаленных от полосы стабильности, являются одними из ключевых величин при описании процесса нуклеосинтеза.

Интересующие нас области энергий налетающих частиц можно условно разделить на три интервала – область низких энергий до 20 МэВ, средних или переходных энергий от 20 до 200 МэВ и область промежуточных энергий выше порога мезообразования, 200–1000 МэВ. Верхний предел определен здесь областью практических применений пучка заряженных частиц, ограничивающихся, как правило, ускорителями протонов с энергией до нескольких ГэВ.

При энергиях падающих частиц до 20 МэВ имеется большое количество экспериментальных данных, а также вполне надёжные пакеты программ, позволяющие вычислять сечения деления и других ядерных реакций по статистической модели, основанной на теории Хаузера–Фешбаха и модели предравновесной эмиссии с полным сохранением углового момента (версии кодов STAPRE, GNASH и другие).

Для энергий выше порога мезообразования, как правило, используются подходы, основанные на современных версиях модели внутриядерного каскада (такие, как каскадно-экситонная модель СЕМ, Льежская модель внутриядерного каскада INCL и другие).

Исторически такие модели развивались в двух направлениях – собственно модель внутриядерного каскада (МВК), описывающая испускание быстрых частиц в результате каскада двухнуклонных соударений в объёме ядра, и статистическая модель испарения частиц и деления. Развитие МВК шло по пути включения временной зависимости в каскады, детального учёта распределения плотности нуклонов в ядре, сшивки МВК с экситонными предравновесными моделями и т.д. В то же время в силу ограничений, накладываемых мощностью вычислительной базы, статистическая часть, занимающая основное время расчёта, основывалась на крайне упрощённых физических представлениях с целью аналитического описания процесса испарения/деления и экономии расчётного времени. За такую экономию приходилось платить использованием крайне упрощённой модели плотности уровней, приближением резкого края для сечений обратных реакций, отказом от закона сохранения момента и другими упрощениями, включая упрощённые выражения для делительных ширин. Результатом такого рода упрощений стала необходимость физически необоснованного варьирования достаточно большого числа модельных параметров (или включения большого числа опций, позволяющих выбирать те или иные параметры из различных несогласованных между собой систематик, что также является скрытой подгонкой). Кроме того, использование двух подходов в разных энергетических диапазонах, то есть достаточно строгого метода Хаузера–Фешбаха, дополненного предравновесной экситонной моделью, и МВК с упрощённой статистической частью, приводит к нефизическому разрыву в точке сшивки.

Данные о характеристиках реакций с нуклонами широко используются на практике. Так, ядерные данные по сечениям и свойствам вторичных частиц в реакциях с нейтронами с энергией до 14 МэВ составляют основу физической части ядерной энергетики. Данные при более высоких энергиях нейтронов и данные для реакций с протонами находят широкое применение при решении таких задач, как проблемы медицинской физики, особенно протонной и нейтронной терапии, разработке защиты ускорителей частиц, защиты летательных аппаратов от космических излучений, высокоэнергетической дозиметрии, разработке массивных нейтроно-генерирующих мишеней на пучке протонов, в разработках гибридных реакторов, управляемых ускорителями заряженных частиц и т.д. Представление данных в формате ENDF-6 позволяет использовать их непосредственно в расчётах переноса частиц, являющихся основой при решении прикладных задач и проектировании установок.

Основные национальные библиотеки данных (ENDF-B/VI, VII, JEFF, JENDL, BROND, CENDL) содержат данные для нейтронных реакций в реакторной области энергий. Для протонных реакций и реакций с нейтронами более высоких энергий в настоящее время существуют две библиотеки данных – LA150, содержащая ядерные данные для 42 нуклидов от водорода до висмута для реакций с нуклонами с энергиями до 150 МэВ, и библиотека JEFF 3.1, включающая файлы данных в формате ENDF-6 для изотопов Ca, Fe, Ge, Pb, Bi для реакций с нейтронами и Ca, Sc, Ti, Fe, Ge, Pb, Bi для реакций с протонами с энергиями до 200 МэВ. Библиотеки данных используются в широко известном программном коде MCNPX вместе с библиотеками, разработанными ранее для низких энергий.

Отсутствие данных для больших энергий и ряда ядер-мишеней привело авторов MCNPX (и других транспортных кодов) к необходимости включения модели внутриядерного каскада непосредственно в качестве внутреннего генератора ядерных данных. Такой подход в силу отмеченных выше трудностей сшивки и неопределённостей модели существенно проигрывает по сравнению с классическими транс-

портными кодами (например, предыдущих версий MCNP), основанных на использовании внешних файлов данных, и может быть использован лишь для оценок. В то же время современное состояние теории реакций с нуклонами, включая деление для тяжёлых ядер, и существующие мощности вычислительных машин вполне позволяют создавать внешние файлы и для промежуточных энергий.

К сожалению, в настоящее время не существует достаточно строгих квантовых подходов для практического описания реакций с нуклонами, такие подходы лишь указывают путь построения теории. Для практических расчётов используются феноменологические и полупеноменологические модели. При этом механизм реакции с нуклоном в общем случае может быть представлен как последовательность процессов, протекающих в ядре, взаимодействующим с нуклоном, и включающая в себя (без учёта канала фрагментации):

1. входной канал – определение сечения реакции (поглощения), определяющего нормировку всех вторичных процессов;
2. каскад нуклон-нуклонных соударений в объёме ядра, сопровождающийся вылетом быстрых нуклонов и формированием остаточных ядер в различных частично-дырочных конфигурациях;
3. термализацию системы путём усложнения конфигураций в конкуренции с вылетом предравновесных частиц;
4. равновесную эмиссию (испарение) нуклонов и сложных частиц и деление ядер.

Для расчёта сечения реакции, а также полного сечения и сечений упругих процессов традиционно используется оптическая модель или в более сложном варианте метод связанных каналов. Каскадная стадия процесса приводит к возникновению смеси ядер, находящихся в различных частично-дырочных состояниях, далёких от равновесного состояния. Процесс установления равновесия может быть описан нестационарным уравнением баланса в рамках классической экситонной модели. Для последней стадии реакции разработаны хорошо зарекомендовавшие себя статистические модели, основанные на представлении Хаузера–Фешбаха, и дополненные классической моделью деления.

Такой алгоритм позволяет детально описать каждую стадию реакции на основе надёжных теоретических подходов. Однако необходимость использования феноменологии ставит в каждом случае вопрос о достоверности выбранных параметров моделей. Отметим, что с ростом энергии налетающих частиц формирующиеся остаточные ядра оказываются все более удалёнными от полосы стабильности в область нейтронно-дефицитных ядер, что существенно затрудняет физически обоснованный выбор параметров моделей и приводит к необходимости расчёта параметров на основе модельных представлений и использования всей совокупности экспериментальных данных не только по характеристикам реакции с нуклонами, но и данных о структуре ядра.

Ключевыми параметрами в данном подходе являются параметры оптического потенциала, плотности уровней и барьеры деления. Если плотность уровней тяжёлых деформированных ядер хорошо изучена к настоящему времени, то существующие систематики барьеров деления для экспериментально не изученных ядер не обеспечивают достаточную точность величин и не учитывают зависимость барьеров от энергии возбуждения, а оптико-модельные потенциалы для актиноидов в широкой области энергий практически отсутствуют.

Барьеры деления определяются свойствами поверхности потенциальной энергии ядра вдоль оси деления.

Свойствами потенциальной поверхности во многом определяется и массовое распределение осколков деления и его зависимость от энергии возбуждения.

Для ядер вне полосы бета-стабильности важным является и вопрос о корректном расчёте масс ядер. Совместное использование экспериментальных и теоретических данных приводит, как правило, к скачкам в энерговыделении в точке сшивки. Метод разностных соотношений позволяет избежать этих проблем, построив рекурсивный алгоритм расчёта неизвестных масс на массиве экспериментально известных данных.

### **Описание механизма реакций с нуклонами средних и промежуточных энергий в коде MCFx**

Код MCFx (MultiConfiguration Fission x-sections) первоначально разрабатывался в наших работах [1–6] для описания сечений деления тяжёлых ядер нуклонами в области энергий 20–200 МэВ, а затем был модернизирован для расчёта большого набора характеристик реакций, включая упругие и неупругие сечения, дважды дифференциальные спектры вторичных частиц и выходы осколков деления в области энергий до 1 ГэВ [7–12]. При разработке кода ставилась задача создания надёжного программного комплекса, основанного на устоявшихся модельных представлениях о механизме реакций и позволяющего в едином подходе детально описать все основные стадии реакции, то есть входной канал, быстрые каскадные и предравновесные процессы и распад возбуждённых ядер на заключительной стадии реакции.

Блок-схема кода и вычислительный поток показаны на рис. 1. На первом шаге вычислений рассчитывается сечение реакции, являющееся нормировочным фактором для всех вычислений абсолютных значений сечений; затем, после эмиссии быстрых частиц на каскадной стадии реакции формируется распределение остаточных ядер  $Y(A_i, Z_i, E_i^*, ph)$  с различными массами и зарядами ( $A_i, Z_i$ ), энергиями возбуждения ( $E_i^*$ ) и числом экситонов ( $ph$ ), распадающихся путём испускания предравновесных частиц в равновесное состояние ( $A_j, Z_j, E_j^*$ ), характеризующееся распределением  $Y(A_j, Z_j, E_j^*)$  и испытывающих затем деление и/или испарение частиц. На каждом шаге расчёта собирается информация о сечениях и распределениях вторичных частиц, которая затем суммируется и переводится в формат ENDF-6.

Для сферических ядер в коде MCFx существует возможность проводить вычисления коэффициентов переноса с хорошо известным кодом SCAT2 [13]. Однако тяжёлые делящиеся ядра сильно деформированы уже в основном состоянии и характеризуются сильно коллективизированными низколежащими возбуждёнными состояниями. Связь с этими состояниями изменяет волновую функцию взаимодействующей системы. Обобщённая оптическая модель, разработанная для этих систем, сформулирована в методе связанных каналов (см., например, [14]). На основе этого метода Рэйналем был разработан код ECIS [15–17], который является сейчас наиболее привлекательной реализацией метода связанных каналов для расчётов сечений в широком диапазоне энергий падающих частиц.

В нашей работе для расчётов входного канала был выбран код ECIS94 [15]. Код позволяет проводить вычисления полного сечения реакции, которое включает в себя как прямые, так и компаунд-реакции.

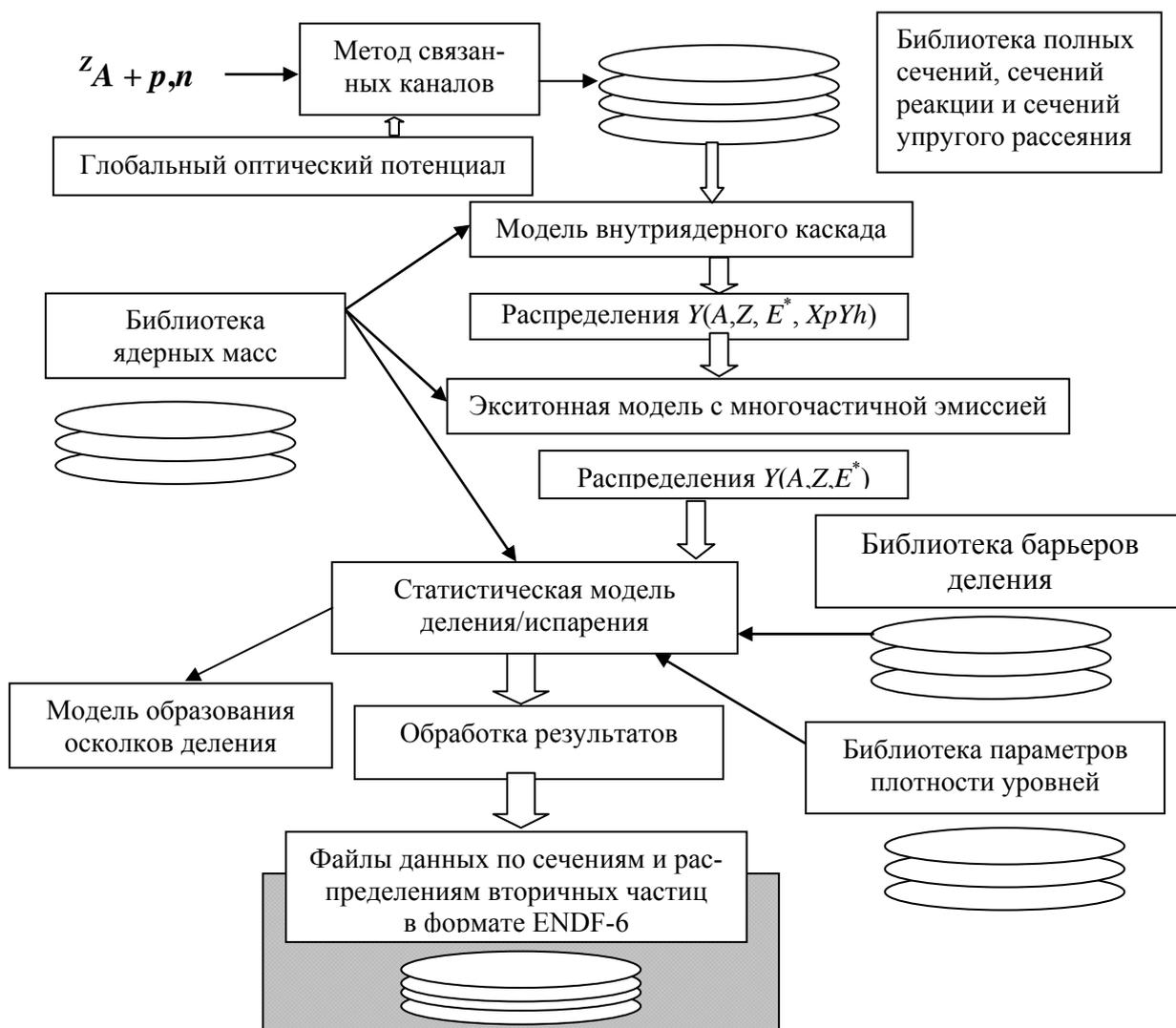


Рис. 1. Блок-схема кода MCFx и вычислительного потока.

Метод связанных каналов требует задания так называемой схемы связей низлежащих коллективных уровней. В нашем случае мы использовали вращательную модель и, следовательно, рассматривали только уровни основной вращательной полосы. Для сокращения времени расчётов мы использовали схему связей, ограниченную тремя уровнями (основной и два первых вращательных уровня), так как контрольные расчёты показали, что дальнейшее увеличение числа включаемых уровней изменяет результаты расчётов менее чем на 1 %. Параметры уровней брались из библиотеки RIPL [18].

Входные данные ECIS включают сведения о деформации ядра мишени. Обычно учитывают квадрупольную деформацию с небольшой примесью гексадекапольной. Как показали расчёты, в нашем случае гексадекапольная деформация практически не играет никакой роли (даёт изменения в сечениях менее 0,1 %), а возможные вариации от ядра к ядру квадрупольной части  $\beta_2$  (коэффициент при второй гармонике) от 0,2 до 0,3 изменяют результаты расчёта не более чем на 5 %. Поэтому мы использовали одинаковую степень деформации для трансактиноидных ядер со значением  $\beta_2 = 0,26$ .

На начальном этапе работы из подгонки к существующим экспериментальным данным был разработан глобальный оптический потенциал для ядер от свинца до плутония с энергиями налетающих нуклонов от 10 до 200 МэВ (потенциал KRI 2000) [3], который затем был расширен до 1 ГэВ (потенциал KRI 2004) [7, 10].

В стандартных обозначениях оптической модели потенциал имеет вид:

$$U(r, E) = -V_r(E) f_v(r) - i \left[ W_v(E) f_{wv}(r) - 4 a_d W_d(E) \frac{d f_{wd}(r)}{dr} \right] - \left( \frac{\hbar}{m_\pi c} \right)^2 V_{so}(E) \frac{1}{r} \frac{d f_{so}(r)}{dr} \vec{l} \cdot \vec{s} + \Delta V_c, \quad (1)$$

где  $f_i(r)$  – радиальные форм-факторы Вудс-Саксона,  $f_i(r) = \{1 + \exp[(r - R_i)/a_i]\}^{-1}$ ,  $R_i = r_i A^{1/3}$ ,  $\Delta V_c$  – кулоновская энергия протона,  $\Delta V_c = 0,4 Z/A^{1/3}$ .

$$V_r(E) = (48,65 \mp 15,22\eta)(1 - 0,0052 E), \quad 10 < E \leq 80 \text{ МэВ},$$

$$= (62,78 \mp 16,16\eta) \exp(-E/100), \quad 80 < E \leq 1000 \text{ МэВ},$$

$r_r = 1,26, a_r = 0,72$ ;

$$W_v(E) = 1 + \frac{10,0}{1 + \exp[(51,0 - E)/10]} \mp 4\eta, \quad 10 < E \leq 80 \text{ МэВ},$$

$$= 10,658 + 6,5 \ln(E/80) \mp 4\eta, \quad 80 < E \leq 1000 \text{ МэВ},$$

$r_{wv} = 1,20, a_{wv} = 0,666$ ;

$$W_d(E) = (8,88 \pm 6,06\eta) \left\{ 1 - \frac{1}{1 + \exp[(40,0 - E)/15]} \right\}, \quad E \geq 10 \text{ МэВ},$$

$r_{wd} = 1,26; a_{wd} = 0,72; V_{so}(E) = 10,72 \exp(-E/160); r_{so} = 1,20, a_{so} = 0,5$ .

Примеры сравнения наших расчётов с экспериментальными данными по полным сечениям и сечениям реакции для протонов и нейтронов, а также угловых распределений упруго рассеянных частиц в области свинца–висмута и трансактиноидов приведены на рис. 2–5.

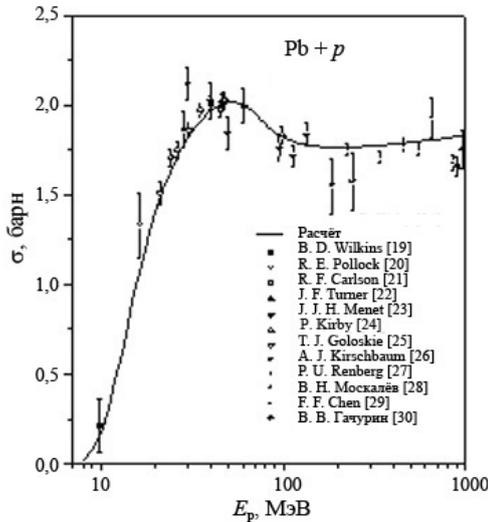


Рис. 2. Сравнение экспериментальных и вычисленных полных нейтронных сечений и сечений реакции для nat, 208Pb.

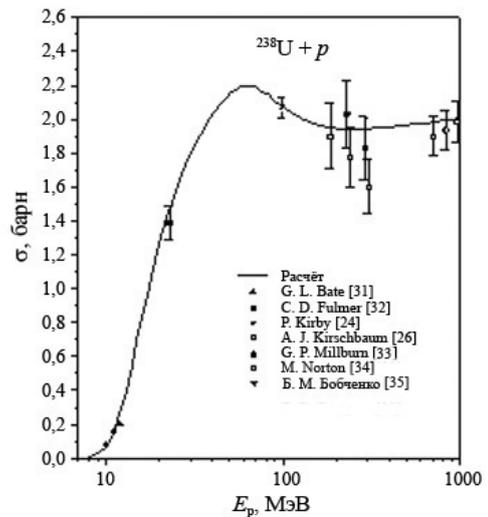


Рис. 3. Экспериментальные и вычисленные протонные сечения реакции для 238U+p.

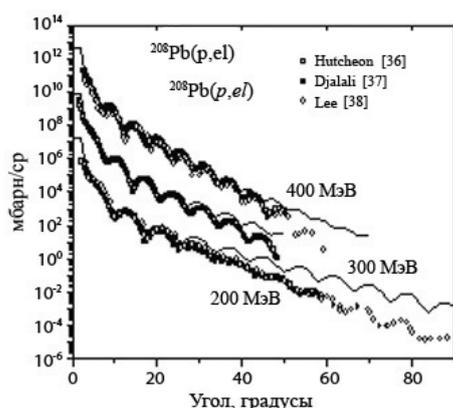


Рис. 4. Угловые распределения упруго рассеянных протонов на ядре  $^{208}\text{Pb}$  для энергий пучка от 200 до 400 МэВ. Символами показаны экспериментальные данные, линии – результаты расчётов. Каждая верхняя кривая умножена на фактор 100.

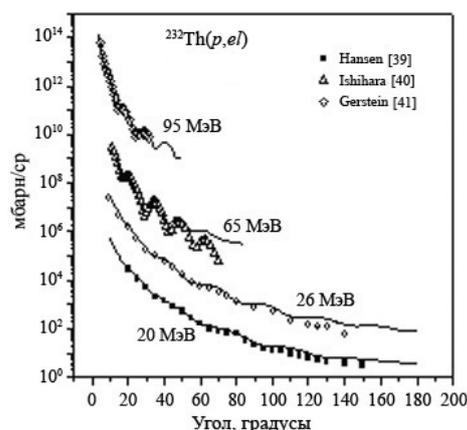


Рис. 5. То же, что на рис.4, но для реакции  $^{232}\text{Th}+p$ .

Для описания быстрой стадии реакции мы используем метод внутриядерного каскада, основанный на версии модели, активно разрабатывавшейся в ОИЯИ в 1970–1980 гг. в работах Барашенкова, Тонеева, Гудимы и др (см., например, [42]). После завершения серии внутриядерных каскадов остаточные ядра остаются в сложных частично-дырочных состояниях с энергией, зачастую достаточной для испускания двух и более предравновесных частиц. На этой предравновесной стадии реакции в нашем подходе используется оригинальная экситонная модель многочастичной предравновесной эмиссии, основанная на решении методом Монте-Карло кинетического уравнения для вероятностей состояния ядра с  $n$  экситонами,  $P(n, t)$ , и энергией возбуждения  $E$ .

При этом предполагается, что энергия возбуждения распределена равновероятно между частицами и дырками. Состояние с  $n$  экситонами в результате частично-дырочного столкновения может претерпеть следующие изменения:

- 1)  $n \rightarrow n + 2$  – рождение новой пары частица–дырка;
- 2)  $n \rightarrow n - 2$  – одна из частиц переходит в связанное состояние;
- 3)  $n \rightarrow n$  – возникает новое состояние с тем же экситонным числом.

Вероятности таких переходов  $\lambda_+$ ,  $\lambda_-$ ,  $\lambda_0$  определяются величиной среднего матричного элемента  $M$  внутриядерного перехода  $n \rightarrow n'$  с учётом сохранения энергии и плотностью состояний  $\rho$

$$\lambda_{n \rightarrow n'} = \frac{2\rho}{\hbar} |M|^2 c_{n'}(E), \quad (2)$$

где  $\rho$  – число состояний.

Тогда кинетическое мастер-уравнение имеет вид:

$$\begin{aligned} \frac{dP(n,t)}{dt} = & P(n-2,t) \cdot \lambda_+(n-2,E) + P(n+2,t) \cdot \lambda_-(n+2,E) \\ & - P(n,t) \cdot \left[ \lambda_+(n,E) + \lambda_-(n,E) + \sum_v L_v(n,E) \right], \end{aligned} \quad (3)$$

где последний член в квадратных скобках описывает испускание частицы, имеющей энергию возбуждения, превышающую её энергию связи,  $L_v$  – вероятность испускания частицы  $n$

$$L_n = \int_0^{E-B_n} W_n(n, E, \epsilon) d\epsilon, \quad W_n(n, \epsilon) = \frac{2s+1}{p^2 h^3} m_v \epsilon y_n(\epsilon) d\epsilon \frac{c(p-1, h, U)}{c(p, h, U)}. \quad (4)$$

Здесь  $m_n, B_n$  – масса и энергия связи вылетевшей частицы,  $\epsilon$  – энергия частицы в выходном канале,  $U = E - \epsilon - B_n$  – энергия возбуждения остаточного ядра,  $s$  – спин вылетающей частицы,  $y_n$  – сечение обратной реакции.

Как известно, неравновесные процессы при взаимодействии частиц с ядром приводят к формированию асимметричных угловых распределений вторичных нуклонов как за счёт асимметрии вылета каскадных частиц, так и в процессе предравновесной эмиссии, где при учёте сохранения линейного момента на каждом шаге процесса релаксации система может частично сохранять «память» о направлении движения налетающей частицы.

В работе [43] была предложена крайне удачная феноменологическая аппроксимация угловых распределений вторичных частиц, основанная на экспериментальной информации и включающая две части – асимметричную (так называемую “multi-step direct”) и изотропную (“multi-step compound”). Выражение для дважды дифференциальных сечений вторичных частиц, предложенное в этой работе, имеет вид:

$$\frac{d^2 y}{dE d\Omega} = \frac{1}{4\pi} \left[ \frac{dy_{PE}}{dE} + \frac{dy_{compound}}{dE} \right] \frac{a}{\text{sha}} (\text{ch}(a \cos \Theta) + f_{MSD}(E) \text{sh}(a \cos \Theta)), \quad (5)$$

где  $\frac{dy_{PE}}{dE}$ ,  $\frac{dy_{compound}}{dE}$  – проинтегрированные по углам вылета спектры вторичных

предравновесных и равновесных частиц, соответственно,  $f_{MSD} = \frac{\frac{dy_{PE}}{dE}}{\frac{dy_{PE}}{dE} + \frac{dy_{compound}}{dE}}$  –

предравновесная доля сечения (параметр в работе [43]), параметр  $a$  является функцией энергии налетающей частицы.

Поскольку в нашем подходе величины вкладов различных процессов вычисляются отдельно, то для угловых распределений предравновесных частиц получаем

$$\frac{d^2 y_{PE}}{dE d\Omega} = \frac{1}{4\pi} \frac{dy_{PE}}{dE} \frac{a}{\text{sha}} \exp(a \cos \Theta), \quad (6)$$

где  $\frac{dy_{PE}}{dE}$  находится из решения уравнения (3).

После разрядки экситонных состояний и испускания предравновесных частиц система переходит в возбуждённое равновесное состояние, дальнейшая эволюция которого традиционно описывается статистической моделью испарения нуклонов и лёгких ядер и (или) деления ядра. В качестве основы блока статистической модели в данной работе была использована существенно модернизированная программа STAPRE [44]. Этот код был создан для вычисления сечений реакций, вызванных частицами, с учётом конкуренции нескольких частиц и  $\gamma$ -квантов в предположении последовательного испарения и с учётом конкуренции деления. Программа STAPRE широко используется во многих лабораториях для вычислений сечений различных реакций (включая деление), в которых имеются признаки статистического механизма, как с целью анализа имеющихся экспериментальных данных, так и для предсказания сечений.

Каждая ступень испарения описывается статистической моделью ядерных реакций с учётом законов сохранения полного углового момента и чётности в формализме Хаузера–Фешбаха–Молдауэра.

При заданной последовательности эмитированных частиц для всех ядер цепочки вычисляются следующие величины:

- 1) сечения образования ядер в основном и в изомерных состояниях;
- 2) энергетические спектры всех частиц и  $\gamma$ -квантов;
- 3) сечения деления и сечения реакций для заданной последовательности ядер.

### Параметры моделей

Во все перечисленные выше модели, используемые в нашем подходе для описания реакций с нуклонами, входят параметры, определяемые из сравнения с экспериментальными результатами и/или из независимых теоретических расчётов. Использование максимально возможного объёма экспериментальной информации о механизме реакции и согласованное описание данных в рамках единого подхода позволяют существенно сократить число варьируемых параметров моделей.

В *оптической модели* основной набор параметров – это параметры потенциала.

Основным параметром *модели внутриядерного каскада* является так называемая «энергия обрезания»  $E_{\text{обр}}$  – минимальная энергия быстрой частицы внутри ядра, при которой дальнейшее развитие внутриядерного каскада невозможно. Выбор этого параметра во многом зависит от принятой схемы расчётов и параметров остальных моделей и составляет величину 10–20 МэВ. Очевидно, что в этом случае вылетающие нуклоны не могут иметь энергию, меньшую  $E_{\text{обр}}$  и, как результат, вычисленный спектр будет скачкообразным. Спектр такой формы нельзя объяснить ни физическими соображениями, ни экспериментальными фактами. Для получения реалистичных спектров каскадных нуклонов в настоящей работе обрезание моделировалось путём введения параболического барьера и разыгрывалась его проницаемость нуклоном. Высота 10 МэВ и ширина 50 МэВ этого барьера зафиксированы в расчётах энергетических спектров вторичных нуклонов и в дальнейшем не менялись. Введение барьера приводит к естественному результату – подавлению низкоэнергетической части спектра, где основной вклад вносят не каскадные нуклоны, а нуклоны, испускаемые в процессе предравновесной и равновесной эмиссии.

Основным варьируемым параметром *модели предравновесной эмиссии* является величина матричного элемента взаимодействия (2). В параметризации Кальбаха [45], среднеквадратичное значение матричного элемента для ядра  $A$  с энергией возбуждения  $E$  предложено параметризовать как

$$\langle |M|^2 \rangle = KE^{-1} A^{-3}, \quad (7)$$

где коэффициент  $K$  определяется из эксперимента и равен  $190 \pm 60$  МэВ<sup>3</sup> [46]. В наших расчётах для всех случаев было принято значение параметра  $K = 150$  МэВ<sup>3</sup> при стандартном значении параметра плотности уровней  $g = 0,075A$  МэВ<sup>-1</sup>. Для определения параметра мы использовали расчёты спектров нуклонов в области сравнительно низких энергий пучка до 20–30 МэВ, где основной вклад в формирование жёсткой части спектра вносят предравновесные процессы, а вкладом каскадного механизма можно пренебречь.

В статистической модели испарения нуклонов и деления ядер определяющими параметрами являются параметры плотности уровней и барьеры деления ядер. Мы использовали фиксированный набор параметров обобщённой сверхтекучей модели плотности уровней, предложенный в работе [47]. В расчётах деления значения параметров плотности принимались неизменными как в основном состоянии, так и в седловой точке. Для барьеров деления использовались систематики Линна [48] для трансактиноидных ядер и Смиреникина [49] для лёгких делящихся ядер. В случае отсутствия данных о барьерах использовались результаты наших расчётов. В отдельных случаях для описания сечения деления барьеры деления варьировались в пределах  $\sim 1$  МэВ.

Важной составляющей всех расчётов являются значения масс ядер, определяющих энергетику реакции. В наших расчётах мы использовали таблицы масс, рассчитанные методом разностных соотношений, разработанным в настоящей работе (см. также работу [9]).

### Энергетические спектры вторичных частиц

Энергетические спектры вторичных частиц (без учёта упругого пика) представляют в нашем подходе сумму вкладов трёх источников:

$$\begin{aligned} \frac{d\sigma(A, Z, \varepsilon)}{dE} = \sigma_R \left[ \frac{d\sigma_{\text{INC}}(A, Z, \varepsilon)}{dE} + \right. \\ \left. \sum_{ij} Y_{\text{INC}} [A, Z, \varepsilon; A_i, Z_i, (p_j, h_j, E_j^*)_i] \left( \frac{d\sigma_{\text{PE}} [A_i, Z_i, (p_j, h_j, E_j^*)_i]}{dE} + \right. \right. \\ \left. \left. \sum_k Y_{\text{PE}} [A_i, Z_i, (p_j, h_j, E_j^*)_i; A_k, Z_k, E_k^*] \frac{d\sigma_{\text{EQ}}(A_k, Z_k, E_k^*)}{dE} \right) \right] \quad (8) \end{aligned}$$

Здесь  $A, Z, \varepsilon$  – массовое и зарядовое число мишени и энергия налетающего нуклона соответственно,  $\sigma_R$  – сечение реакции,  $\frac{d\sigma_{\text{INC,PE,EQ}}}{dE}$  – спектры каскадных, предравновесных и испарительных частиц, соответственно,  $Y_{\text{INC}} [A, Z, \varepsilon; A_i, Z_i, (p_j, h_j, E_j^*)_i]$  – вероятность образования неравновесного остаточного ядра в состоянии после испускания каскадных частиц с массовым и зарядовым числом  $(A_i, Z_i)$  с конфигурациями  $(p_j, h_j, E_j^*)_i$ , где  $p_j, h_j, E_j^*$  – число частиц, дырок и энергия возбуждения конфигурации соответственно,  $Y_{\text{PE}} (A_i, Z_i, (p_j, h_j, E_j^*)_i; A_k, Z_k, E_k^*)$  – вероятность образования остаточ-

ного ядра  $A_k, Z_k$  с энергией возбуждения  $E_k^*$  в состоянии равновесия после испускания предравновесных частиц из состояния  $A_i, Z_i, (p_j, h_j, E_j^*)_i$ . Вероятности  $Y_{\text{INC}}, Y_{\text{PE}}$  нормированы следующим образом:

$$\sum_{ij}^{i_{\text{max}}, j_{\text{max}}} Y_{\text{INC}}^{ij} = 1; \quad \sum_k^{k_{\text{max}}} Y_{\text{PE}}^{ij:k} = Y_{\text{INC}}^{ij} \quad k_{\text{max}} > i_{\text{max}} + j_{\text{max}} \quad (9)$$

Предельные числа ядер, принимаемых во внимание в расчётах, ограничиваются условием  $Y \geq \delta$ , где  $\delta$  – параметр отсечки, как правило, равный 1 %. Числа  $i_{\text{max}}, j_{\text{max}}, k_{\text{max}}$  быстро растут с энергией налетающего нуклона. Так, например, в реакции  $^{238}\text{U}+n$  при энергии 450 МэВ количество ядер в равновесном состоянии равно 26. С учётом распределения ядер по энергии возбуждения получим  $k_{\text{max}} = 196$ .

Разрядка возбуждённого ядра на статистической стадии реакции осуществляется путём испускания нейтронов, протонов,  $\alpha$ -частиц и т.д. Если принять, что число испущенных нейтронов равно  $x$ , а протонов –  $y$ , то количество вариантов цепочек только распада путём испускания нуклонов равно числу сочетаний из  $(x+y)$  по  $x$ , что для рассмотренного примера составляет около 60 вариантов, то есть в расчёт должны быть включены  $196 \cdot 60 = 11760$  цепочек. Это обстоятельство привело к необходимости ограничить расчёты только нуклонной эмиссией. Такое приближение допустимо при расчётах спектров эмиссии нуклонов, необходимых для создания транспортных файлов. Отметим, что ограничение распространяется только на формирование последовательности цепочек, поскольку при вычислении ширин эмиссии отдельного нуклона в знаменателе формулы Хаузера–Фешбаха учитываются все открытые каналы распада.

Для перебора всех возможных вариантов цепочек распада использовался метод Монте-Карло. Разыгрывался тип испущенной частицы (нейтрон или протон) для каждого номера последовательно испущенных частиц.

На рис. 6 показаны примеры описания энергетического спектра нейтронов согласно уравнению (8) из реакции  $^{90}\text{Zr}(p, xn)$  при разных энергиях пучка и выделены вклады разных стадий реакции. Как видно, расчёт хорошо воспроизводит абсолютные значения энергетических спектров для данной реакции.

В работе [50] в рамках нашего подхода были рассчитаны спектры вторичных нуклонов для 111 экспериментально изученных реакций  $(n, xn), (n, xp), (p, xn), (p, xp)$  для ядер-мишеней от Al до U в диапазоне энергий пучка от 10 до 200 МэВ и было показано, что результаты расчётов в целом хорошо воспроизводят экспериментальные данные. Ниже показаны некоторые примеры таких расчётов.

В области энергий выше 20 МэВ нами были выполнены расчёты практически важных реакций с нуклонами на ядрах, входящих в состав нейтронно-производящих мишеней – реакции  $^{208}\text{Pb}(n, f), ^{208}\text{Pb}(p, f), ^{209}\text{Bi}(n, f), ^{209}\text{Bi}(p, f)$  с энергиями нейтронов и протонов от 20 МэВ до 1 ГэВ, а также для изотопов урана – реакции  $^{235}\text{U}(n, f), ^{235}\text{U}(p, f), ^{238}\text{U}(n, f), ^{238}\text{U}(p, f)$  с энергиями нейтронов от 20 до 500 МэВ и протонов от 20 МэВ до 1 ГэВ.

Результаты расчётов сечений деления для указанных реакций приведены на рис. 10–13. В целом наблюдается неплохое согласие расчётных и экспериментальных сечений, хотя деление, индуцированное протонами, описывается лучше.

### Систематические расчёты энергий отделения, барьеров деления, оболочечных поправок и моментов инерции деформированных ядер

С ростом энергии возбуждения как делящиеся ядра, так и осколки деления становятся все более нейтрондефицитными, что требует расширения существующих систематик основных параметров, используемых в статистической модели, а именно систематик энергий отделения частиц и лёгких ядер, барьеров деления, а также оболочечных поправок и моментов инерции в основном состоянии и на барьерах, входящих в выражение для плотности уровней. С этой целью были модифицированы ранее разработанные модели и программы расчёта и выполнены систематические вычисления указанных величин.

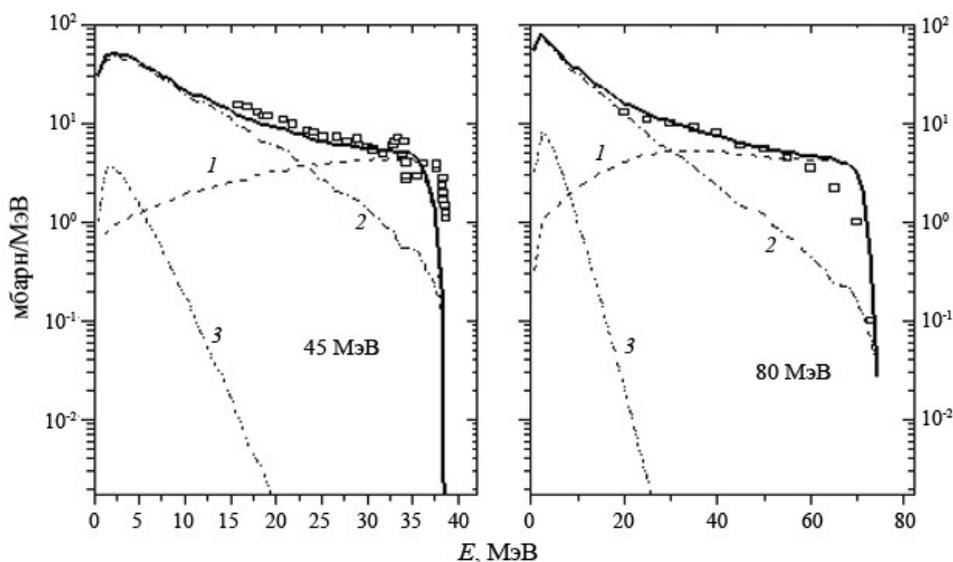


Рис. 6. Спектры нейтронов из реакции  $^{90}\text{Zr}(p, xn)$  при энергиях налетающих протонов 45 и 80 МэВ. Символами показаны экспериментальные данные [51], линии – вклады от каскадной стадии (линия 1), предравновесной стадии (линия 2) и испарительной стадии (линия 3). Суммарный спектр показан сплошной линией.

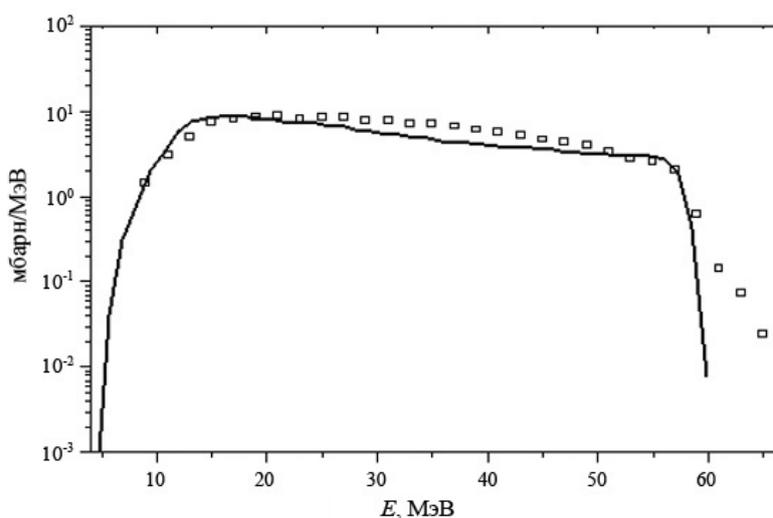


Рис. 7. Спектры протонов из реакции  $^{208}\text{Pb}(n, xp)$  при энергии налетающих нейтронов 63 МэВ. Символами показаны экспериментальные данные [52], линии – результаты расчётов.

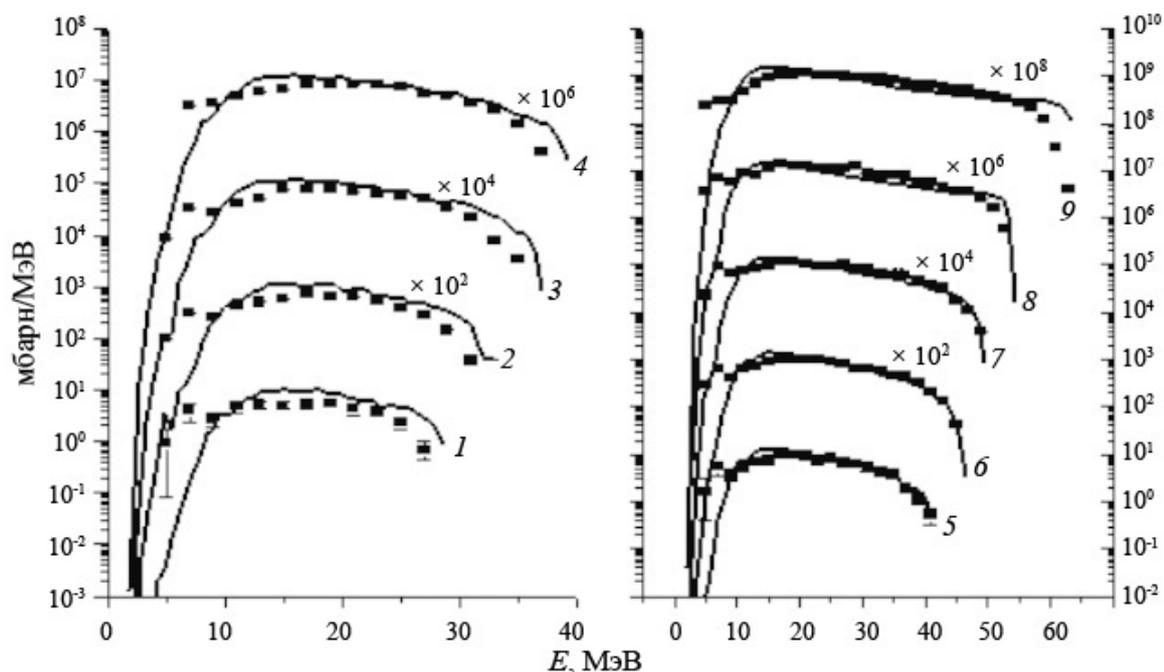


Рис. 8. Спектры протонов из реакции  $^{209}\text{Bi}(n, xp)$  при разных энергиях налетающих нейтронов. Слева – 28, 31, 35 и 38 МэВ (кривые 1–4 соответственно); справа – 41, 45, 49, 54, 63 МэВ (кривые 5–9 соответственно). Символами показаны экспериментальные данные [53], линии – результаты расчётов.

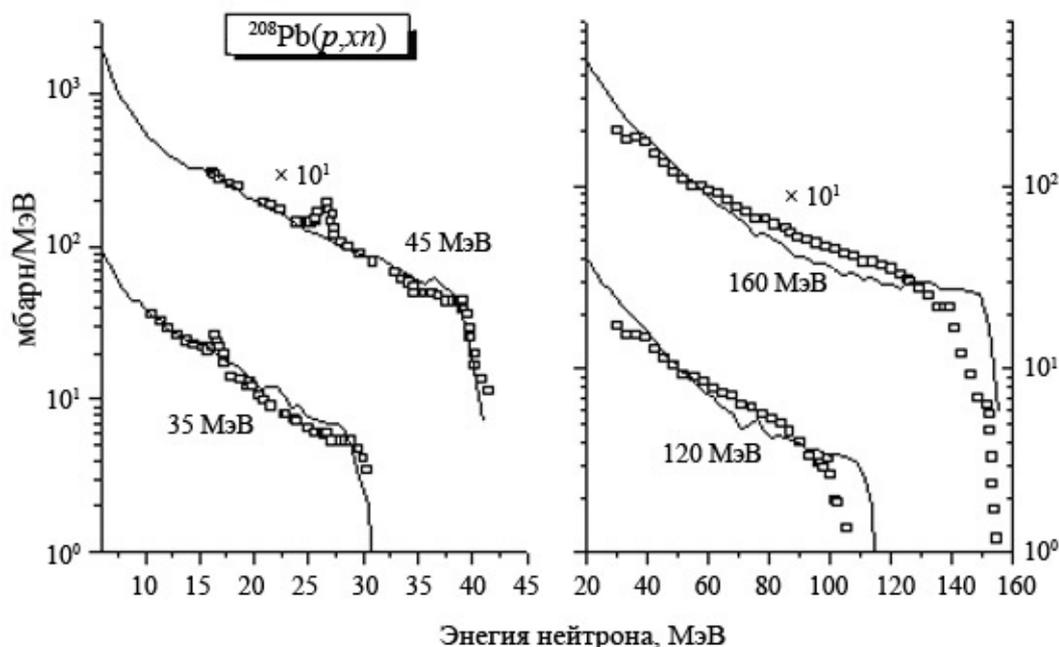


Рис. 9. Спектры нейтронов из реакции  $(p, xn)$  при энергии налетающих протонов 35, 45, 120 и 160 МэВ для ядра  $^{208}\text{Pb}$ . Символами показаны экспериментальные данные [51], линии – результаты расчётов.

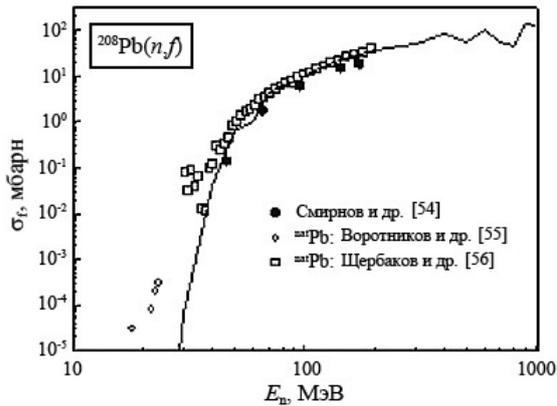


Рис.10. Сечение деления ядра  $^{208}\text{Pb}$  нейтронами. Линиями представлены результаты расчётов по программе MCFx.

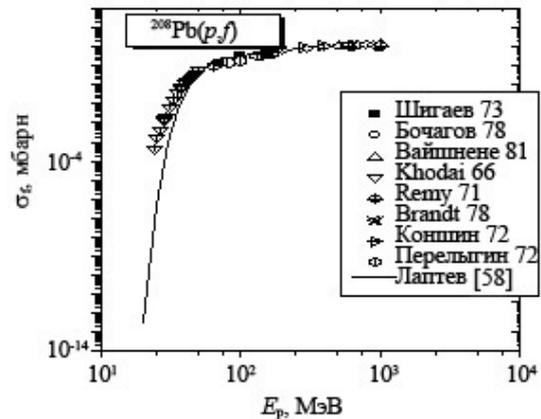


Рис.11. Сечение деления ядра  $^{208}\text{Pb}$  протонами. Компиляция экспериментальных данных (кроме [58]) – из работы [57]. Линиями представлены результаты расчётов по программе MCFx.

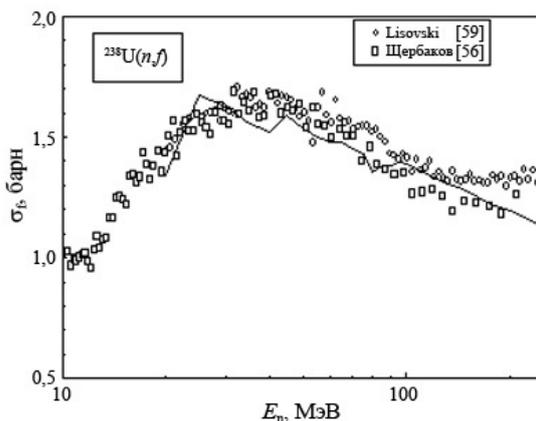


Рис.12. Сечение деления ядра  $^{238}\text{U}$  нейтронами. Линиями представлены результаты расчётов по программе MCFx.

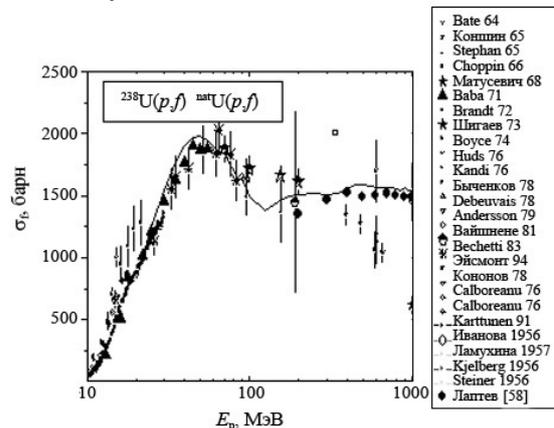


Рис.13. Сечение деления ядра  $^{238}\text{U}$  протонами. Компиляция экспериментальных данных (кроме [58]) из работы [57]. Линиями представлены результаты расчётов по программе MCFx.

**Энергии отделения** были рассчитаны методом конечных разностей [9] на основе современной таблицы экспериментальных масс ядер 2003 г. Пример такого расчёта приведен на рис. 14, 15 для цепочки ядер цезия и урана в сравнении с данными Мёллера [60].

Как видно в области, где существуют данные систематики [60], результаты близки, однако наша систематика продлена в область сильно нейтрондефицитных ядер. Разработанная систематика на данный момент содержит результаты расчёта для 9906 ядер.

**Барьеры деления и оболочечные поправки** были рассчитаны методом Струтинского для 800 ядер от платины до юрия. Сравнение наших расчётов с данными систематик, а также зависимость барьеров деления от параметра делимости приведены

на рис. 16, 17. Пример расчёта оболочечных поправок в основном состоянии и в двух седловых точках показан на рис. 18 для цепочки изотопов урана.

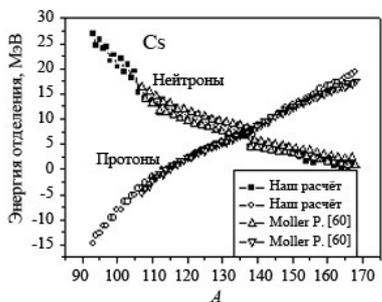


Рис. 14. Энергии отделения нуклонов для цепочки ядер цезия.

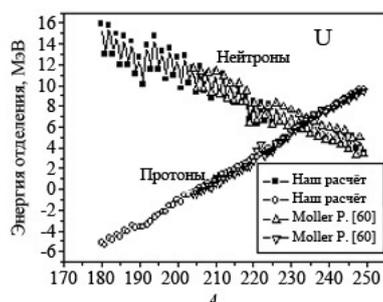


Рис. 15. Энергии отделения нуклонов для цепочки ядер урана.

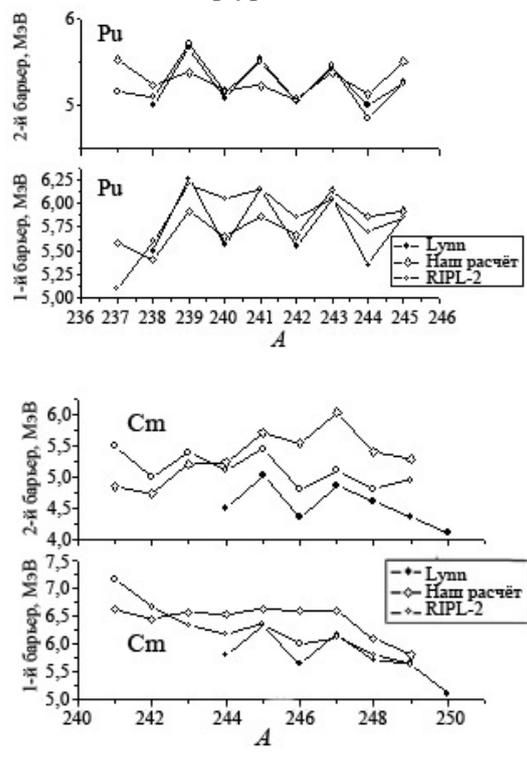
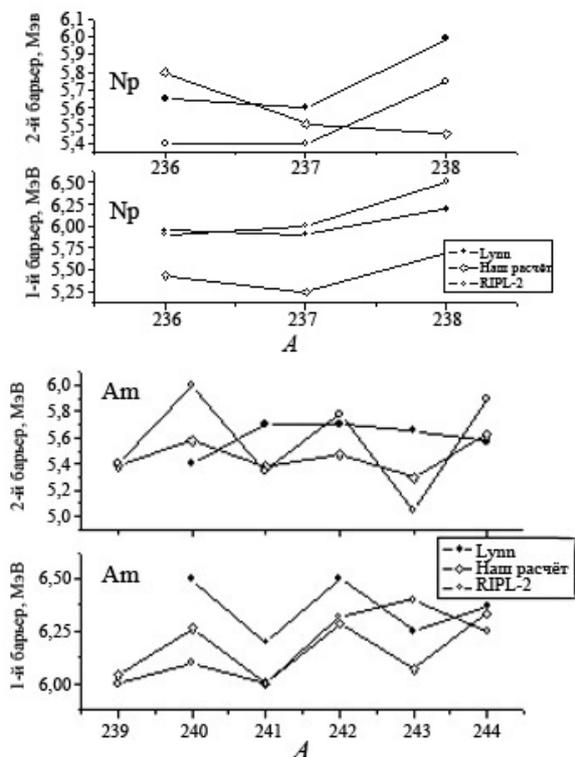


Рис. 16. Сравнение результатов расчётов барьеров деления для ядер Np–Cm с данными систематик [18, 48].

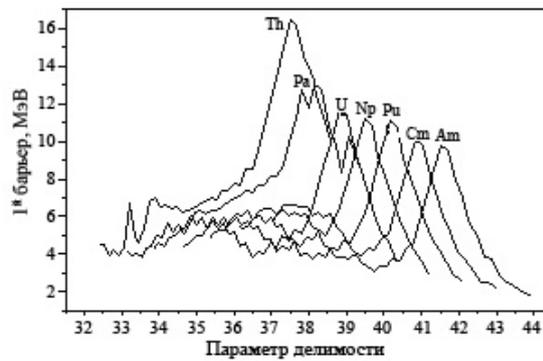
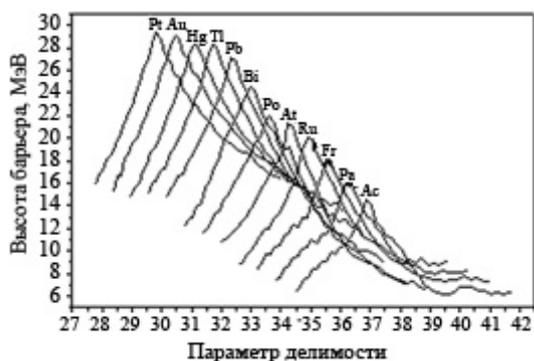


Рис. 17. Зависимость барьеров деления ядер от параметра делимости.

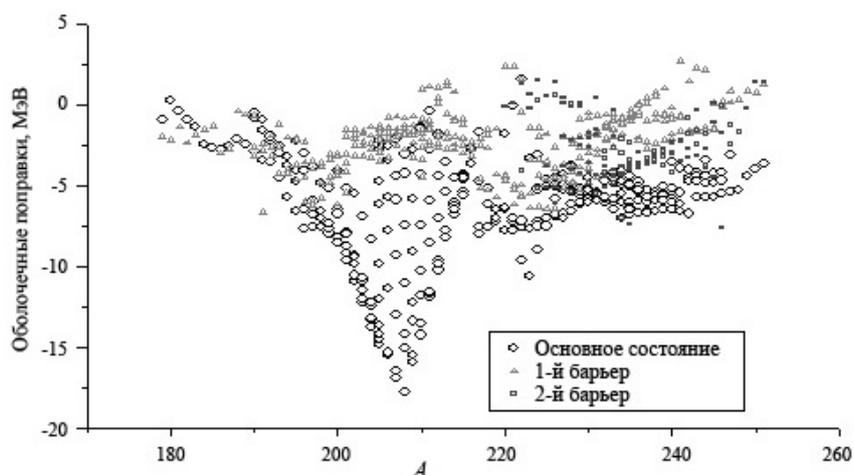


Рис. 18. Оболочечные поправки для цепочки изотопов урана.

### Список литературы

1. Yavshits S., Boykov G., Ippolitov V., Pakhomov S., Grudzevich O. Multiconfiguration Fission at Transitive Energy Region 20–200 MeV // *Вопр. атом. науки и техники. Сер.: Ядерные константы*. 2000. Вып. 1. С. 62–71.
2. Yavshits S., Boykov G., Ippolitov V. et al. Description of Nucleon-Induced Fission Cross-Sections at Transitive Energy Region 20–200 MeV // *Proc. 2000 Symp. on Nuclear Data / Eds N. Yamano, T. Fukahori*. Tokai, Japan: JAERI. 2000. P. 277–282.
3. Yavshits S., Boykov G., Ippolitov V. et al. Global Optical Model Potential Parametrization for Neutron- and Proton-Induced Reactions for Wide Energy Region // *Proc. IX Int. Seminar on Interaction of Neutrons with Nuclei (ISINN-9)*. Dubna, 2001. P. 160–167.
4. Yavshits S., Goverdovskii A., Ippolitov V., Grudzevich O. Theoretical Approach and Computer Code System for Nuclear Data Evaluation of 20–1000 MeV Neutron Induced Reactions on Heavy Nuclei // *Proc. Int. Conf. on Nuclear Data for Science and Technologies*. Tsukuba, 2001. P. 104–107.
5. Yavshits S. Theoretical Evaluation of Neutron and Proton Induced Fission Cross-Sections for Pb–Pu Targets in Energy Range 20–200 MeV: Report IAEA-NDS-153. February 2002. <http://www-nds.iaea.org/reports/nds-153.pdf>.
6. Yavshits S., Grudzevich O., Ippolitov V., Boykov G. Nuclear Data for ADS: Code System and Theoretical Data Library // *Proc. 7<sup>th</sup> Information Exchange Meet. on Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation*. Jeju, Korea, 2002.
7. Grudzevich O., Yavshits S., Calculations of Emission Neutrons and Fission Fragment Yields for Intermediate Energy Nucleon-Induced Reactions // *Proc. Int. Conf. on Nuclear Data for Science and Technology*. Santa Fe, USA, 2004. Vol. 2. P. 1221–1225.
8. Виноградова В. Г., Грудзевич О. Т., Явшиц С. Г. Экситонная модель много-частичного предравновесного распада // *Вопр. атом. науки и техники. Сер.: Ядерные константы*. 2005. Вып. 1–2. С. 26–39.
9. Явшиц С. Г., Грудзевич О. Т. Вычисление масс ядер методом разностных соотношений // *Вопр. атом. науки и техники. Сер.: Ядерные константы*. 2005. Вып. 1–2. С. 51–55.

10. Grudzevich O. T., Martirosyan J. M., Yavshits S. G. Nonequilibrium Nucleon Spectra from Reactions at Intermediate Energies // *Radiat. Protect. Dosim.* 2007. Neudos-10. Special Issue. P. 101–103.
11. Martirosyan Yu., Grudzevich O., Yavshits S. Modeling of the Multiparticle Pre-equilibrium Nucleon Emission and Nucleon Spectra // *Proc. XIV Int. Seminar on Interaction of Neutrons with Nuclei (ISINN-14)*. Dubna, 2006. P. 235–242.
12. Grudzevich O., Yavshits S. Complete Files of Neutron- and Proton-Induced Nuclear Data to 1 GeV for  $^{208}\text{Pb}$  Target // *Proc. Int. Conf. on Nuclear Data for Science and Technology*. Nice, France, 2007. Vol. 2. P. 1213; <http://dx.doi.org/10.1051/ndata:07576>.
13. Bersillon O. SCAT2 – A Spherical Optical Model Code. CEA-N-2037. 1978.
14. Tamura T. Analyses of the Scattering of Nuclear Particles by Collective Nuclei in Terms of the Coupled-Channel Calculation // *Rev. Mod. Phys.* 1965. Vol. 37. P. 679–708.
15. Raynal J. Notes on ECIS94. Note CEA-N-2772. 1994.
16. Raynal J. ECIS96. Proc. of a Specialists' Meeting on the Nucleon Nucleus Optical Model up to 200 MeV // Bruyeres-le-Chatel, France, 1996. P. 159–166.
17. Amos K., Dortmans P. J., von Geramb H. V. et al. Nucleon-Nucleus Scattering: a Microscopic Nonrelativistic Approach // *Adv. Nucl. Phys.* 2000. Vol. 25. P. 275–540.
18. Reference Input Parameter Library. <http://www-nds.iaea.org/ripl>.
19. Wilkins B. D., Igo G. 10-MeV Proton Reaction Cross Sections for Several Elements // *Phys. Rev.* 1963. Vol. 129. P. 2198–2206.
20. Pollock R. E., Schrank G. Proton Total Reaction Cross Sections at 16.4 MeV // *Phys. Rev.* 1965. Vol. 140. P. B575–B585.
21. Carlson R. F., Cox A. J., Nimmo J. R. et al. Proton Total Reaction Cross Sections for the Doubly Magic Nuclei  $^{16}\text{O}$ ,  $^{40}\text{Ca}$ , and  $^{208}\text{Pb}$  in the Energy Range 20–50 MeV // *Phys. Rev. C*. 1975. Vol. 12. P. 1167–1175.
22. Turner J. F., Rudley B. W., Gavanagh P. E. et al. Optical Model Studies of Proton Scattering at 30 MeV: (II). Proton Total Reaction Cross Sections at  $28.5 \pm 1.5$  MeV // *Nucl. Phys.* 1964. Vol. 58. P. 509–514.
23. Menet J. J. H., Gross E. E., Mglanifi J. J. et al. Total-Reaction-Cross-Section Measurements for 30–60-MeV Protons and the Imaginary Optical Potential // *Phys. Rev. C*. 1971. Vol. 4. P. 1114–1129.
24. Kirby P., Link W. T. Faraday-Cup Measurement of Proton Total Reaction Cross Sections at 100 MeV // *Can. J. Phys.* 1966. Vol. 44. P. 1847–1862.
25. Goloskie T. J., Strauch K. Measurement of Proton Inelastic Cross Sections between 77 MeV and 133 MeV // *Nucl. Phys.* 1962. Vol. 29. P. 474–485.
26. Kirschbaum A. J. Ph.D. Thesis. Report UCRL-1967. 1953. EXFOR // <http://www-nds.iaea.org/exfor>.
27. Renberg P. U., Measday D. F., Pepin M. et al. Reaction Cross Sections for Protons in the Energy Range 220–570 MeV // *Nucl. Phys. A*. 1972. Vol. 183. P. 81–104.
28. Москалев В. Н., Гавриловский Б. В. Полные сечения взаимодействия протонов с энергией 650 МэВ с ядрами // *ДАН СССР*. 1956. Т. 110. С. 972–974.
29. Chen F. F., Leavit C. P., Shapiro A. M. Attenuation Cross Sections for 860-MeV Protons // *Phys. Rev.* 1955. Vol. 99. P. 857–871.
30. Gachurin V. V., Drujinin B. L., Ejov B. A. et al. Measurement of total inelastic cross-sections of the interaction of protons and  $\pi^+$  mesons on nuclei in the mo-

- mentum range from 1.35-GeV/c to 3.75-GeV/c // Preprint ITEP N 59. Moscow, 1985.
31. Bate G. L., Huizenga J. R. Fission and Reaction Cross Sections in the Uranium Region with 4- to 12-MeV Protons // *Phys. Rev.* 1964. Vol. 133. P. B1471–B1476.
  32. Fulmer C. B. Total Reaction and Elastic Scattering Cross Sections for 22.8-MeV Protons on Uranium Isotopes // *Phys. Rev.* 1959. Vol. 116. P. 418–423.
  33. Millburn G. P., Birnbaum W., Crandall W. E. et al. Nuclear Radii from Inelastic Cross-Section Measurements // *Phys. Rev.* 1954. Vol. 95. P. 1268–1278.
  34. Norton M., Hintz, D. Cook. et al. Energy Dependence of Neutron-Proton Matrix Element Ratios Derived from 25–800 MeV Energy Proton Scattering // *Phys. Rev. C.* 1988. Vol. 37. P. 692.
  35. Бобченко Б. М., Баклай А. Е., Власов А. В. и др. Измерение полных нейтронных сечений взаимодействия протонов с ядрами в диапазоне импульсов от 5 до 9 ГэВ/с и  $\pi^-$ -мезонов с ядрами в диапазоне импульсов от 1,75 до 6,5 ГэВ/с // *ЯФ.* 1979. Т. 30. С. 1553–1568.
  36. Hutcheon D. A., Olsen W. C., Sherif H. S. et al. The Elastic Scattering of Intermediate Energy Protons from  $^{40}\text{Ca}$  and  $^{208}\text{Pb}$  // *Nucl. Phys. A.* 1988. Vol. 483. P. 429–460.
  37. Djalali C., Marty N., Morlet M. et al. 201 MeV Proton Excitation of Giant Resonances in Pb-208 // *Nucl. Phys. A.* 1982. Vol. 380. P. 42–60.
  38. Lee L., Drake T. E., Wong S. S. M. et al. Intermediate Energy Proton Scattering from Ca-40. Zr-90 and Pb-208 // *Phys. Lett. B.* 1988. Vol. 205. P. 219–222.
  39. Hansen L. F., Dietrich F. S., Pohl B. A. et al. Test of Microscopic Optical Model Potentials for Neutron Elastic Scattering at 14.6 MeV over a Wide Mass Range // *Phys. Rev. C.* 1985. Vol. 31. P. 111–119.
  40. Ichihara T. Systematics of the Hexadecapole (Y42) Strength of the Gamma-Vibration in Deformed Nuclei ( $152 < A$ ) Inelastic Scattering of Polarized Protons at 65 MeV // *Mem. Fac. Sci. Kyoto Univ. Ser. Phys.* 1988. Vol. 37. P. 191–197.
  41. Gerstein G., Niederer J., Strauch K. Elastic Scattering of 96-MeV Protons // *Phys. Rev.* 1958. Vol. 108. P. 427–432.
  42. Барашенков В. С., Тонеев В. Д. Взаимодействия высокоэнергетических частиц и атомных ядер с ядрами. М.: Атомиздат. 1972.
  43. Kalbach C. Systematics of Continuum Angular Distributions: Extensions to Higher Energies // *Phys. Rev. C.* 1988. Vol. 37. P. 2350–2370.
  44. Uhl M., Strohmaier B. STAPRE code. IRK 76/01. Vienna, 1976; Uhl M., Strohmaier B. STAPRE Code. IRK 76/01. Addenda. Vienna. 1976.
  45. Kalbach-Cline C. Residual Two-Body Matrix Elements for Pre-equilibrium Calculations // *Nucl. Phys. A.* 1973. Vol. 210. P. 590–604; Kalbach C., Surface and Collective Effects in Preequilibrium Reactions // *Phys. Rev. C.* 2000. Vol. 62. P. 44608–44622.
  46. Зайдель К., Зелигер Д., Райф Т., Тонеев В. Д. // *Физ. элементар. частиц и атом. ядра.* 1976. Т. 7. С. 499–552.
  47. Grudzevich O. T., Ignatyuk A. V., Plyaskin V. I. Consistent Systematics of Level Densities // *Proc. Int. Conf. on Nuclear Data for Science and Technology.* Mito. Japan, 1988. P. 767–772.
  48. Bjørnholm S., Lynn J. E. The Double-Humped Fission Barrier // *Rev. Mod. Phys.* 1980. Vol. 52. P. 725–931.

49. Smirenkin G. N. Preparation of Evaluated Data for a Fission Barrier Parameter Library for Isotopes with  $Z = 82-98$ . With Consideration of the Level Density Models Used. INDC(CCP)-359. Vienna. IAEA. 1993.
50. Мартиросян Ю. М. Энергетические распределения вторичных частиц в реакциях под действием нуклонов промежуточных энергий. Диссертация. Радиовый ин-т им. В. Г. Хлопина, С.-Петербург. 2007.
51. Trabant M., Scobel W., Blann M. Preequilibrium Neutron Emission in the Reactions  $^{90}\text{Zr}$ ,  $^{208}\text{Pb}(p, xn)$  with 80 MeV Projectiles // *Phys. Rev. C*. 1989. Vol. 39. P. 452–459.; Blann M., Doering R. R., Galonsky A. et al. Preequilibrium Analysis of  $(p, n)$  Spectra on Various Targets at Proton Energies of 25 to 45 MeV // *Nucl. Phys. A*. 1976. Vol. 257. P. 15–28.
52. Kerveno M., Haddad F., Eudes P. H. et al. Hydrogen Isotope Double Differential Production Cross Sections Induced by 62.7 MeV Neutrons on a Lead Target // *Phys. Rev. C*. 2002. Vol. 66. P. 014601–014609.
53. Raeymackers E., Benck S., Nica N. et al. Light Charged Particle Emission in Fast Neutron (25–65 MeV) Induced Reactions on Bi-209 // *Nucl. Phys. A*. 2003. Vol. 726. P. 210–230.
54. Smirnov A. N., Eismont V. P., Ryzhov I. V. et al. Proton- and Neutron-Induced Fission Cross-Sections and Fission Probability in the Intermediate Energy Region // *Proc. Int. Conf. on Nuclear Data for Science and Technology*. Tsukuba, Japan, 2001. *J. Nucl. Sci. Technology*. 2002. Sup. 2. P. 238–241.
55. Vorotnikov P. E., Larionov L. S. Neutron-Induced Fission Cross-Sections of Lead and Bismuth Nuclei // *Sov. J. Nucl. Phys.* 1984. Vol. 40. P. 552–554.
56. Scherbakov O., Donets A., Evdokimov A. et al. Neutron-Induced Fission of  $^{233}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{\text{nat}}\text{Pb}$  and  $^{209}\text{Bi}$  Relative to  $^{235}\text{U}$  in the Energy Range 1–200 MeV // *Proc. Int. Conf. on Nuclear Data for Science and Technology*. 2001. Tsukuba. Japan. *J. Nucl. Sci. Technol.* 2002. Suppl. 2. P. 230–233.
57. Eismont V. P., Obukhov A. I., Prokofiev A. V., Smirnov A. N. An Experimental Database on Proton-Induced Fission Cross-Sections of Tantalum, Tungsten, Lead, Bismuth, Thorium and Uranium // *Proc. 2<sup>nd</sup> Int. Conf. on Accelerator Driven Transmutation Technology and Applications*. Kalmar, Sweden, 1996. P. 592–598.
58. Laptev A., Fission Cross Section Measurements at Intermediate Energies // *Proc. 2004 Symp. on Nuclear Data*. Ed. T. Fukahori. Tokai, Japan: JAERI, 2004. P. 35–40.
59. Lisowski P., Ullmann J.L., Balestrini S.J. et al., Neutron induced fission cross section ratios for  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{235,238}\text{U}$ ,  $^{237}\text{Np}$  and  $^{239}\text{Pu}$  from 1 to 400 MeV // *Proc. Int. Conf. on Nuclear Data for Science and Technology*. 1988. Mito. Japan. P. 97–102.
60. Moller P., Nix J. R., Myers W. D., Swiatecki W. J. Nuclear Ground-State Masses and Deformations // *At. Data Nucl. Data Tables*. 1995. Vol. 59. P. 185.

### **Theoretical Simulation and Program Complex MCFx for Neutron-Induced Fission at Middle and Intermediate Energies**

Boikov G.S.<sup>1</sup>, Ippolitov V.T.<sup>1</sup>, Yavshits S.G.<sup>1</sup>, Grudzevich O.T.<sup>2</sup>, Martirosyan Yu.M.<sup>2</sup>

<sup>1</sup>) – V.G.Khlopin Radium Institute, St. Petersburg

<sup>2</sup>) – Obninsk Institute of Atomic Power Engineering, Obninsk

Basic physical models underlying the program complex MCFx designed for generation of ENDF-6 formatted complete nuclear data files on the characteristics of neutron-induced reactions on heavy nuclei in the energy range 20–1000 MeV are described. Examples of comparison of calculation results with a wide range of experimental data are presented.

## Массовые распределения осколков при делении ядер $^{232}\text{Th}$ и $^{238}\text{U}$ нейтронами с энергией 33, 45 и 60 МэВ

И. В. Рыжов, Г. А. Тутин, А. В. Саульский, Н. А. Кудряшев

Измерены распределения первичных масс осколков деления ядер  $^{232}\text{Th}$  и  $^{238}\text{U}$  нейтронами с энергией 32,8, 45,3 и 59,9 МэВ. Измерения проведены на нейтронном источнике циклотронной лаборатории Католического университета Лувена в Лувен-ле-Нёве (Бельгия). Энергию нейтронов, вызывающих деление, определяли по методу времени пролёта. Для регистрации осколков деления применяли многосекционную двойную импульсную ионизационную камеру с сетками Фриша. Массы осколков определяли методом (2E). Полученные распределения масс в случае деления ядра  $^{238}\text{U}$  нейтронами сравниваются с имеющимися в литературе данными по делению  $^{238}\text{U}$  под действием нейтронов и протонов с близкой средней энергией.

### Введение

Прогресс в атомной промышленности немислим без решения экономических, социальных проблем и проблем сохранения окружающей среды, связанных с производством атомной энергии. В частности, проблема захоронения ядерных отходов имеет громадное значение, так как оказывает сильное влияние на общественное мнение, особенно в странах со значительными генерирующими мощностями, использующими ядерную энергию. В последнее время управляемые ускорителем системы (ADS) привлекли внимание во всём мире как одно из возможных направлений решения проблемы трансмутации высокоактивных ядерных отходов. Типичная ADS представляет собой подкритическую систему, управляемую дополнительными нейтронами от нейтроно-производящей мишени, облучаемой заряженными частицами высокой энергии. В такой системе спектр нейтронов простирается от тепловых до энергии падающего пучка. По этой причине для концептуальных исследований ADS необходимы ядерные данные о реакциях, вызываемых нейтронами в широком энергетическом диапазоне, включая так называемые промежуточные энергии, то есть от 20 до 200 МэВ.

Нейтроны промежуточной энергии могут вызывать множество ядерных реакций в конструкционных, защитных, мишенных, топливных и других материалах. Число этих реакций настолько велико, что экспериментальное определение всех данных, требующихся для ADS, практически невозможно. По этой причине во всем мире была принята стратегия совместных экспериментальных и теоретических исследований для расширения существующих, ориентированных на обычные реакторы, баз данных по реакциям нейтронов с энергией до 200 МэВ. В соответствии с этой стратегией, ключевую роль в создании библиотек оценённых ядерных данных при промежуточных энергиях следует отвести современным моделям ядерных реакций (проверенных с помощью высококачественных экспериментальных данных). Таким образом, определение первоочередных потребностей в ядерных данных, точные экспериментальные измерения требуемых данных и развитие моделей ядерных реакций необходимы для успеха этой стратегии.

Потребности в ядерных данных при промежуточных энергиях для ADS были определены в докладе Рабочей группы международного сотрудничества по оценке (WPEC) [1]. Список потребностей высшего приоритета, представленный этой группой, содержит, наряду с конструкционными материалами и материалами нейтроно-производящей мишени, два «топливных» нуклида:  $^{232}\text{Th}$  и  $^{238}\text{U}$ , для которых требуются

ся данные по реакции  $(n, f)$ . Роль этих реакций деления в работе ADS ещё не полностью понята, так как число и спектр нейтронов, входящих в активную зону реактора, зависят от конструкции ADS. Обычно в концепциях ADS предполагается, что нейтроно-производящая мишень сделана из свинца (или свинца–висмута) и окружена зоной быстрого реактора, загруженной сборкой MOX-топлива на основе Th или U. В такой конфигурации энергетический спектр нейтронов, покидающих мишень и входящих в активную зону реактора, оказывается мягче, чем спектр нейтронов из первичных реакций, вызываемых протонами. Например, численное моделирование подкритической зоны реактора типа MUSE-4, объединённого с пучком протонов с энергией 1 ГэВ, показывает, что около 5 % нейтронов, покидающих нейтроно-производящую мишень, имеют энергию выше 20 МэВ, в то время как доля этой энергетической группы в спектре первичных нейтронов составляет 17,3 % [2]. Более быстрые нейтроны, входящие в активную зону, хотя и составляют сравнительно скромную долю, могут играть значительную роль в анализе нейтронных полей, так как деление топливных материалов нейтронами промежуточной энергии сопровождается намного более интенсивной эмиссией нейтронов по сравнению с низкоэнергетичным делением. Кроме того, следует отметить, что массовое распределение осколков деления под действием медленных и быстрых нейтронов принципиально отличается для актиноидов. При энергиях нейтронов в единицы МэВ (характерные для обычных критических реакторов) массовое распределение демонстрирует существенную асимметрию, в то время как при промежуточных энергиях наблюдается заметное увеличение доли симметричного по массам деления. Например, отношение симметричного деления ко всем случаям деления для реакции  $^{238}\text{U}(n, f)$  при 100 МэВ примерно в двести раз выше, чем при 1,6 МэВ (средняя энергия нейтронов в критическом реакторе). Это означает, что при определённых условиях деление актиноидов при промежуточных энергиях может привести к производству большого количества долгоживущих продуктов деления, например  $^{126}\text{Sn}$  ( $T_{1/2} \approx 10^5$  лет), которые близки по массе к области симметричного деления в соответствующем массовом распределении и которые присутствуют в сравнительно малых количествах в обычных ядерных отходах.

Следует заметить, что база ядерных данных для реакций  $(n, f)$  при промежуточных энергиях довольно скудная по сравнению с существующей базой данных для энергий до 20 МэВ. Недавно для удовлетворения потребностей ориентированных на ADS баз ядерных данных во всем мире было выполнено большое число экспериментальных исследований деления ядер при промежуточной энергии нейтронов (ссылки на оригинальные работы см. в [3]). В Европе эта деятельность координировалась Европейской Комиссией посредством проектов по ядерным данным HINDAS и n\_TOF\_ND\_ADS, а также Международным научно-техническим центром (ISTC) в Москве [4].

Все вышеотмеченные исследования были сконцентрированы на измерениях сечений деления под действием нейтронов. В результате для некоторых актиноидов, включая  $^{232}\text{Th}$  и  $^{238}\text{U}$ , существуют достаточно точные данные по сечениям деления под действием нейтронов с энергией до 200 МэВ, но отсутствуют данные по дифференциальным характеристикам деления. До настоящего времени известен лишь один эксперимент, в котором были измерены распределения кинетической энергии и масс осколков деления в реакции  $^{238}\text{U}(n, f)$  при различных энергиях падающего нейтрона вплоть до 500 МэВ [5]. Статистическая погрешность этих данных увеличивается с ростом энергии нейтронов, так что массовые выходы при промежуточных энергиях

получены в широких интервалах по энергии нейтронов, что усложняет сравнение экспериментальных данных с теоретическими расчётами.

Нами были впервые выполнены экспериментальные измерения энергетических и массовых распределений осколков деления ядер  $^{232}\text{Th}$  и  $^{238}\text{U}$  нейтронами с энергией 33, 45 и 60 МэВ. Измерения проведены на квази-моноэнергетическом нейтронном источнике циклотронной лаборатории Католического университета Лувена в Лувен-ле-Нёве (Бельгия). Для регистрации осколков деления применяли многосекционную двойную импульсную ионизационную камеру с сетками Фриша. Массы осколков определяли методом (2E). Ниже подробно описана экспериментальная методика, а также приводятся полученные результаты. Массовые распределения сравниваются с данными Цоллера [5] при сравнимых энергиях. В случае деления ядер  $^{232}\text{Th}$  при всех исследованных энергиях получены трёхгорбые распределения масс осколков.

## Эксперимент

### 1. Схема эксперимента

Общая схема экспериментов в Лувен-ле-Нёве приведена на рис. 1.

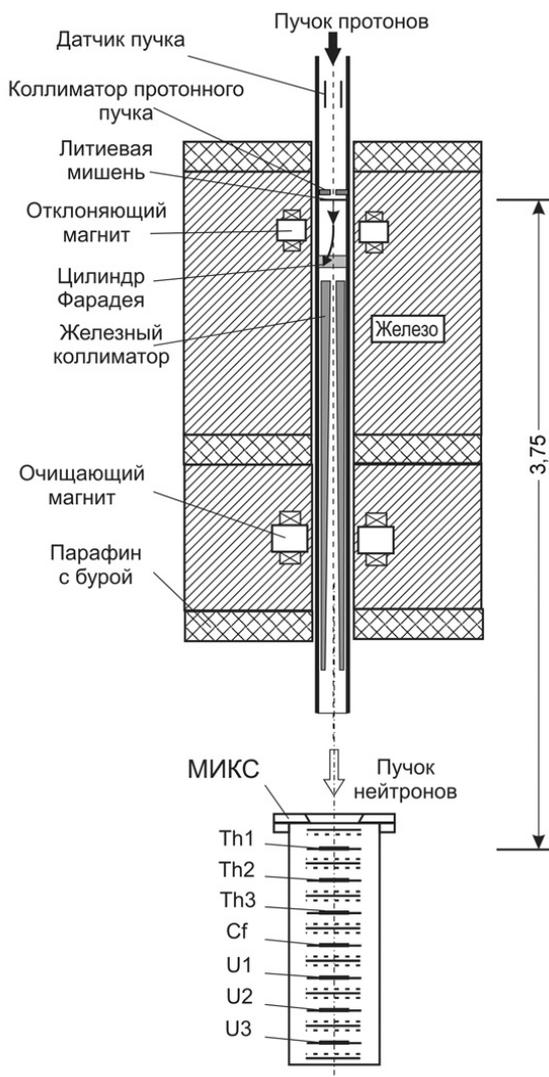


Рис. 1. Общая схема эксперимента на нейтронном источнике в Лувен-ле-Нёве (не в масштабе).

Источник быстрых нейтронов, построенный в Лувен-ле-Нёве (Бельгия) на базе циклотрона ЦИКЛОН, подробно описан в работах [6, 7], так что ниже даётся только его краткое описание. Ускоренные в циклотроне ЦИКЛОН протоны проходят сквозь графитовый коллиматор и попадают на охлаждаемую водой литиевую мишень толщиной 5 мм и диаметром 7 мм. Нейтроны производятся в реакции  ${}^7\text{Li}(p, n)$  и направляются в экспериментальный зал, а пучок первичных протонов отклоняется поворотным магнитом и попадает в охлаждаемую водой графитовую ловушку. Нейтронный пучок формируется под углом  $0^\circ$  с помощью железного коллиматора, который обеспечивает диаметр пучка 2 см на расстоянии 200 см от Li мишени. Спектр нейтронов под углом  $0^\circ$  состоит из высокоэнергетического пика, который сопровождается «хвостом» нейтронов низких энергий. Пик содержит около 40 % всех нейтронов и имеет ширину несколько МэВ (в зависимости от энергии протонов). На рис. 2 приведены примеры нейтронных спектров, произведённых протонами с энергиями 36,4, 48,5 и 62,9 МэВ в литиевой мишени толщиной 5 мм [8]. Камера была установлена таким образом, что расстояние от первой ториевой мишени до Li мишени составляло 375 см. Расстояние между мишенями было 6,4 мм. Плотность нейтронного потока, падающего на мишени, составляла около  $10^5 \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ .

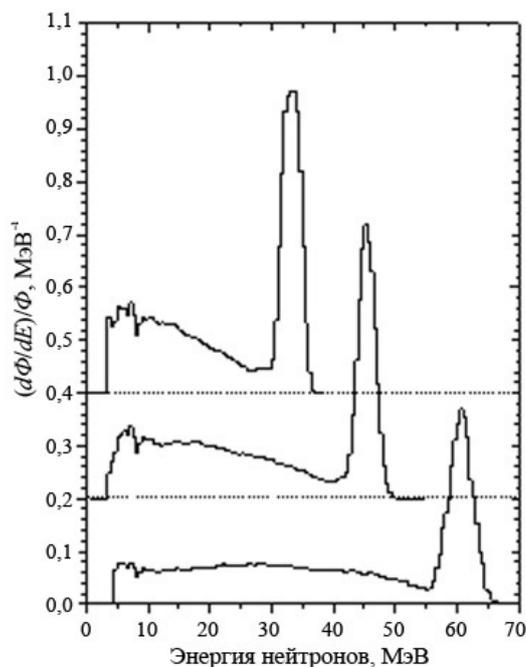


Рис. 2. Спектры квази-моноэнергетических нейтронов с «пиковыми» энергиями 32,8, 45,3 и 59,9 МэВ, измеренные на нейтронном источнике в Лувен-ле-Нёве [8].

Для удобства представления спектры смещены по вертикальной оси.  $\Phi$  – флюенс.

## 2. Многосекционная ионизационная камера с сетками Фриша

Для регистрации событий деления под действием нейтронов, определения энергий парных осколков деления и угла вылета осколка по отношению к оси камеры мы использовали многосекционную двойную импульсную ионизационную камеру с сетками Фриша (МИКС), подобную описанной нами ранее [9]. Ниже описаны её конструкция и принципы регистрации энергии парных осколков и угла их вылета, а также метод определения масс осколков.

Как видно на рис. 3 и 4, электродная сборка поддерживается четырьмя внешними тефлоновыми стержнями с набором пазов. Такое инженерное решение позволяет эффективно уменьшить диаметр электродной сборки (и, следовательно, её ёмкость) без искажения нейтронного пучка. Кроме того, это позволяет в случае необходимости производить быструю замену любого электрода.

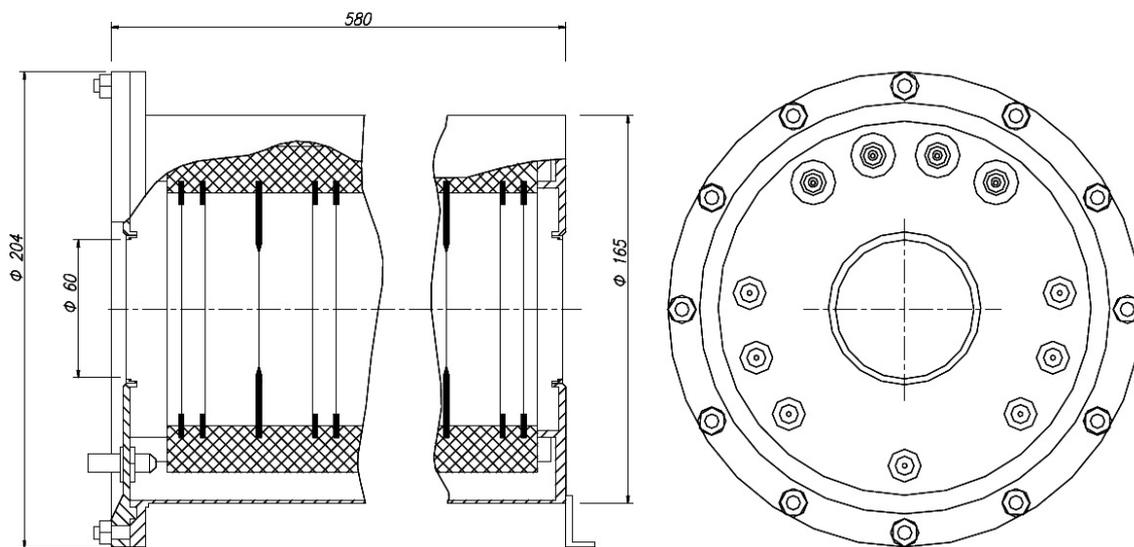


Рис. 3. Схематический вид спереди и сбоку слева многосекционной ионизационной камеры с сетками Фриша (МИКС).



Рис. 4. Внутренний вид МИКС (без наружного кожуха).

Детектор состоит из семи секций. Каждая секция представляет собой двойную ионизационную камеру с сетками Фриша и общим катодом. Соседние секции имеют общий анод, так что общее число электродов равно 29, включая 7 катодов, 8 анодов и 14 сеток. Электродная сборка заключена в тонкостенный (1 мм) кожух из нержавеющей стали наружным диаметром 165 и длиной 575 мм. Крышка кожуха служит основанием для тefлоновых стержней с пазами, в которые помещаются электроды камеры (рис. 4).

Прибор оборудован только одним вакуумным краном, так как не предполагалось использовать МИКС в режиме протока газа. Одиннадцать вакуумно-плотных разъёмов (4 SHV и 7 BNC) смонтированы на крышке кожуха. Входное и выходное окна детектора для пропуска нейтронного пучка сделаны из нержавеющей стали толщиной 250 мкм и диаметром 60 мм.

Все электроды (аноды, катоды и сетки) круглой формы и имеют диаметр 110 мм. Аноды изготавливаются из дюралюминиевой фольги толщиной 50 мкм, помещённой между двумя дюралюминиевыми кольцами толщиной 1 и внутренним диаметром 90 мм. Эти кольца склепаны вместе для удержания фольги в натянутом состоянии. Дюралюминиевая фольга достаточно эластична, чтобы быть в натянутом состоянии без поверхностных неровностей. Катоды представляют собой кольца из нержавеющей стали толщиной 2 и внутренним диаметром 68 мм. Держатель мишени помещается в центральную часть катода при помощи пружинного фиксатора. Сетки смонтированы на кольцах из нержавеющей стали толщиной 2 и внутренним диаметром 90 мм. Сетки изготовлены из позолоченной молибденовой проволоки диаметром 80 мкм с шагом 1,25 мм. Нити смонтированы параллельно друг другу на кольца из нержавеющей стали с помощью точечной сварки. Расстояние между анодом и сеткой равно 8 мм. Катод расположен на расстоянии 24 мм от сетки. Вычисленная согласно формулам работы [10] неэффективность сеточной защиты равна 0,034.

Делящиеся мишени были изготовлены методом напыления в вакууме тетрафторидов естественного урана и  $^{232}\text{Th}$  на подложки из формвара толщиной  $\approx 30$  мкг/см<sup>2</sup>, которые предварительно покрывали слоем золота толщиной 10–15 мкг/см<sup>2</sup> для обеспечения электропроводности. Средняя толщина мишеней составляла 130 и 70 мкг/см<sup>2</sup> соответственно для ториевых и урановых образцов.

### 3. Электронная обработка сигналов детекторов

На рис. 5 представлена блок-схема электроники, используемой для обработки сигналов от МИКС. Каждая секция детектора работает как двусторонняя плоскопараллельная ионизационная камера с сетками Фриша (рис. 6). Три сигнала, два анодных и один катодный, снимались с электродов камеры с помощью низкошумящих зарядочувствительных предварительных усилителей (ПУ). Каждый анодный ПУ помещён в общий корпус с соответствующим спектроскопическим усилителем. Усиленные и сформированные анодные сигналы направлялись на импульсные аналого-цифровые преобразователи (АЦП) для определения амплитуд анодных импульсов, которые приблизительно пропорциональны энергиям осколков. С временных выходов анодных ПУ сигналы подавались на быстрые усилители (БУФ) с постоянными формированиями  $\tau_{\text{int}} = 20$  нс,  $\tau_{\text{dif}} = 200$  нс, а затем на дискриминаторы по переднему фронту (ДУ). Логические сигналы с дискриминаторов ДУ подавались (в качестве сигналов «стоп») на время-цифровые преобразователи (ВЦП) для измерения времени дрейфа электронов, которое, в свою очередь, используется для определения угла вылета осколка деления, как это описывается в подразделе ниже.

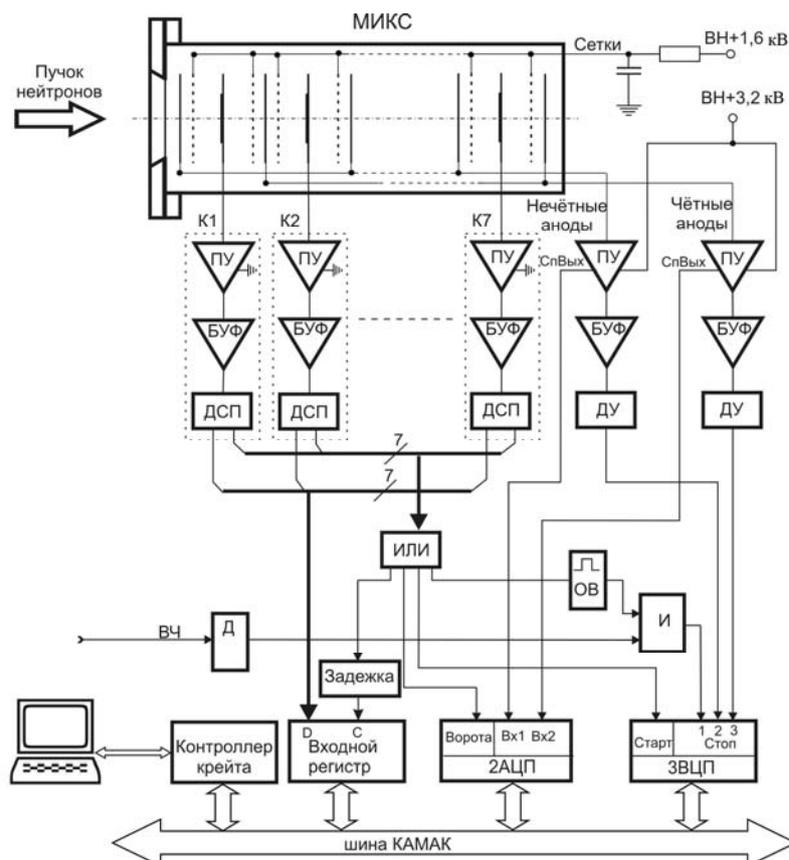


Рис. 5. Блок-схема электроники, используемой для измерений с МИКС.

Для упрощения системы сбора данных чередующиеся аноды соединены вместе в две группы, так что только два спектроскопических канала (вместо 14) использовались для обработки анодных сигналов от всех секций камеры. В принципе такое соединение анодов может привести к наложению анодных сигналов от различных секций. Однако вероятность случайных совпадающих событий деления в различных секциях камеры пренебрежимо мала при скоростях счёта, характерных для данных экспериментов.

Катодный сигнал использовался для измерения энергии нейтрона, а также для определения сработавшей секции ионизационной камеры. Быстрые выходные сигналы катодных ПУ направлялись на соответствующие быстрые усилители-формирователи (БУФ) с постоянными формирования  $\tau_{\text{int}} = \tau_{\text{diff}} = 20$  нс. Выходной сигнал от БУФ поступал на вход дискриминатора со следящим порогом (ДСП). Логические выходные сигналы с семи дискриминаторов ДСП смешивались в блоке ИЛИ и затем разделялись на четыре направления. Один сигнал служил для запуска время-цифрового преобразователя (ВЦП), второй через задержку стробировал входной регистр, третий шел на запуск АЦП и четвертый служил для формирования сигнала «стоп» от высокочастотного сигнала (ВЧ) циклотрона. Сигналы со вторых выходов ДСП посылаются на входы данных входного регистра.

Чтение данных начиналось, как только вырабатывался LAM («Look at Me») сигнал ВЦП. Для каждого события программа сбора данных считывала номер сработавшей камеры, амплитуды двух анодных импульсов и три временных интервала. Данные копились событие за событием на жёстком диске.

#### 4. Определение массы осколка

Двойная плоская ионизационная камера с сетками Фриша позволяет измерить кинетическую энергию осколка и угол вылета его по отношению к нормали к поверхности катода. Имея кинетические энергии дополнительных осколков (осколков, образующихся в одном акте деления) можно определить массы осколков, используя так называемый метод (2E), основанный на законах сохранения массы и линейного момента. В принципе массы осколков до эмиссии нейтронов деления  $m_i^*$  ( $i = 1, 2$ ) вычисляются как

$$m_1^* = A_{\text{CN}} \frac{E_2^*}{E_1^* + E_2^*}, \quad m_2^* = A_{\text{CN}} - m_1^*, \quad (1)$$

где  $A_{\text{CN}}$  – масса делящегося ядра и  $E_i^*$  – кинетические энергии парных осколков до эмиссии нейтронов деления в системе центра масс делящегося ядра. На практике, однако, могут быть измерены только энергии осколков после испускания нейтронов деления  $E_i$ . Полагая изотропную (в системе осколка) эмиссию нейтронов из полностью ускоренных осколков, кинетическая энергия осколка до испускания нейтронов дается выражением

$$E_i^* = E_i \left( 1 + \frac{n_i(m_i^*)}{m_i} \right), \quad (2)$$

где  $n_i(m_i^*)$  – среднее число нейтронов, испускаемых из осколка и  $m_i$  – масса осколка после испускания нейтронов деления:

$$m_i = m_i^* - n_i(m_i^*). \quad (3)$$

Из уравнений (1)–(3) были получены массы осколков до эмиссии нейтронов с помощью итерационной процедуры, подобной той, что описана в работе [11]. В качестве первого приближения полагали что  $m_1^* = m_2^* = (A_{\text{CN}} - n_{\text{pre}})/2$ , где  $n_{\text{pre}}$  – множественность предделительных нейтронов, взятая из работы [5]. После этого величины  $m_i$  вычисляли по уравнению (3). Затем вычисляли энергии осколков после эмиссии нейтронов, как описано в подразделе ниже, и энергии осколков до испускания нейтронов определяли по уравнению (2), используя зависимость  $n_i$  от массы из работы [5]. После этого с помощью уравнения (1) (с  $A_{\text{CN}} - n_{\text{pre}}$  вместо  $A_{\text{CN}}$ ) определяли новые значения  $m_i^*$  и вычисления повторяли. Итерационный процесс прекращали, когда  $\Delta m_i^*$  на двух последовательных итерациях становилось менее 1/10 а.е.

Полученные массовые распределения осколков в дальнейшем были исправлены на вклад от «wгар-аound» нейтронов, а также на дисперсию, вносимую эмиссией мгновенных нейтронов из осколков деления и инструментальную дисперсию. Эти поправки обсуждаются в соответствующих подразделах ниже.

#### 5. Кинетическая энергия осколков после испускания мгновенных нейтронов

Кинетическая энергия осколков после испускания нейтронов деления в лабораторной системе координат получалась из амплитуды анодного импульса  $P_{\text{anode}}$  как

$$E_i^{\text{lab}} = A_\alpha P_{\text{anode}} + \Delta_{\text{grid}} + \Delta_{\text{PHD}} + \Delta_{\text{loss}}, \quad (4)$$

где  $A_\alpha$  – постоянная, полученная из абсолютной энергетической калибровки с использованием  $\alpha$ -частиц  $^{252}\text{Cf}$  и генератора точной амплитуды,  $\Delta_{\text{grid}}$ ,  $\Delta_{\text{PHD}}$  и  $\Delta_{\text{loss}}$  –

поправки на неэффективность сетки, амплитудный дефект детектора (PHD) и потери энергии осколка в материале мишени и подложке соответственно.

Поправка на неэффективность сетки дается согласно работе [12] как:  $\Delta_{grid} = A_d P_{anode} \sigma_{grid} \cos \theta \cdot \langle x \rangle / d$ , где  $\sigma_{grid}$  – неэффективность сетки,  $\theta$  – угол вылета осколка в лабораторной системе по отношению к нормали к поверхности катода,  $d$  – расстояние от катода до сетки и  $\langle x \rangle$  – расстояние центра тяжести дорожки электрон-ионных пар от начала трека. Величина  $\sigma_{grid}$  зависит от параметров сетки, а также от расстояния катод–анод [10]. Для используемой нами камеры  $\sigma_{grid}$  равняется 0,034. При определении  $\langle x \rangle$  было предположено, что оно зависит только от энергии осколка. Энергетическая зависимость  $\langle x \rangle$  была определена экспериментально, следуя методу, описанному в работе [12]. Определение угла эмиссии осколка описывается в следующем подразделе.

Поправка на потерю энергии осколком была получена как  $\Delta_{loss} = \Delta E_i^{lab} / \cos \theta$ , где  $\Delta E_i^{lab}$  – средняя потеря энергии осколком в слое, пройденном под углом  $\theta = 0^\circ$ . Величину  $\Delta E_i^{lab}$  вычисляли с помощью кода SRIM [13].

Дефект амплитуды импульса (PHD) вычисляли как  $\Delta_{PHD} = a + b m_i$  с постоянными  $a = 1,95$  МэВ и  $b = 0,023$  МэВ/amu, полученными из анализа результатов измерений работы [14].

Кинетическую энергию осколка после испускания нейтронов деления в системе центра масс делящегося ядра вычисляли по формуле:

$$E_i = E_i^{lab} + \frac{p_{CN}^2}{2(A_{CN} - v_{pre})} - 2 p_{CN} \left( \frac{E_i^{lab}}{2(A_{CN} - v_{pre})} \right)^{\frac{1}{2}} \cos \theta, \quad (5)$$

где  $p_{CN}$  – средний продольный линейный момент делящегося ядра. Линейный переданный момент (LMT) от падающего нейтрона делящемуся ядру вычисляли с использованием систематики, полученной для  $(p, f)$ -реакций [15].

## 6. Угол вылета осколка

Рис. 6 иллюстрирует, как измеряется угол вылета осколка. Оба осколка останавливаются в пространстве между катодом и сетками, при этом производят электрон-ионные пары вдоль своих треков. Высокое напряжение, приложенное между электродами камеры, заставляет как свободные электроны, так и ионы дрейфовать к аноду и катоду соответственно. Так как сетка экранирует анод от зарядов, движущихся в пространстве между катодом и сеткой, импульс на аноде не возникает до тех пор, пока первые электроны не проникнут за сетку.

Измеряя время задержки между катодным и анодным сигналами, можно определить угол вылета осколка по формуле:

$$\cos \theta = \frac{d - x}{r} = \frac{d - v_{drift} T}{d - v_{drift} T_{min}}, \quad (6)$$

где  $r$  – длина трека,  $x$  – расстояние от конца трека до плоскости соответствующей сетки,  $v_{drift}$  – скорость дрейфа электронов и  $T_{min} = T(\cos \theta = 1)$ .

Подстановка  $d = v_{drift} T_{max}$  в уравнение (6), где  $T_{max} = T(\cos \theta = 0)$ , дает более удобное для практического использования выражение для  $\cos \theta$ :

$$\cos \theta = \frac{T_{max} - T}{T_{max} - T_{min}}. \quad (7)$$

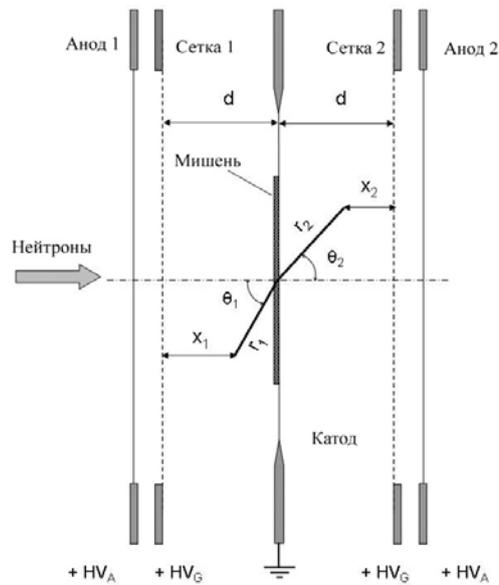


Рис. 6. Поперечное сечение двойной ионизационной камеры с сетками Фриша.

Величины  $T_{\min}$  и  $T_{\max}$  были определены экспериментально. Предполагалось, что длина трека зависит только от энергии осколка. В этом случае зависимость  $T_{\min}$  от энергии осколка может быть найдена из распределений  $T$ , полученных для осколков в выделенном энергетическом интервале. Величина  $T_{\max}$ , извлеченная из этих распределений, одинакова для всех осколков.

### 7. Поправки на фон «wгар-around» нейтронов

В настоящем эксперименте для отделения тех событий деления, которые вызываются «пиковыми» нейтронами, была применена методика времени пролёта (TOF). На рис. 7 представлены распределения событий деления по временным интервалам между делением и RF-сигналом циклотрона.

Следствием того, что промежуток времени между микроимпульсами протонов в циклотроне достаточно короткий (50–70 нс), является наличие так называемого «wгар-around» фона, вызываемого медленными нейтронами, появляющимися в детекторе одновременно с быстрыми нейтронами от следующего микроимпульса. В случае присутствия «wгар-around» нейтронов распределение по времени является суммой наложенных друг на друга распределений, соответствующих различным RF-периодам. В результате высокоэнергетичный пик находится на подложке так, что невозможно отделиться от низкоэнергетичного фона, выделив только временной интервал. Надлежащее вычитание «wгар-around» фона может быть выполнено в том случае, если мы знаем, сколько нейтронов данной энергии находится под высокоэнергетичным пиком. Для этой цели было произведено моделирование методом Монте-Карло распределений по времени путём свертки сечений деления нейтронами  $^{232}\text{Th}$  [16] и  $^{238}\text{U}$  [17] с нейтронными спектрами [8]. Период RF циклотрона, разрешение по времени детектора и длина пролёта нейтронов были приняты в расчёт для согласования с экспериментальными условиями. Пример отдельных перекрывающихся распределений по времени, смоделированных для деления урана квази-моноэнергетическими нейтронами с «пиковой» энергией 32,8 МэВ, представлен на рис. 8.

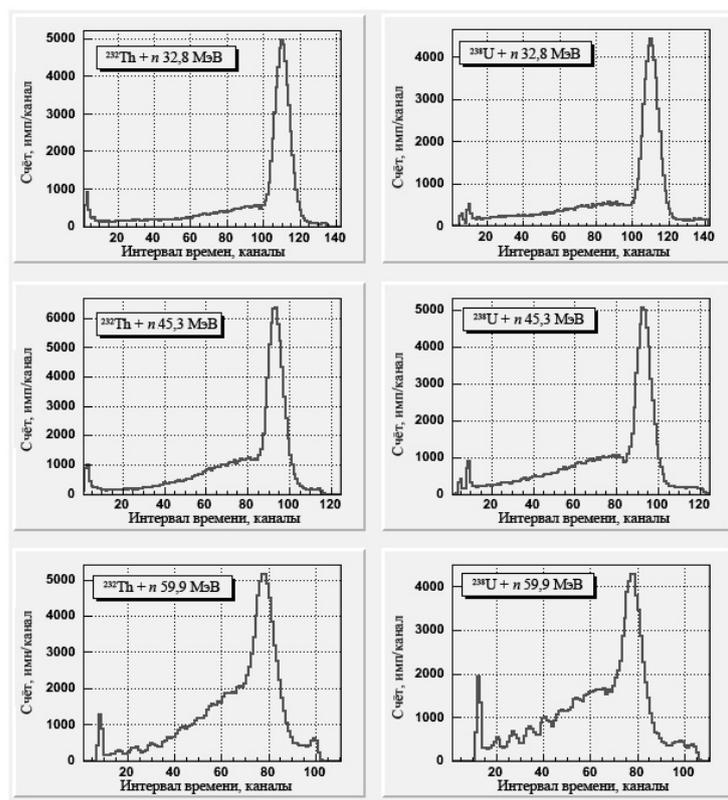


Рис. 7. Распределения интервалов времени между событиями деления в тории (левый ряд) и уране (правый ряд) и RF-сигналами циклотрона. Измерения были проведены на квази-моноэнергетических нейтронных пучках с «пиковыми» энергиями 32,8, 45,3 и 59,9 МэВ, ширина канала 0,5 нс.

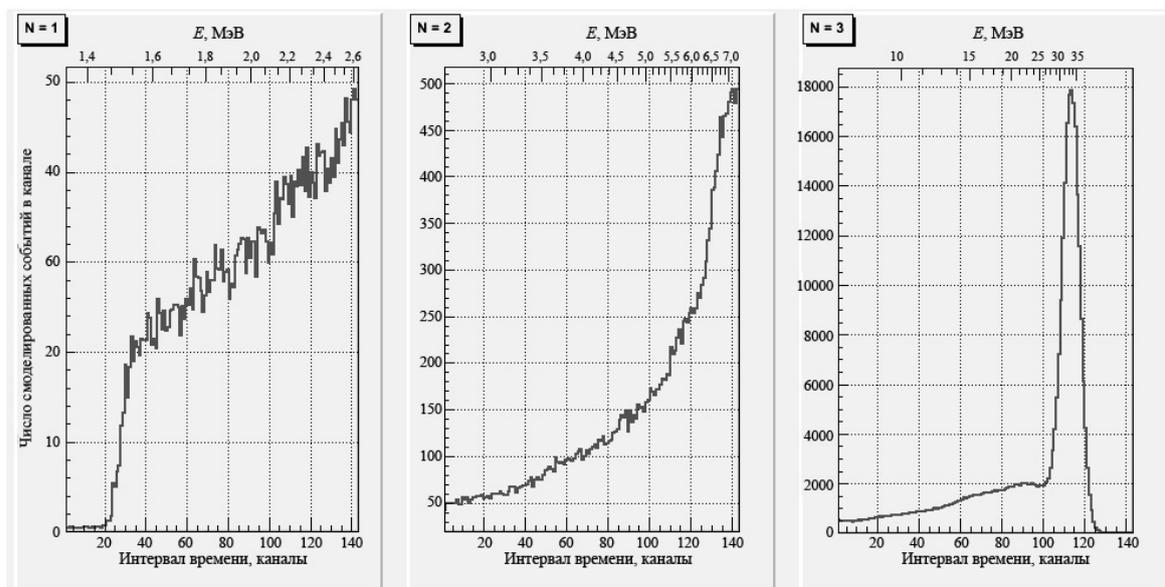


Рис. 8. Модельные распределения по времени между событиями деления урана и RF-сигналами циклотрона. Моделирование было проведено для квази-моноэнергетических нейтронов с «пиковой» энергией 32,8 МэВ. Верхняя шкала показывает энергию нейтронов. Ширина канала 0,5 нс.

Можно видеть, что события деления, вызываемые нейтронами с энергией около 2,2 и 5,5 МэВ, образуют фоновую подложку под высокоэнергетичным пиком. Такие события составляют около 2,5 % событий в высокоэнергетичном пике (суммарное число событий на полной ширине на 1/10 высоты пика). Доля таких событий увеличивается по мере роста «пиковой» энергии нейтронов. Она составляет 3,0 и 4,0 % в случае нейтронных спектров с «пиковой» энергией 45,3 и 59,9 МэВ соответственно.

На левой части рис. 9 видно, что смоделированное распределение довольно хорошо воспроизводит полученное экспериментально. Зная структуру наложенных распределений по времени, мы получили фоновые массовые распределения. Для этой цели мы использовали оценённые массовые распределения Уолла [18]. В правой части рис. 8 показаны рассчитанные фоновые массовые распределения от первого и второго RF периодов (см. рис. 7) вместе с массовым распределением осколков до эмиссии нейтронов, измеренным для всех событий деления, попадающих в интервал времени в пределах высокоэнергетического пика. Заметим, что поправки на массовое разрешение на этой стадии не были учтены.

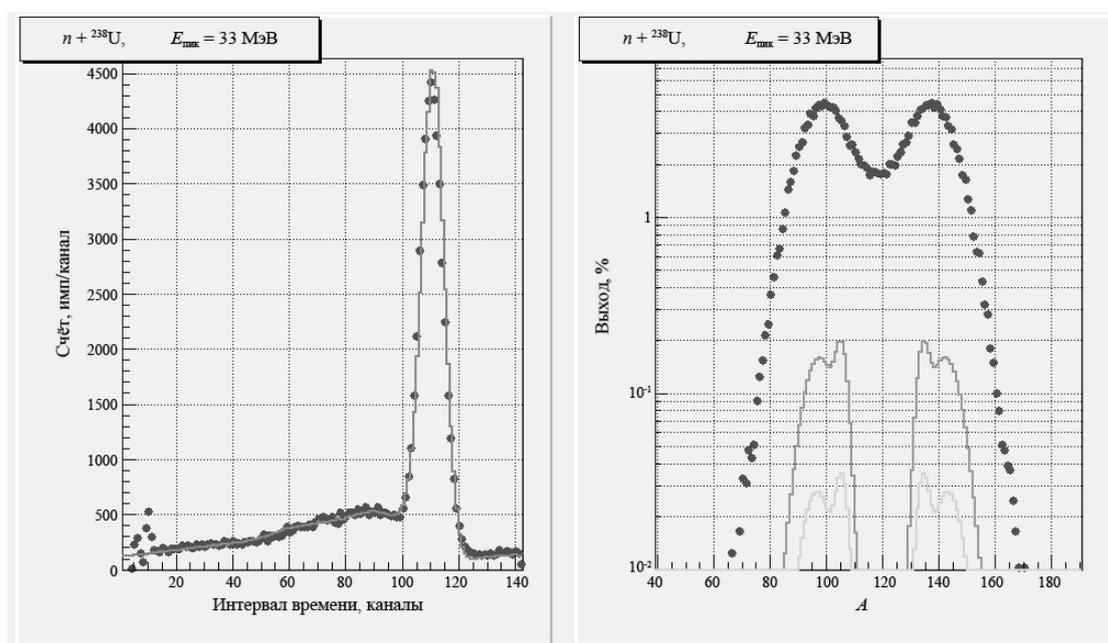


Рис. 9. Левая часть: измеренные (символы) и смоделированные (линия) распределения по времени между событиями деления  $^{238}\text{U}$  (вызванного квази-моноэнергетическими нейтронами с «пиковой» энергией 32,8 МэВ) и RF-сигналами циклотрона. Правая часть: массовое распределение осколков до эмиссии нейтронов, полученное для событий деления в пределах высоко-энергетического пика (символы) и рассчитанные фоновые массовые распределения (линии) от «wгар-around» нейтронов.

## 8. Поправки на массовое разрешение

Массовые распределения осколков до эмиссии нейтронов, полученные, как было описано в подразделах выше, были затем исправлены на массовое разрешение. Функцию массового разрешения вычисляли как в работе [19]:

$$\sigma_{\text{tot}}^2(m) = \sigma_{\text{INH}}^2 + \sigma_{\text{INST}}^2, \quad (8)$$

где  $\sigma_{\text{INH}}^2$  – «внутренне присущее» уширение, вызываемое испусканием нейтронов деления, и  $\sigma_{\text{INST}}^2$  – приборное уширение, связанное с методикой измерения. «Внутренне присущая» массовая дисперсия может быть записана как:

$$\sigma_{\text{INH}}^2 = \sigma_{\text{FF}}^2 + \sigma_{\text{CN}}^2 + \sigma_{\text{LMT}}^2. \quad (9)$$

Здесь  $\sigma_{\text{FF}}^2$  обозначает дисперсию масс, вызываемую испусканием нейтронов из осколков деления,  $\sigma_{\text{CN}}^2$  – дисперсия масс, связанная с испусканием нейтронов до деления и  $\sigma_{\text{LMT}}^2$  описывает дисперсию масс, вызываемую дисперсией распределения переданного линейного момента. Принимая во внимание слабую зависимость от массы осколка  $\sigma_{\text{tot}}^2$ , все дисперсии вычисляли для симметричного массового разделения. Первый член уравнения (9) вычисляли, как в работе [19]:

$$\sigma_{\text{FF}}^2 = \frac{(A_{\text{CN}} - v_{\text{pre}}) v_{\text{post}} \bar{E}_n}{3E_K} + \frac{1}{4} \sigma_{\text{FF}}^2(v_{\text{post}}), \quad (10)$$

где  $\bar{E}_K$  – средняя полная кинетическая энергия осколков (ТКЕ);  $v_{\text{pre}}$  и  $v_{\text{post}}$  – множественности нейтронов до и после разделения;  $\bar{E}_n$  обозначает среднюю энергию нейтронов после разделения в системе центра масс осколка;  $\sigma_{\text{FF}}^2(v_{\text{post}})$  – дисперсия множественности нейтронов после разделения. Величины ТКЕ были получены в данной работе. Множественности и средние энергии нейтронов деления были оценены путём интерполяции экспериментальных данных для деления  $^{232}\text{Th}$  и  $^{238}\text{U}$  протонами при энергиях 27 и 63 МэВ [20]. Величины  $\sigma_{\text{FF}}^2(v_{\text{post}})$ , а также второй член в уравнении (9) были вычислены для реакции  $^{238}\text{U}(n, f)$  в работе [5]. Эти же величины были использованы нами в случае реакции  $^{232}\text{Th}(n, f)$ . Дисперсия масс, возникающая из-за разброса переданного делющему ядру линейного момента (LMT), была определена по уравнению (5) и экспериментальным данным по дисперсии переданного линейного момента для деления  $^{238}\text{U}$  протонами [21].

Приборную дисперсию масс для симметричного массового разделения вычисляли как:

$$\sigma_{\text{INST}}^2 = 0,73 \frac{(A_{\text{CN}} - v_{\text{pre}})^2}{2\bar{E}_K} + \sigma_{\text{T}}^2. \quad (11)$$

Здесь  $0,73 [\text{МэВ}^2]$  – дисперсия энергии, связанная с разрешением детектора осколков, и  $\sigma_{\text{T}}^2$  – дисперсия масс, вызываемая разбросом потерь энергии в слое делящейся мишени и подложке. Измеренные зависимости ТКЕ от массы осколка (неисправленные на массовое разрешение) и потери энергии осколками в собственном слое и подложке [13] использовали в моделировании по методу Монте-Карло процесса вылета осколков деления из мишени конечной толщины на подложке для оценки величины  $\sigma_{\text{T}}^2$ . Составляющие полного массового разрешения приведены в табл. 1.

Таблица 1. Компоненты массового разрешения

Энергия нейтронов, МэВ	$\sigma_{\text{FF}}^2$	$\sigma_{\text{CN}}^2$	$\sigma_{\text{LMT}}^2$	$\sigma_{\text{DET}}^2$	$\sigma_{\text{TAG}}^2$	$\sigma_{\text{TOT}}^2$	FWHM
32,8	2,2	3,4	5,2	0,73	2,9	14,4	8,9
45,3	2,1	5,0	7,3	0,72	2,9	18,1	10,0
59,9	2,1	6,8	9,7	0,72	2,9	22,2	11,1

Используя оценённое массовое разрешение, мы получили окончательные массовые распределения с помощью итерационной процедуры, реализованной в коде GRAVELW [22]. Примеры исправленных на массовое разрешение распределений приведены на рис. 10.

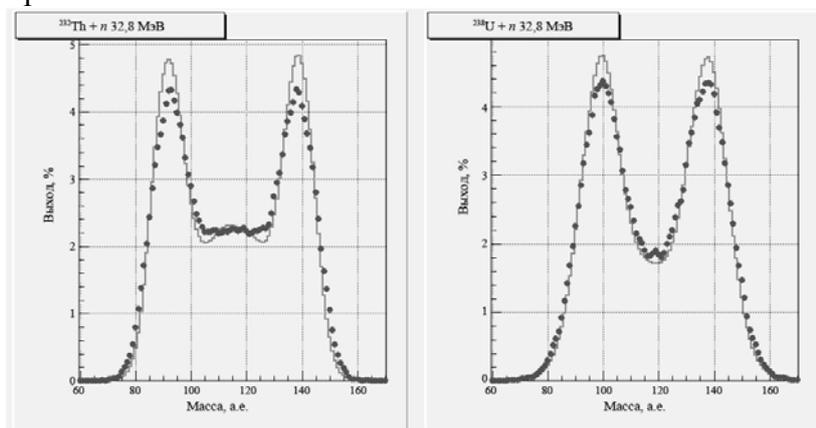


Рис. 10. Массовые распределения до испускания нейтронов деления, неисправленные (точки) и исправленные (линии) на массовое разрешение.

### Результаты измерения

Полученные в результате измерения энергетические и массовые распределения осколков деления ядер  $^{232}\text{Th}$  и  $^{238}\text{U}$  нейтронами с энергией 32,8, 45,3 и 59,9 МэВ, представлены на рис. 11–14.

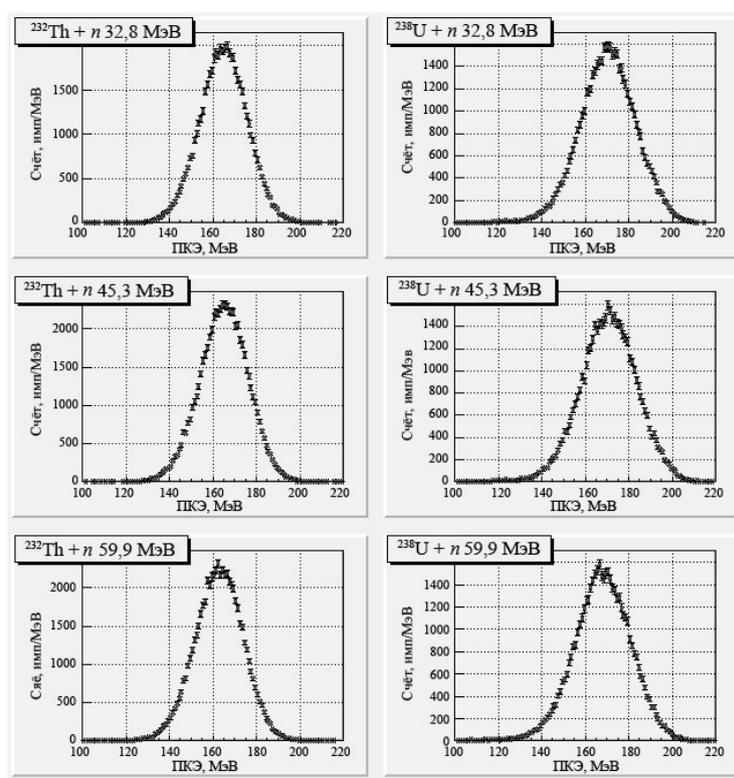


Рис. 11. Распределения полной кинетической энергии, измеренные при делении  $^{232}\text{Th}$  (слева) и  $^{238}\text{U}$  (справа) нейтронами с энергией 32,8, 45,3 и 59,9 МэВ.

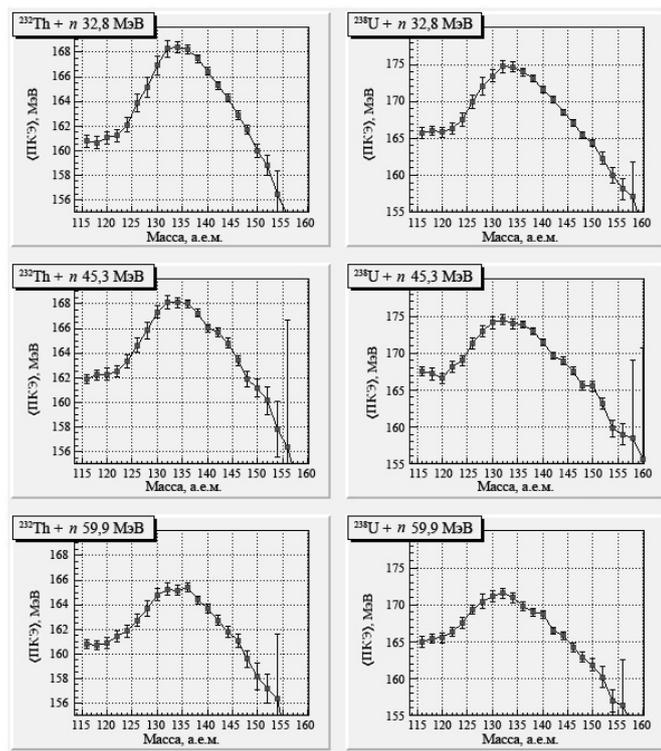


Рис. 12. Средняя полная кинетическая энергия в зависимости от массы тяжёлого осколка при делении  $^{232}\text{Th}$  (слева) и  $^{238}\text{U}$  (справа) нейтронами с энергией 32,8, 45,3 и 59,9 МэВ.

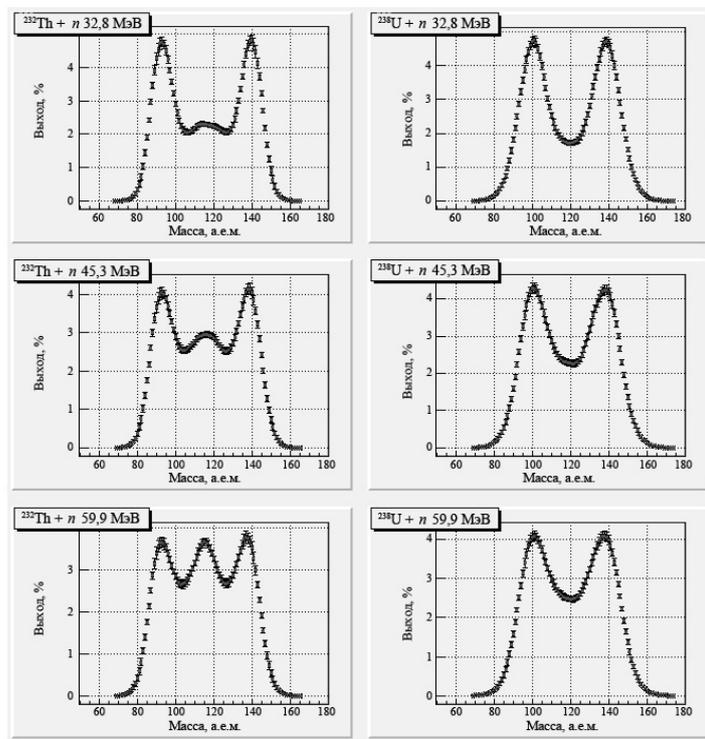


Рис. 13. Массовые распределения до испускания нейтронов деления, измеренные при делении  $^{232}\text{Th}$  (слева) и  $^{238}\text{U}$  (справа) нейтронами с энергией 32,8, 45,3 и 59,9 МэВ.

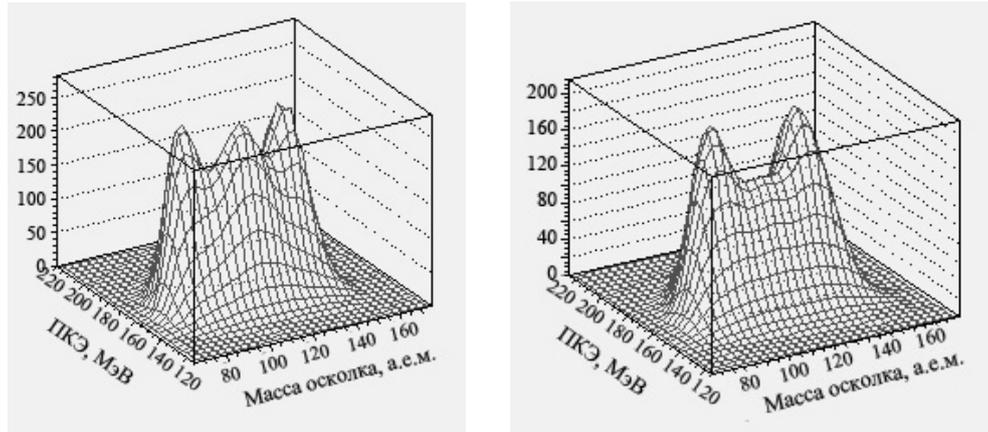


Рис. 14. Трёхмерные распределения масса осколка–полная кинетическая энергия – результаты фитирования экспериментальных данных, полученных при делении  $^{232}\text{Th}$  (слева) и  $^{238}\text{U}$  (справа) нейтронами с энергией 59,9 МэВ.

На рис. 15 данные настоящей работы сравниваются с существующими данными по выходам масс при делении ядер  $^{238}\text{U}$  под действием нейтронов и протонов сравнимой энергии. Данные по выходам масс осколков деления ядер  $^{238}\text{U}$  нейтронами при сравнимой энергии хорошо согласуются с данными Цоллера [5]. Небольшие отличия при энергии нейтронов 45,3 и 59,9 МэВ можно объяснить некоторым отличием в средней энергии падающих нейтронов для сравниваемых распределений. Данные Рубчени и др. [23] в случае деления под действием протонов сравнимой энергии существенно отличаются от наших данных в области выходов симметричного деления, но такого эффекта можно было ожидать с учётом различия параметра делимости ( $Z^2/A^{2/3}$ ) при делении одного и того же ядра-мишени протонами и нейтронами.

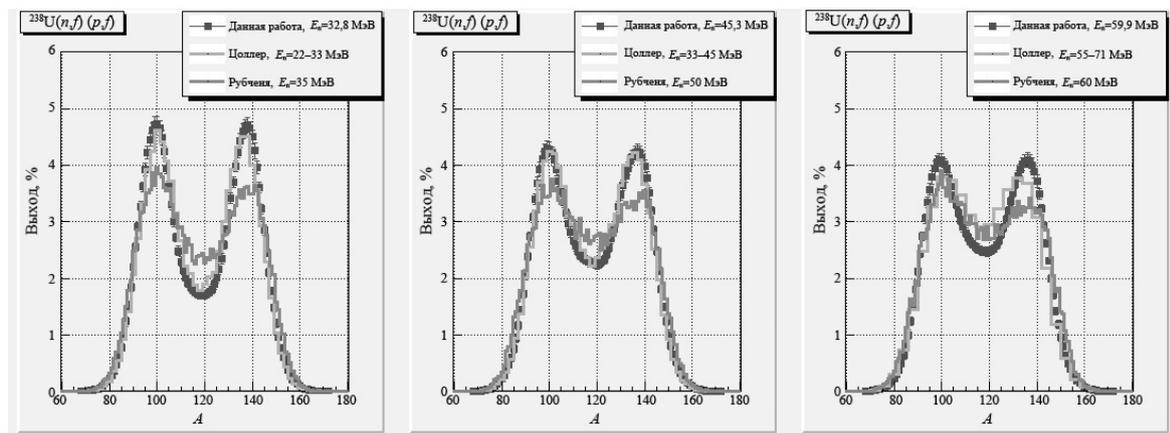


Рис. 15. Данные настоящей работы в сравнении с существующими данными по выходам масс при делении ядра  $^{238}\text{U}$  под действием нейтронов и протонов сравнимой энергии [5, 23].

Результаты данной работы будут опубликованы в журнале Physical Review C в 2011 году, после чего данные по выходам осколков деления  $^{232}\text{Th}$  и  $^{238}\text{U}$  нейтронами с энергией 32,8, 45,3 и 59,9 МэВ будут помещены в базу экспериментальных данных EXFOR для дальнейшего использования.

### Литература

1. Koning A., Fukahori T. Intermediate energy data / Report NEA / WPEC-13, ECN-RX-98-014.
2. Seltborg P., Jacqmin R. Spallation Neutron Source Effects in a Sub-Critical System // Proc. Accelerator Application 2001 and ADTTA 2001. Reno, Nevada (USA): ANS.
3. Proc. Conf. on Nuclear Data for Science and Technology: Ed. K. Shibata. Tsukuba, Japan. October 7–12, 2001, // J. Nucl. Sci. Technol., 2002. Suppl. 2. Vols. 1, 2.
4. Bhatnagar V. P., Hugon M. Nuclear Data for Waste Transmutation in the EURATOM RTD Fifth Framework Programme // J. Nucl. Sci. Technol. Suppl. 2. 2002. Vol. 2. P. 1244.
5. Zöllner C. M. Untersuchung der neutroneninduzierten Spaltung von  $^{238}\text{U}$  im Energiebereich von 1 MeV bis 500 MeV: Ph.D. Thesis. TH Darmstadt, 1995.
6. Bol A., Leleux P., Lipnik P. et al. A Novel Design for a Fast Intense Neutron Beam // Nucl. Instr. Meth. 1983. Vol. 214. P. 169.
7. Dupont C., Leleux P., Lipnik P. et al. Study of a Collimated Neutron Beam // Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. 1987. Vol. A256. P. 197.
8. Schuhmacher H., Brede H. J., Dangendorf V. et al. Quasi-Monoenergetic Neutron Beams with Energies from 25 to 170 MeV // Nucl. Instr. Meth. 1999. Vol. A421. P. 284.
9. Ryzhov I. V., Tutin G. A., Mitryukhin A. G. et al. Measurements of Neutron-Induced Fission Cross-Sections of  $^{205}\text{Tl}$ ,  $^{204,206,207,208}\text{Pb}$  and  $^{209}\text{Bi}$  with a Multi-Section Frisch-Gridded Ionization Chamber // Nucl. Instr. Meth. 2006. Vol. A562. P. 439.
10. Bunemann O., Cranshaw T. E., Harvey J. A. Design of Grid Ionization Chambers // Can. J. Res. 1949. Vol. 27, Sec. A. P. 191.
11. Hambsch F.-J., Knitter H.-H., Budtz-Jørgensen C., Theobald J. P. Fission Mode Fluctuations in the Resonances of  $^{235}\text{U}(n,f)$  // Nucl. Phys. 1989. Vol. A491. P. 56.
12. Budtz-Jørgensen C., Knitter H.-H., Straede Ch. et al. A Twin Ionization Chamber for Fission Fragment Detection // Nucl. Instr. Meth. 1987. Vol. A258. P. 209.
13. Ziegler J. F., Biersack J. P., Littmark U. The Stopping and Range of Ions in Solids. New York: Pergamon. 1985.
14. Hambsch F.-J., Van Aarle J., Vogt R. Is There a Pulse Height Defect for Methane? // Nucl. Instr. Meth. 1995. Vol. A361. P. 257.
15. Prokofiev A. V., Olsson N. Fission Fragment Detection Efficiency of Thin-Film Breakdown Counters in Sandwich Geometry: Uppsala Univ. Neutron Physics Report. UU-NF 01#5 (March 2001).
16. Chadwick M., Obložinsky P., Herman M. et al. ENDF/B-VII.0: Next Generation Evaluated Nuclear Data Library for Nuclear Science and Technology // Nucl. Data Sheets. 2006. Vol. 107. P. 2931.
17. Pronyaev V., Badikov S., Carlson A. et al. // Proc. IAEA Coordinated Research Project on International Evaluation of Neutron Cross-Section Standards. STI/PUB/1291. Vienna: IAEA, 2007. P. 122.
18. Wahl A. C. Systematics of Fission-Product Yields: Los Alamos National Laboratory Report LA-13928. 2002.
19. Glendenin L. E., Unik J. P., Griffin H. C. Determination of Primary Nuclear Charge of Fission Fragments from Their Characteristic K-X-ray Emission in Spontaneous Fission of  $^{252}\text{Cf}$  // Proc. 1st IAEA Symp. on Physics and Chemistry of Fission. Salzburg, 1965. Vol. 1. P. 369.

20. Isaev S., Prieels R., Keutgen Th. et al. Proton-Induced Fission on Actinide Nuclei at Energies 27 and 63 MeV // Nucl. Phys. 2008. Vol. A809. P. 1.
21. Fatyga M., Kwiatkowski K., Karwowski H. L. et al. Linear Moment Transfer in 40–150 MeV Proton-Induced Reactions with  $^{238}\text{U}$  // Phys. Rev. 1985. Vol. C32. P. 1496.
22. Matzke M. Propagation of Uncertainties in Unfolding Procedures // Nucl. Instr. Meth. 2002. Vol. A476. P. 230.
23. Rubchenya V. A., Trzaska W. H., Vakhtin D. N. et al. Neutron and Fragment Yields in Proton-Induced Fission of  $^{238}\text{U}$  at Intermediate Energies // Nucl. Instr. Meth. 2001. Vol. A463. P. 653.

**Fragment Mass Distributions in Neutron-Induced Fission of  $^{232}\text{Th}$   
and  $^{238}\text{U}$  at 33, 45 and 60 MeV**

I. V. Ryzhov, G. A. Tutin, A. V. Saulski, N. A. Kudryashev

Pre-neutron emission fragment mass distributions have been measured for neutron-induced fission of  $^{232}\text{Th}$  and  $^{238}\text{U}$  at energies of 32.8, 45.5, and 59.9 MeV. The measurements were carried out at quasi-monoenergetic neutron beams of the Louvain-la-Neuve cyclotron facility (Belgium). The energy of neutrons was identified by time-of-flight method. A multi-section Frisch-gridded ionization chamber was used for fission fragment detection. (2E)-method was applied to fragment mass determination. The measured mass yields are compared with available experimental data for neutron- and proton-induced fission at similar energies.

## Оценка характеристик и схем распада широко применяемых радиоактивных нуклидов

В. П. Чечев

Представлено современное состояние работ по оценке характеристик и схем распада широко применяемых радионуклидов.

### Исторический обзор и постановка проблемы

Характеристики распада и излучений радиоактивных нуклидов составляют основную и самую важную часть *радионуклидных данных*. Кроме ядерных характеристик, эти данные включают различные атомные характеристики, такие как энергии связи атомных электронов, энергии и интенсивности атомных переходов и излучений, выходы флюоресценции. В более широком плане к ним можно отнести магнитные и квадрупольные моменты ядер, способы получения радионуклидов и сечения ядерных реакций, приводящих к их образованию. В этом отношении особую группу радионуклидных данных составляют сведения, относящиеся к происхождению нуклидов в природе. Для долгоживущих радионуклидов она включает данные о распространенности радионуклидов и их дочерних продуктов в метеоритах и других космических объектах и сведения о скорости образования этих радионуклидов в природном ядерном синтезе.

В статье рассмотрено состояние работ и некоторые проблемы оценки значимых характеристик распада и излучений радиоактивных нуклидов, то есть наиболее важной части радионуклидных данных, а именно – ядерных данных, относящихся к радионуклидам. Это научное направление связано с задачами ядерной спектроскопии, а также с задачами стандартизации радионуклидных данных в метрологии ионизирующих излучений.

*Оценка ядерных данных*, имеющая целью определение из совокупности опубликованных результатов измерений наиболее достоверного («лучшего» или предпочтительного) значения рассматриваемой ядерно-физической характеристики (ЯФХ), оформилась в самостоятельное направление ядерной физики на рубеже 60-х–70-х гг. XX века. Она была вызвана к жизни быстрым накоплением экспериментальной информации, относящейся к одним и тем же характеристикам. Выяснилось, что простых статистических процедур для правильного определения «лучшего» значения ЯФХ из многих, часто противоречивых, измерений оказывается недостаточно, и необходимы дополнительные исследования, включающие анализ и отбор экспериментальных данных, коррекцию их на современные значения констант, проверку внутренней согласованности характеристик в рамках имеющихся теоретических моделей, балансовых соотношений и зависимостей (рис. 1).

В большинстве случаев оценка ядерных данных имеет прикладную направленность, так как рекомендуемые наиболее достоверные значения и погрешности ЯФХ весьма существенны для различных практических применений. Однако совокупный анализ экспериментальных данных представляет и самостоятельный интерес. В частности, в задачах ядерной спектроскопии такой анализ способствует уточнению схем распада радиоактивных нуклидов и позволяет во многих случаях оценить вероятности не наблюдаемых на опыте ядерных переходов. Кроме того, так как большинство измерений в ядерной физике опосредовано, «лучшие» значения оценённых вспомогательных характеристик позволяют дать в качестве результата измерения более надёжное значение исследуемой ЯФХ.



Рис. 1. На совещании специалистов по оценке ядерных данных в Санкт-Петербурге, июнь 2007 года. Слева направо: D. De Frenne (Belgium), J. K. Tuli (BNL), В. П. Чечев (РИ), А. L. Nichols (IAEA), B. Singh (Canada), P. Oblozinsky (BNL).

Оценка ядерных данных возникла из потребностей практики первоначально как оценка *нейтронных* данных [1, 2]. Первые оценки *ненейтронных* данных, относящиеся к характеристикам распада и излучений радиоактивных нуклидов, были опубликованы в середине шестидесятых годов прошлого века [3–6]. У нас в стране это были работы Б. С. Желепова с коллегами [5, 6]. За рубежом в качестве первого наиболее полного сборника оценённых значений ЯФХ можно указать работу Мартина и Бличерт-Тофт [7], которая не потеряла своего значения и в наше время.

Как известно, в дальнейшем оценка ядерных распадных данных развивалась по двум взаимно дополняющим направлениям. Одно из них связано с развитием широкого международного сотрудничества, результатом которого являются файл Evaluated Nuclear Structure Data File (ENSDF) [8] и связанные с ним периодические издания Nuclear Data Sheets [9] («вертикальные» оценки по массовым цепочкам ядер для заданных массовых чисел  $A$ ). Второе – с выборочными детальными оценками ЯФХ более узкого круга радиоактивных ядер, имеющих практическое применение («горизонтальные» оценки).

Автор статьи является одним из инициаторов создания и развития указанного выше независимого «практического» направления работ по оценке характеристик распада широко применяемых радионуклидов [10, 11].

Оценки первого типа (по массовым цепочкам ядер) имеют целью упорядочение, систематизацию и компьютеризацию огромного массива данных по структуре

всех известных атомных ядер и ядерным реакциям. Они позволяют определить наиболее достоверные на данном этапе эксперимента схемы возбуждённых энергетических уровней ядер и схемы распада радионуклидов. Той же цели служат издававшиеся в нашей стране в 1980-е годы выпуски серии «Свойства атомных ядер», которые представляют собой расширенную модификацию «Схем распада радиоактивных ядер» [5, 6]. Эти выпуски (см., например, [12]) содержат обширную ядерно-спектроскопическую информацию по изобарным ядрам с заданным массовым числом и рекомендованные авторами значения ЯФХ.

Оценки второго типа (выборочные, «горизонтальные») дополняют оценки по массовым цепочкам и устраняют их недостатки применительно к практическому использованию данных. К недостаткам файла ENSDF можно отнести неодинаковую достоверность данных для радионуклидов, имеющих разные массовые числа, недостаточную тщательность анализа погрешностей, отсутствие табулированных оценённых данных по атомным излучениям, сложность формы представления информации и др.

«Горизонтальные» оценки могут быть основаны на файле ENSDF с добавлением новой информации или дополнительных процедур обработки данных. Наиболее известными публикациями такого рода (с 1985 г.) являются сборники оценённых данных [13–15]. В то же время недостатки ENSDF и потребности в детальном качественном анализе и обработке наиболее важных экспериментальных данных с обоснованием погрешностей рекомендуемых значений характеристик привели к появлению ряда независимых *выборочных* оценок для радионуклидов практического назначения. Примерами таких оценок являются публикации [16–22]. Из них обоснование полученных оценённых значений ЯФХ содержится только в работах [16–18] и наиболее детальное – в работе автора с коллегами [16].

Возникает, таким образом, проблема согласования оценок для одних и тех же характеристик, то есть необходимость получения оценённых значений ЯФХ широко применяемых радионуклидов на основе разработки высококачественных процедур оценки, согласованных на уровне международной кооперации специалистов в области ядерной спектроскопии и метрологии.

### **Международная кооперация Decay Data Evaluation Project (DDEP)**

Инициатором создания этой неформальной кооперации [23] является известный американский специалист в области ядерной метрологии и гамма-спектрометрии Ричард Хелмер. Кооперация берёт своё начало с 1993 г., когда о совместной работе с Р. Хелмером договорились представители физико-технического института Германии (РТВ) и Национальной лаборатории Франции им. Анри Беккереля (LNHB). Когда в 1996 г. они все приехали в г. Пушкин (Санкт-Петербург) на международную метрологическую конференцию, организованную ВНИИМ, и автор этой статьи сделал там доклад о своей процедуре оценки, в кооперации появился и российский участник.

В настоящее время кооперация DDEP насчитывает 10 основных участников из 8 стран и МАГАТЭ, ответственных за оценки данных, а также ряд помощников (соавторов оценок). В число стран-участниц DDEP входят Великобритания, Индия, Испания, Китай, Россия, Румыния, США и Франция.

Целью кооперации является разработка рекомендуемых значений характеристик и схем распада примерно 300 радионуклидов, представляющих особый интерес для метрологии или практических приложений, таких как ядерная медицина, мони-

торинг, реакторные циклы деления, реакторная защита, переработка радиоактивных отходов и т. д.

Члены кооперации договорились об использовании единых подходов к оценке данных, о разработке совместных компьютерных программ, об использовании согласованных статистических процедур и вспомогательных приложений (коэффициентов внутренней конверсии, калибровочных стандартов, современных таблиц атомных характеристик и других опубликованных материалов). Для облегчения работы оценщиков и представления результатов оценки во Франции, в лаборатории LNHB, была разработана база данных *Saisinuc* с поддержкой компьютерных программ для оценки и приложениями. Аналог этой базы данных для пользователей известен как *Nucléide*. Кроме того, была создана программа для перевода результатов оценок DDEP в формат файла ENSDF.

Оценённые данные DDEP представлены на сайте лаборатории LNHB [24] и опубликованы в пяти томах монографии, изданной Международным бюро мер и весов (BIPM) [25–29]. Список оценённых значений характеристик распада и излучений радионуклидов включает период полураспада радионуклида, энергии и вероятности ядерных переходов, энергии и абсолютные вероятности эмиссии компонентов  $\alpha$ -,  $\beta$ -,  $\gamma$ - и характеристического рентгеновского излучений, сопровождающих распад, а также коэффициенты внутренней конверсии, мультипольности гамма-переходов и некоторые другие специфические ядерные характеристики.

Первое совещание рабочей группы DDEP состоялось в Париже в 1995 г.. В дальнейшем такие совещания проводились в рамках секционных заседаний международной конференции по метрологии радионуклидов ICRM, а с 2009 г. они приобрели форму отдельных семинаров (workshop) с одновременным обучением молодых участников DDEP. Последний по времени такой семинар состоялся в Мадриде в испанском метрологическом институте CIEMAT [30] (рис. 2).



Рис. 2. Третий международный семинар по оценке характеристик широко применяемых радионуклидов (DDEP-2010). Мадрид, CIEMAT, 9–11 июня 2010 г.

### Методы получения оценённых значений ядерно-физических характеристик радиоактивных нуклидов

Ниже представлена методика оценки значений ЯФХ радионуклидов, разработанная автором этой статьи и утверждённая Росстандартом в качестве ГСССД-МО 130-2007. Она содержит ряд положений, соответствующих правилам и процедурам, принятым кооперацией DDEP.

Методика предполагает последовательное проведение оценки в несколько стадий [31, 32]:

- 1) сбор экспериментальной информации,
- 2) анализ экспериментальных работ,
- 3) коррекция и отбор опубликованных результатов измерений,
- 4) статистическая обработка данных с возможным продолжением отбора данных и регулировкой погрешностей результатов измерений,
- 5) определение оценённого значения и его погрешности,
- 6) проверка внутренней согласованности оценённых значений ЯФХ в рамках оптимальной (или строго установленной) схемы распада радионуклида,
- 7) окончательный выбор рекомендуемых значений ЯФХ.

#### *А) Анализ, коррекция, отбор данных*

На начальной стадии оценки, когда выполняется анализ собранного экспериментального материала, оценщик интересуется не степенью согласованности опубликованных экспериментальных данных, а техникой измерений и методами, использованными для определения конечных результатов измерений и их погрешностей. На этой стадии оценки принимают во внимание все результаты измерений рассматриваемой характеристики, опубликованные в журналах, книгах, сборниках ядерных данных, отчетах лабораторий. Назовем этот первоначальный набор данных набором «0».

В процессе анализа экспериментальных данных некоторые из них могут быть исключены из набора и последующей статистической обработки. Это относится прежде всего к результатам измерений без заявленных погрешностей и к данным, которые сами авторы в более поздних своих работах относят к разряду сомнительных или предварительных. В некоторых случаях на этой стадии, если имеется хорошо согласующаяся группа данных, полученных с высокой точностью в разных лабораториях в последние 15 лет, из оценки могут быть исключены более грубые ранние результаты измерений.

Кроме того, данные могут быть исключены или скорректированы, если в более поздние годы опубликованы результаты их ревизии или появились чёткие указания на наличие в них больших неучтённых компонентов систематической погрешности. Изменение значений фундаментальных или вспомогательных констант, использованных автором экспериментальной работы для определения ее результата, также служит основанием для коррекции результата.

Перечисленные выше основания для коррекции и исключения данных исчерпывают стадию отбора результатов измерений, связанную с анализом экспериментальных работ. Никакие другие возможные недостатки в выборе и применении измерительной техники или в способах определения конечного (опубликованного) результата не являются основанием для его изменения или исключения.

Набор данных, образованный на этом этапе отбора из набора «0», назовём набором «1».

Таким образом, в вычислительную фазу методики оценки с применением статистических процедур вступает набор данных «1», состоящий из результатов измерений и погрешностей в том виде, как они даны авторами в опубликованных статьях, с учетом возможной коррекции на начальной стадии оценки. При этом предполагается, что оценщик извлекает из опубликованной статьи информацию о погрешностях в форме полных стандартных отклонений результатов измерений  $\Delta a_i$ , то есть суммарных погрешностей на уровне  $1\sigma$  (доверительная вероятность 0,68). Если в экспериментальной работе погрешность дана для другой доверительной вероятности, значение погрешности должно быть пересчитано к величине  $1\sigma$ . Эта погрешность в настоящее время принята для оценки ядерных данных. При паспортизации и применении стандартных образцов и радионуклидных источников часто используется доверительная вероятность  $P = 0,95$  ( $2\sigma$ ). В этом случае погрешности оценённых значений ЯФХ следует увеличить вдвое.

$$\sigma_{i \text{ stat}} = [\sum (a_i - a_{ik})^2 / m(m-1)]^{1/2}.$$

Обычно автор  $i$ -го экспериментального результата  $a_i$  вычисляет комбинированную стандартную погрешность как

$$\Delta a_i = \sigma_i = (\sigma_{i \text{ stat}}^2 + \sigma_{i \text{ syst}}^2)^{1/2}, \quad (1)$$

где  $\sigma_{i \text{ stat}}$  – погрешность, определяемая из статистического анализа серии наблюдений,  $\sigma_{i \text{ stat}} = [\sum (a_i - a_{ik})^2 / m(m-1)]^{1/2}$ ;  $a_i = (\sum a_k) / m$ ,  $k=1, 2, \dots, m$ ;  $m$  – число наблюдений в серии) и  $\sigma_{i \text{ syst}} = [\sum \sigma_{ij \text{ syst}}^2]^{1/2}$  – систематическая погрешность, определяемая средствами, отличными от статистического анализа серии наблюдений. Если автор экспериментальной работы комбинирует иначе  $\sigma_{i \text{ stat}}$  и  $\sigma_{i \text{ syst}}$ , из опубликованной статьи должна быть извлечена информация отдельно о  $\sigma_{i \text{ stat}}$  и  $\sigma_{i \text{ syst}}$  и для определения суммарной  $\sigma_i$  использовано выражение (1). Если раздельную информацию извлечь не удаётся, в качестве полной погрешности на уровне доверительной вероятности  $P = 0,68$  используется значение ( $\Delta a_i$ ), сообщаемое в статье. В тех случаях, когда автор экспериментальной работы указывает другую доверительную вероятность для своего результата измерения –  $P = 0,95$  или  $P = 0,99$ , цитируемое ( $\Delta a_i$ ) приводится к  $\sigma_i$  соответственно как  $1/2(\Delta a_i)$  или  $1/3(\Delta a_i)$ .

Важной проблемой при оценке данных распада конкретного радионуклида является возможная коррелированность результатов измерений, связанная с опосредованностью измерений и/или использованием одного и того же метода измерений. В идеальном случае это означает, что результаты измерений ЯФХ радионуклидов должны сопровождаться дополнительно к стандартным погрешностям ковариационными квадратными матрицами, в которых по диагонали располагаются обычные дисперсии. Однако в настоящее время в литературе для радионуклидных данных редко можно найти информацию о ковариациях, и оценщику практически невозможно детально учесть корреляционные свойства подавляющего большинства оцениваемых величин. Поэтому обработка данных в рассматриваемой методике не предполагает строгий математический учёт корреляций. Поправки на возможную коррелированность опубликованных результатов измерений и невыявленные компоненты систематической погрешности осуществляются посредством регулировки погрешностей с использованием ряда искусственных статистических процедур. В то же время априори в методике приняты во внимание два основных источника корреляции, связанные с измерениями, выполненными одним и тем же методом, и с измерениями, в которых используются калибровочные стандарты.

В обоих случаях, если удаётся выделить систематическую погрешность  $\delta$ , связанную с использованным методом или калибровочными стандартами, взвешивание результатов производится с учётом стандартных отклонений  $\sigma'_i = (\sigma_i^2 - \delta^2)^{1/2}$ . Если, однако, надёжно определить  $\delta$  не удаётся, используется следующее правило: *погрешность оценённого значения не должна быть меньше наименьшей погрешности  $(\Delta a_i)_{min}$ , сообщаемой в экспериментальных работах.* Это правило позволяет избежать неоправданного уменьшения погрешности оценённого значения для хорошо согласующихся данных, полученных одним методом.

Дальнейший процесс отбора входных данных и возможной регулировки их погрешностей состоит в последовательном движении от набора «1» к окончательному набору данных («3»), который используют для вычисления рекомендуемого значения. Эта стадия оценки, включающая её вычислительную фазу, реализована в компьютерной программе EV1NEW [32], которая использует несколько процедур вычисления итоговой погрешности и включает метод ограничения относительных весов величиной 0,5 (LRSW, правило максимального 50 %-ного веса [33]).

В то время как первый шаг – от первоначального набора данных «0» к набору данных «1» – состоит в возможном исключении ненадежных или ревизованных позднее результатов измерений, следующий шаг «1» → «2» связан с оценкой вкладов различных экспериментальных результатов в величину  $\chi^2$ . Значение  $\chi^2$  определяет степень согласованности данных:

$$\chi^2 = \sum (a_i - \tilde{a})^2 (\Delta a_i)^{-2} \quad (2)$$

Здесь  $\tilde{a} = \sum W_i a_i$  – среднее взвешенное набора данных  $a_i$  с погрешностями  $\Delta a_i$ ,  $W_i = (\Delta a_i)^{-2} \{ \sum [(\Delta a_i)^{-2}] \}^{-1}$  – вес  $i$ -го измерения.

На этом шаге оценщик может отвергнуть один или два статистических выброса по критерию Шовене [34] или из-за вклада в  $\chi^2$ , превышающего 80 %. При образовании набора данных «3» программа обеспечивает регулирование погрешности одного из результатов благодаря применению упомянутого выше метода LRSW (правила «50 %-ного веса»).

*Б) Определение наиболее достоверного значения из набора экспериментальных данных с применением статистических процедур*

Техника определения наиболее достоверного значения из набора экспериментальных данных с применением статистических процедур состоит в следующем.

Оценённое значение ( $A$ ) представляет собой среднее взвешенное  $A = \tilde{a} = \sum W_i a_i$ , вычисленное с использованием в качестве весов обратных квадратов полных погрешностей  $W_i = (\Delta a_i)^{-2} \{ \sum [(\Delta a_i)^{-2}] \}^{-1}$ .

Погрешность оценённого значения  $\Delta A$  вычисляется различными способами в зависимости от величины  $\chi^2$ , которая сравнивается с её табличным значением на уровне значимости 0,05 ( $(\chi^2)_{n-1}^{0,05}$ ,  $n$  – число измерений):

- (I)  $\chi^2 \leq (n - 1) \rightarrow \Delta A = \sigma = [\sum (\Delta a_i)^{-2}]^{-1/2}$  – внутренняя (весовая) погрешность среднего взвешенного;
- (II)  $(n - 1) < \chi^2 \leq (\chi^2)_{n-1}^{0,05} \rightarrow \Delta A = S = \sigma [\chi^2 / (n - 1)]^{1/2}$  – внешняя погрешность среднего взвешенного (погрешность разброса);
- (III)  $(\chi^2)_{n-1}^{0,05} < \chi^2 \leq 10(\chi^2)_{n-1}^{0,05} \rightarrow \Delta A = t_{n-1}^{0,68} S$ , где  $t_{n-1}^{0,68}$  – коэффициент Стьюдента для  $(n-1)$  степеней свободы и доверительной вероятности  $P = 0,68$  (способ  $tS$ ), или

$\Delta A = \sigma[\chi^2/(n-2)]^{1/2}$  – погрешность по модифицированной процедуре Байеса МВАУС [35, 36];

(IV)  $\chi^2 > 10(\chi^2)_{n-1}^{0,05} \rightarrow \Delta A = \sigma[\chi^2/(n-3)]^{1/2}$  – погрешность на основе обычной процедуры Байеса (ВАУС) [35] или, по выбору оценщика, на основе иной процедуры обработки расходящихся данных.

Тип (I) соответствует согласующимся данным с  $\chi^2/(n-1) \leq 1$ . Для таких наборов данных правомерность использования внутренней погрешности среднего взвешенного не вызывает сомнения. Следующий тип (II) отвечает уже слегка расходящимся наборам данных, и для них логичен выбор большей величины погрешности оценённого значения ( $S$ ). Типы (III) и (IV) соответствуют расходящимся данным, и для них наравне с использованием  $t_{n-1}^{0,68} S$  (или примерно равной погрешности МВАУС) возможен выбор одной из статистических процедур обработки расходящихся данных, предложенных в работе [36].

Обоснование выбора процедуры  $tS$  (или МВАУС) базируется на результатах вычислительного эксперимента английских физиков [36] и сравнении величины итоговых погрешностей при использовании  $tS$  и МВАУС.

Статистика анализа наборов экспериментальных значений показывает, что набор сильно расходящихся данных (тип IV) встречается в 8 % случаев. Для таких наборов трудно рекомендовать определённую процедуру, и её выбор отдаётся на усмотрение оценщика, анализирующего другие конкретные свойства набора данных, кроме степени расходимости.

Указанный подход даёт возможность путём увеличения итоговой погрешности оценённого значения плавно учитывать степень расхождения экспериментальных результатов. Он позволяет также для многих расходящихся данных избежать использования (в качестве оценки) среднего арифметического, либо субъективного увеличения оценщиком погрешностей отдельных измерений.

К ядерно-физическим характеристикам, оценённые значения которых получают методами непосредственного усреднения совокупности опубликованных результатов измерений, относятся:

- период полураспада радионуклида (во всех случаях),
- относительная интенсивность излучений, сопровождающих распад радионуклида (в подавляющем большинстве случаев),
- вероятности наиболее интенсивных ядерных переходов (в большинстве случаев),
- абсолютная вероятность эмиссии самого интенсивного гамма-излучения (в большинстве случаев),
- энергия гамма-излучения (в большинстве случаев).

Для остальных ЯФХ также используется метод усреднения имеющихся экспериментальных данных, но в зависимости от типа и количества данных могут быть использованы нестатистические (расчётные) методы получения оценённых значений.

#### **Методы контроля согласованности оценённых данных**

*A) Метод контроля согласованности данных с использованием нормировочного множителя для перехода от относительной интенсивности гамма-излучения к его абсолютной интенсивности*

Наиболее важными и проблемными для оценки данных являются *абсолютные вероятности эмиссии излучений, или абсолютные интенсивности излучений*. Их вы-

ражают обычно в долях ( $P$ ) или процентах от числа распадов ( $P$ , %). Однако на опыте экспериментатор измеряет прежде всего *относительную интенсивность* излучения ( $P'$ ). В частности, это может быть относительная интенсивность гамма-излучения  $P'_\gamma$  (обычно по отношению к наиболее интенсивной гамма-линии:  $P'_\gamma = P_\gamma / P_\gamma^{\max}$ ).

Наличие известной схемы распада позволяет вычислить *нормировочный множитель*  $N = P_\gamma / P'_\gamma$  для перехода от относительной интенсивности гамма-излучения к его абсолютной интенсивности (вероятности эмиссии). С этой целью используют простое соотношение для суммы абсолютных интенсивностей ядерных переходов, идущих в *основное состояние* дочернего нуклида, которая в общем случае должна быть равна 100 %. Под ядерными переходами здесь подразумеваются гамма-переходы и либо бета ( $\beta^\pm$ )-, либо электрозахватный (ЕС), либо альфа ( $\alpha$ )-переход – в зависимости от схемы распада. Гамма-переходы включают гамма-излучение ( $\gamma$ ) и конверсионные электроны ( $ce$ ). Вероятность эмиссии конверсионных электронов  $P_{ce} = P_\gamma \alpha_T$ , где  $\alpha_T$  – полный коэффициент внутренней конверсии (КВК) для рассматриваемого гамма-перехода. Обозначения – в соответствии с работами [23–29].

Мы имеем, таким образом, следующее балансовое соотношение (в процентах от числа распадов):

$$\sum P'_\gamma (1 + \alpha_T) = 100 - P_0 \quad (3)$$

В левой части соотношения (3) представлена сумма относительных интенсивностей всех гамма-переходов, идущих в основное состояние («0») дочернего ядра, в правой части  $P_0$  обозначает абсолютную интенсивность (в % от числа распадов)  $\beta^\pm$  (ЕС или  $\alpha$ )-перехода, идущего в основное состояние.

Отсюда  $N_{\text{calc}} = (100 - P_0) / [\sum P'_\gamma (1 + \alpha_T)]$ , % – расчётный нормировочный множитель. Сравнение его значения с оценённым *результатом непосредственных измерений* вероятности эмиссии  $P_\gamma^{\max}$  наиболее интенсивного гамма-излучения (по отношению к которому на опыте даётся относительная интенсивность всех гамма-квантов) позволяет провести проверку рекомендуемых данных для интенсивности гамма-излучения, КВК<sup>1</sup> и интенсивности  $\beta^\pm$  (ЕС или  $\alpha$ )-перехода, идущего в основное состояние. *Если такое сравнение приводит к согласию в пределах погрешностей, полученные оценённые данные можно считать надёжными.* Особенно полезен этот способ расчёта нормировочного множителя  $N$  при отсутствии  $\beta^\pm$  (ЕС или  $\alpha$ )-перехода в основное состояние.

Примеры сравнения значений нормировочного множителя, вычисленного из баланса интенсивностей переходов в основное состояние, и непосредственно измеренной вероятности эмиссии  $P_\gamma^{\max}$  даны ниже.

$$^{133}\text{Ba} [24, 25]. N = 0,621(10). P(\gamma 356 \text{ кэВ}) = 0,6205 \quad (19).$$

$$^{137}\text{Cs} [24, 27]. N = 0,8495(22). P(\gamma 662 \text{ кэВ}) = 0,852 \quad (5).$$

$$^{154}\text{Eu} [24, 26]. N = 0,349(3). P(\gamma 1274 \text{ кэВ}) = 0,348 \quad (2).$$

(Здесь и далее в скобках после приведённого числа дана погрешность ( $1\sigma$ ) в единицах последнего значащего разряда числа).

В заключение этого раздела следует отметить, что в некоторых случаях вместо основного состояния для вычисления нормировочного множителя из баланса ин-

<sup>1</sup> В настоящее время лучшими считаются значения теоретических КВК из вычислений по компьютерной программе BRICC [37].

тенсивностей может быть использован другой уровень дочернего ядра, на который и с которого идут достаточно интенсивные гамма-переходы.

**Б) Метод контроля согласованности данных путём сравнения расчётного и табулированного значений полной энергии распада**

Этот метод предложен А. Л. Никольсом [38]. Он состоит в сравнении табулированной (полной) энергии распада  $Q(M)$ , извлекаемой из таблиц атомных масс, с величиной  $Q_{\text{eff}}$ , вычисленной как сумма оценённых средних энергий на распад ( $\sum E_i P_i$ ) всех излучений, сопровождающих распад.

Полная энергия распада радионуклида ( $Q$ ) – это разность масс материнского и дочернего нуклидов, выраженная в энергетических единицах. Как известно, наиболее точные значения  $Q(M)$  представлены в таблице атомных масс группы Вапстра из Франции [39]. Сравнение с  $Q(M)$  величины  $Q_{\text{eff}} = \sum E_i P_i$ , которая включает рекомендуемые значения характеристик распада (с погрешностями), полученные в результате оценки, позволяет проверить надёжность оценённых данных. (здесь  $E_i$  и  $P_i$  – оценённые значения энергии и вероятности эмиссии различных компонентов излучений, сопровождающих распад радионуклида, – альфа-частиц, электронов или позитронов бета-распада, гамма-квантов, характеристического рентгеновского излучения, конверсионных электронов и электронов Оже).

Согласованность полученных оценённых данных (процентное отклонение) определяется величиной  $\{[Q(M) - Q_{\text{eff}}]/Q(M)\} \cdot 100$ . Процентные отклонения (с учётом погрешностей) свыше 5 % указывают на недостаточно надёжные значения характеристик распада и/или плохо определённую схему распада. Процентные отклонения меньше 5 % свидетельствуют о достаточной обоснованности рекомендуемых данных [38].

Приведённая ниже в качестве примера таблица значений  $Q(M)$  и  $Q_{\text{eff}}$  (табл. 1) показывает хорошую согласованность рекомендуемых значений характеристик распада для ряда важных актиноидов [24–27].

Таблица 1. Таблица значений  $Q(M)$  и  $Q_{\text{eff}}$

Нуклид	Год оценки	$Q(M)$ , кэВ	$Q_{\text{eff}}$ , кэВ
$^{238}\text{Np}$	2007	1291,5(4)	1292(30)
$^{239}\text{Np}$	2007	722,5(10)	716(16)
$^{238}\text{Pu}$	2004	5593,20(19)	5593(5)
$^{239}\text{Pu}$	2007	5244,51(21)	5245(8)
$^{240}\text{Pu}$	2004	5255,75(14)	5255(9)
$^{241}\text{Pu}$	2006	( $\alpha$ ) 0,125(3)	( $\alpha$ ) 0,125(10)
$^{242}\text{Pu}$	2004	4984,5(10)	4984(13)
$^{241}\text{Am}$	2004	5637,82(10)	5638(8)
$^{242}\text{Cm}$	2004	6215,56(8)	6217(6)
$^{244}\text{Cm}$	2004	5901,74(5)	5903(33)

В) *Метод контроля согласованности данных путём сравнения вычисленных и измеренных значений интенсивности KX- и LX-излучений*

Оценённые значения полных абсолютных вероятностей эмиссии KX- и LX-излучений ( $P_{XK}$ ,  $P_{XL}$ ) могут быть получены расчётным путём, с использованием других оценённых данных по формулам:

$$P_{XK} = \omega_K [\sum P_{EC} P_K + \sum P_{ceK}] \quad (4)$$

$$P_{XL} = \varpi_L [\sum P_{EC} P_L + \sum P_{ceL} + n_{KL} (\sum P_{EC} P_K + \sum P_{ceK})] \quad (5)$$

Здесь  $\omega_K$  – выход флюоресценции на K-оболочке;  $\varpi_L$  – средний выход флюоресценции на L-оболочке;  $P_{EC}$  – вероятность электронозахватного перехода (для ядер, распадающихся посредством электронного захвата);  $P_K$  и  $P_L$  – доли вероятностей K- и L-захвата;  $P_{ceK}$  и  $P_{ceL}$  – вероятности эмиссии K- и L-конверсионных электронов;  $n_{KL}$  – доля вакансий в K-оболочке, переходящих в L-оболочку.

Атомные величины  $\omega_K$ ,  $\varpi_L$ ,  $n_{KL}$  табулированы в работе [40] на основе имеющихся теоретических и экспериментальных данных. Они зависят только от атомного номера  $Z$  дочернего радионуклида. Остальные величины в формулах (4), (5) – значения характеристик распада, получаемые в результате оценки вероятностей переходов и излучений конкретного радионуклида.

Расчётные значения интенсивности KX- и LX-излучений являются результатом использования (в качестве входных параметров) многих оценённых данных, в том числе вероятностей эмиссии гамма-излучения  $P_\gamma$  и коэффициентов внутренней конверсии ( $\alpha_K$ ,  $\alpha_L$ ). Это видно из следующих соотношений:  $P_{ceK} = P_\gamma \alpha_K$ ,  $P_{ceL} = P_\gamma \alpha_L$ . Сравнение расчётных значений  $P_{XK}$ ,  $P_{XL}$  с результатами их оценки из прямых измерений позволяет, таким образом, проверить сбалансированность оценок, то есть выполнить контроль согласованности ряда рекомендуемых данных.

Примером может служить расчёт  $P_{XK}$  в оценке характеристик распада  $^{155}\text{Eu}$ . Расчётное значение  $P_{XK}(\text{calc}) = 0,235(5)$  [24, 26, 41] можно сравнить со средним взвешенным результатов пяти прямых измерений этой величины, выполненных в 1967–1994 гг.:  $P_{XK}(\text{exp}) = 0,233(2)$  [41]. Расчёт включает в качестве входных параметров оценённые значения  $P_\gamma$  и КВК для 12  $\gamma$ -переходов, а также принятое значение выхода флюоресценции  $\omega_K$ . Хорошее согласие  $P_{XK}(\text{calc})$  и  $P_{XK}(\text{exp})$  свидетельствует о сбалансированности оценок интенсивностей излучений в распаде  $^{155}\text{Eu}$  на уровне 0,5 % от числа распадов (относительная погрешность расчётного значения  $P_{XK}(\text{calc})$ ).

Ещё два примера такого сравнения даны ниже.

$$^{133}\text{Ba} [24, 25]. P_{XK}(\text{calc}) = 1,197(13). P_{XK}(\text{exp}) = 1,197(11).$$

$$^{238}\text{Pu} [24, 29]. P_{XL}(\text{calc}) = 0,106(5). P_{XL}(\text{exp}) = 0,1063(8).$$

Указанный способ проверки согласованности рекомендуемых данных особенно важен для электронозахватных радионуклидов, так как в этом случае в расчётах  $P_{XK}$ ,  $P_{XL}$  используются принятые теоретические значения вероятностей электронного захвата  $P_K$ ,  $P_L$ , табулированные в работе [42].

### Заключение

К настоящему времени в рамках кооперации DDEP оценены ядерно-физические характеристики и схемы распада 170 широко применяемых радионуклидов [24–29] (табл. 2). Считается [30], что необходимо оценить (и в необходимых случаях измерить) характеристики и схемы распада ещё по крайней мере 150 радионуклидов. Предполагается, что эта работа займёт 6–9 последующих лет.

Таблица 2. Список 170 радионуклидов, ядерно-физические характеристики которых оценены кооперацией DDEP. Указана дата последней ревизии оценки

Нуклид	Дата	Нуклид	Дата	Нуклид	Дата	Нуклид	Дата
<sup>3</sup> H	04/09/2006	<sup>88</sup> Y	18/02/2004	<sup>159</sup> Gd	04/09/2006	<sup>225</sup> Ra	17/02/2010
<sup>7</sup> Be	18/02/2004	<sup>90</sup> Y	04/01/2007	<sup>166</sup> Ho	16/06/2004	<sup>226</sup> Ra	16/02/2009
<sup>11</sup> C	08/04/2004	<sup>90m</sup> Y	10/11/2005	<sup>166m</sup> Ho	28/06/2006	<sup>226D</sup> Ra*	04/08/2008
<sup>14</sup> C	24/07/2003	<sup>95</sup> Zr	12/01/2004	<sup>170</sup> Tm	18/06/2004	<sup>228</sup> Ra	20/10/2009
<sup>13</sup> N	08/04/2004	<sup>93m</sup> Nb	18/06/2004	<sup>169</sup> Yb	01/07/2004	<sup>225</sup> Ac	26/08/2009
<sup>15</sup> O	01/06/2004	<sup>95</sup> Nb	30/07/2003	<sup>177</sup> Lu	15/06/2004	<sup>227</sup> Ac	16/02/2009
<sup>18</sup> F	28/06/2006	<sup>95m</sup> Nb	30/07/2003	<sup>186</sup> Re	02/06/2004	<sup>228</sup> Ac	22/01/2010
<sup>22</sup> Na	06/08/2009	<sup>99</sup> Mo	03/10/2006	<sup>188</sup> Re	07/11/2005	<sup>227</sup> Th	10/01/2007
<sup>24</sup> Na	18/02/2004	<sup>99</sup> Tc	04/05/2010	<sup>192</sup> Ir	10/09/2004	<sup>228</sup> Th	01/07/2004
<sup>26</sup> Al	24/07/2003	<sup>99m</sup> Tc	06/08/2004	<sup>194</sup> Ir	08/04/2004	<sup>231</sup> Th	22/01/2009
<sup>32</sup> P	08/04/2004	<sup>109</sup> Pd	22/01/2010	<sup>198</sup> Au	21/04/2004	<sup>232</sup> Th	02/02/2009
<sup>33</sup> P	08/04/2004	<sup>108</sup> Ag	04/09/2006	<sup>203</sup> Hg	27/04/2004	<sup>233</sup> Th	10/03/2010
<sup>35</sup> S	30/07/2003	<sup>108m</sup> Ag	24/01/2008	<sup>201</sup> Tl	15/06/2005	<sup>234</sup> Th	17/02/2010
<sup>36</sup> Cl	24/07/2003	<sup>110</sup> Ag	12/03/2004	<sup>204</sup> Tl	18/02/2004	<sup>233</sup> Pa	11/01/2010
<sup>41</sup> Ar	04/05/2010	<sup>110m</sup> Ag	24/03/2004	<sup>206</sup> Tl	16/02/2009	<sup>232</sup> U	16/02/2009
<sup>40</sup> K	23/06/2009	<sup>109</sup> Cd	21/04/2004	<sup>208</sup> Tl	14/06/2004	<sup>234</sup> U	04/09/2006
<sup>44</sup> Sc	27/04/2004	<sup>111</sup> In	26/04/2006	<sup>210</sup> Tl	16/02/2009	<sup>235</sup> U	22/01/2009
<sup>46</sup> Sc	09/03/2004	<sup>113</sup> Sn	22/01/2004	<sup>203</sup> Pb	20/09/2006	<sup>236</sup> U	16/02/2009
<sup>44</sup> Ti	27/04/2004	<sup>124</sup> Sb	07/01/2010	<sup>210</sup> Pb	16/02/2009	<sup>237</sup> U	07/01/2010
<sup>51</sup> Cr	18/02/2004	<sup>125</sup> Sb	13/12/2004	<sup>212</sup> Pb	01/07/2004	<sup>238</sup> U	26/04/2006
<sup>54</sup> Mn	18/02/2004	<sup>123m</sup> Te	24/03/2004	<sup>214</sup> Pb	16/02/2009	<sup>239</sup> U	29/04/2009
<sup>56</sup> Mn	11/05/2004	<sup>132</sup> Te	22/01/2010	<sup>207</sup> Bi	26/02/2010	<sup>236</sup> Np	06/08/2009
<sup>55</sup> Fe	20/09/2006	<sup>123</sup> I	06/08/2004	<sup>210</sup> Bi	16/02/2009	<sup>236m</sup> Np	20/09/2006
<sup>59</sup> Fe	08/04/2004	<sup>125</sup> I	18/06/2004	<sup>211</sup> Bi	10/03/2010	<sup>237</sup> Np	07/01/2010
<sup>56</sup> Co	21/03/2005	<sup>129</sup> I	18/06/2004	<sup>212</sup> Bi	01/07/2004	<sup>238</sup> Np	16/02/2009
<sup>57</sup> Co	08/04/2004	<sup>131</sup> I	06/08/2004	<sup>214</sup> Bi	16/02/2009	<sup>239</sup> Np	16/02/2009
<sup>58</sup> Co	08/04/2004	<sup>133</sup> I	16/02/2009	<sup>209</sup> Po	26/02/2010	<sup>238</sup> Pu	22/01/2010
<sup>60</sup> Co	10/03/2010	<sup>131m</sup> Xe	02/03/2004	<sup>210</sup> Po	16/02/2009	<sup>239</sup> Pu	16/02/2009
<sup>57</sup> Ni	01/06/2004	<sup>133</sup> Xe	16/02/2009	<sup>211</sup> Po	03/12/2009	<sup>240</sup> Pu	28/09/2009
<sup>59</sup> Ni	04/05/2010	<sup>133m</sup> Xe	16/02/2009	<sup>212</sup> Po	10/06/2004	<sup>241</sup> Pu	06/08/2009
<sup>63</sup> Ni	13/12/2005	<sup>135m</sup> Xe	16/02/2009	<sup>213</sup> Po	16/02/2009	<sup>242</sup> Pu	26/02/2010
<sup>64</sup> Cu	18/02/2004	<sup>137</sup> Cs	14/01/2008	<sup>214</sup> Po	16/02/2009	<sup>241</sup> Am	20/08/2010
<sup>65</sup> Zn	20/09/2006	<sup>133</sup> Ba	08/11/2007	<sup>216</sup> Po	04/06/2004	<sup>242</sup> Am	03/12/2009
<sup>66</sup> Ga	26/05/2004	<sup>137m</sup> Ba	24/07/2003	<sup>218</sup> Po	16/02/2009	<sup>242m</sup> Am	27/09/2010
<sup>67</sup> Ga	02/08/2007	<sup>140</sup> Ba	19/06/2008	<sup>217</sup> At	06/08/2009	<sup>243</sup> Am	26/02/2010
<sup>68</sup> Ga	04/05/2010	<sup>140</sup> La	19/06/2008	<sup>218</sup> At	16/02/2009	<sup>244</sup> Am	03/12/2009
<sup>68</sup> Ge	04/05/2010	<sup>139</sup> Ce	16/02/2009	<sup>217</sup> Rn	16/02/2009	<sup>244m</sup> Am	22/01/2010
<sup>75</sup> Se	03/12/2009	<sup>141</sup> Ce	15/06/2004	<sup>218</sup> Rn	16/02/2009	<sup>242</sup> Cm	03/12/2009
<sup>79</sup> Se	04/01/2007	<sup>153</sup> Sm	20/09/2006	<sup>220</sup> Rn	04/06/2004	<sup>244</sup> Cm	20/08/2010
<sup>85</sup> Kr	06/04/2006	<sup>152</sup> Eu	27/04/2004	<sup>222</sup> Rn	16/02/2009	<sup>246</sup> Cm	16/02/2009
<sup>85</sup> Sr	01/07/2004	<sup>154</sup> Eu	24/02/2005	<sup>221</sup> Fr	16/02/2009	<sup>252</sup> Cf	16/02/2009
<sup>89</sup> Sr	16/06/2004	<sup>155</sup> Eu	01/07/2004	<sup>223</sup> Fr	04/05/2010		
<sup>90</sup> Sr	10/11/2005	<sup>153</sup> Gd	02/06/2004	<sup>224</sup> Ra	04/06/2004		

\* <sup>226D</sup>Ra – обозначает <sup>226</sup>Ra + дочерние продукты.

**Список литературы**

1. Goldberg M. D., Harvey J. A., Hughes D. J., Pilcher V. E. Neutron Cross Sections // BNL 250. Brookhaven National Laboratory, 1954.
2. Hughes D. J., Harvey J. A. Neutron Cross Sections // BNL 325. Brookhaven National Laboratory, 1955.
3. Ewbank W. B. Nuclear Data Sheets for  $A = 187$ . // Nucl. Data Sheets. 1966. Vol. B1. P. 23–52.
4. Wapstra A. N., Gove N.B.  $A$ -Chains for Heavy Nuclei. Part I // Nucl. Data Sheets. 1966. Vol. B1. P. 1–124.
5. Желепов Б. С., Пекер Л. К. Схемы распада радиоактивных ядер.  $A < 100$  // М.; Л.: Наука, 1966.
6. Желепов Б. С., Пекер Л. К., Сергеев В. О. Схемы распада радиоактивных ядер.  $A > 100$  // М.; Л.: Изд-во АН СССР, 1963. 1058 с.
7. Martin M. J., Blichert-Toft P. H. Radioactive Atoms. Auger-Electron,  $\alpha$ -,  $\beta$ -,  $\gamma$ -Ray Data // Nucl. Data Tables. 1970. Vol. A8. P. 1–198.
8. Evaluated Nuclear Structure Data File (ENSDF) Database Version of October 21, 2010. New York: Brookhaven National Laboratory. URL: <http://www.nndc.bnl.gov/>
9. Nuclear Data Sheets. New York; London: Academic Press, 1965–2010.
10. Хольнов Ю. В., Чечев В. П. Характеристики излучений радиоактивных нуклидов, применяемых в народном хозяйстве (оцененные данные) // Тез. докл. 27-го совещания по ядерной спектроскопии и структуре атомного ядра (Ташкент, 22–25 апреля 1977 г.). Л.: Наука, ЛО, 1977. С. 529.
11. Хольнов Ю. В., Чечев В. П. Характеристики излучений радиоактивных нуклидов, применяемых в народном хозяйстве (оцененные данные). // Прикладная ядерная спектроскопия. М.: Атомиздат, 1977. Вып. 7. С. 20–36.
12. Желепов Б. С., Жуковский Н. Н. Изобарные ядра с массовым числом  $A = 124$ . Свойства атомных ядер. / Л.: Наука, ЛО, 1985. Вып. 25. 228 с.
13. Browne E., Firestone N. R. B. Table of Radioactive Isotopes. // Ed. V. S. Shirley. New York: Wiley, 1986.
14. Debertin K., Helmer R. G. Gamma- and X-ray Spectrometry with Semiconductor Detectors. Amsterdam: North-Holland, 1988.
15. Schützig U., Schrader H. Halbwertszeiten und Photonen-Emissionswahrscheinlichkeiten von häufig verwendeten Radionukliden, 4. Erweiterte Auflage:/ Report PTB-Ra-16/4. July 1993.
16. Чечев В. П., Кузьменко Н. К., Сергеев В. О., Артамонова К. П. Оцененные значения ядерно-физических характеристик трансурановых радионуклидов. М.: Энергоатомиздат, 1988. 248 с.
17. Decay Data of the Transuranium Nuclides. Tech. Rep. Ser. N 261, Vienna, IAEA, 1986.
18. X-Ray and Gamma-Ray Standards for Detector Calibration: Report IAEA-TECDOC-619. Vienna, September 1991.
19. Чечев В. П., Чукреев Ф. Е. Характеристики распада и излучений долгоживущих радионуклидов, применяемых в народном хозяйстве и научных исследованиях (оцененные данные). М.: Ин-т атомной энергии им. И. В. Курчатова, 1990; Report INDC (ССР)-338/L. Vienna: IAEA, October 1991.
20. Lagoutine F., Coursol N., Legrand J. Table de Radionucleides. ISBN-2-7272-0078-1. France: LMRI, 1982–1987.
21. Nichols A. L. Activation Product Decay Data // UKPADD-2 Data Files. Report AEA-RS-5449. March 1993.
22. Rudstam G. Absolute Gamma Branching Ratios for Fission Products in the Mass Range 74-165: Report INDC(SWD)-024. Vienna: IAEA, November 1993.

23. Helmer R. G., Browne E., Be M.-M. International Decay Data Evaluation Project // J. Nucl. Sci. Technol. 2002. Suppl. 2. Vol. 1. P. 455–458.
24. Recommended Data by the Decay Data Evaluation Project Working Group. URL: [http://www.nucleide.org/DDEP\\_WG/DDEPdata.htm](http://www.nucleide.org/DDEP_WG/DDEPdata.htm)
25. Be M.-M., Chisté V., Dulieu C. et al. // Table of Radionuclides (Vol. 1 – A = 1 to 150). Sevres: Bureau International des Poids et Mesures, 2004.
26. Be M.-M., Chisté V., Dulieu C. et al. // Table of Radionuclides (Vol. 2 – A = 151 to 242). Sevres: Bureau International des Poids et Mesures, 2004.
27. Be M.-M., Chisté V., Dulieu C. et al. // Table of Radionuclides (Vol. 3 – A = 3 to 244). Sevres: Bureau International des Poids et Mesures, 2006.
28. Be M.-M., Chisté V., Dulieu C. et al. // Table of Radionuclides (Vol. 4 – A = 133 to 252). Sevres: Bureau International des Poids et Mesures, 2008.
29. Be M.-M., Chisté V., Dulieu C. et al. // Table of Radionuclides (Vol. 5 – A = 22 to 244). Sevres: Bureau International des Poids et Mesures, 2010.
30. 3 Workshop of Radioactive Decay Data Evaluators – Presentation. URL: <http://www.ciemat.es/portal.do?TR=C&IDR=1524>
31. Чечев В. П. Оценка периодов полураспада 42 радионуклидов, используемых для калибровки детекторов, и поиск оптимальной процедуры определения итоговых погрешностей оцененных значений // Измерительная техника. 1998. № 8. С. 47–50.
32. Chechev V. P., Egorov A. G. Search for an Optimum Approach to the Evaluation of Data of Varying Consistency: Half-life Evaluations for  $^3\text{H}$ ,  $^{35}\text{S}$ ,  $^{55}\text{Fe}$ ,  $^{99}\text{Mo}$  and  $^{111}\text{In}$  // Appl. Radiat. Isot. 2000. Vol. 52. P. 601–608.
33. Browne E. Limitation of Relative Statistical Weights, a Method for Evaluating Discrepant Data: INDC(NDS)-363. IAEA, March 1988; MacMahon T. D., Browne E. LWEIGHT, A Computer Program to Calculate Averages. Version 1.3. March 2000.
34. De Soete D., Gijbels R., Hoste J. Neutron Activation Analysis. Wiley, 1972. P. 505.
35. Rajput M. U., MacMahon T. D. Techniques for Evaluating Discrepant Data // Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. 1992. Vol. A312. P. 289–295.
36. Kafala S. F., MacMahon T. D., Gray P. W. Testing of Data Evaluation Methods // Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. 1994. Vol. A339. P. 151–157.
37. Kibedi T., Burrows T. W., Trzhaskovskaya M. B. et al. Evaluation of theoretical conversion coefficients using BrIcc // Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. 2008. Vol. A589. P. 202.
38. Nichols A. L. Decay Data: Review of Measurements, Evaluations and Compilations // Appl. Radiat. Isot. 2001. Vol. 55. P. 23.
39. Audi G., Wapstra A. H., Thibault C. The AME2003 Atomic Mass Evaluation (II). Tables, Graphs, and References // Nucl. Phys. 2003. Vol. A729. P. 337.
40. Schönfeld E., Janßen H. Evaluation of Atomic Shell Data // Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. 1996. Vol. A369. P. 527.
41. Чечев В. П., Сергеев В. О. Новая оценка значений характеристик распада  $^{155}\text{Eu}$  // Измерительная техника. 2004. № 3. С. 42.
42. Schönfeld E., Janßen H. Calculation of emission probabilities of X-rays and Auger electrons emitted in radioactive disintegration processes // Appl. Radiat. Isot. 2000. Vol. 52. P. 595.

## **The Evaluation of Decay Characteristics and Schemes for Widely Applied Radioactive Nuclides**

V. P. Chechev

Current status of researches on evaluation of decay characteristics and decay schemes is presented for widely applied radionuclides.

## Сечения ядерных реакций и энергетические зависимости выходов $^{186}\text{Re}$ из вольфрамовых мишеней в области малых энергий (<20 МэВ) протонов

Л. М. Солин, В. А. Яковлев

В настоящее время одними из перспективных радионуклидов для лечения онкологических заболеваний является изотоп  $^{186}\text{Re}$ . Препараты на его основе обладают эффективным терапевтическим и обезболивающим действием; кроме того, рений способен связываться антителами, селективными к определенным опухолевым образованиям.  $^{186}\text{Re}$  отличается от других терапевтических бета-излучающих радионуклидов (например,  $^{89}\text{Sr}$ ) тем, что распад происходит с испусканием мягкого гамма-излучения с энергией 137 кэВ, что дает возможность мониторинга поступления рения в ткани или органы и соответственно более точного расчета терапевтической дозы облучения. Большой период полураспада  $^{186}\text{Re}$  (89,3 ч) позволяет доставлять этот радионуклид практически в любое место без существенной потери объемной активности.

### Введение

Обзор соответствующей литературы показал значительные расхождения величин сечений реакции  $^{186}\text{W}(p,n)^{186}\text{Re}$  в выполненных до настоящего времени измерениях [1–7] (рис. 1).

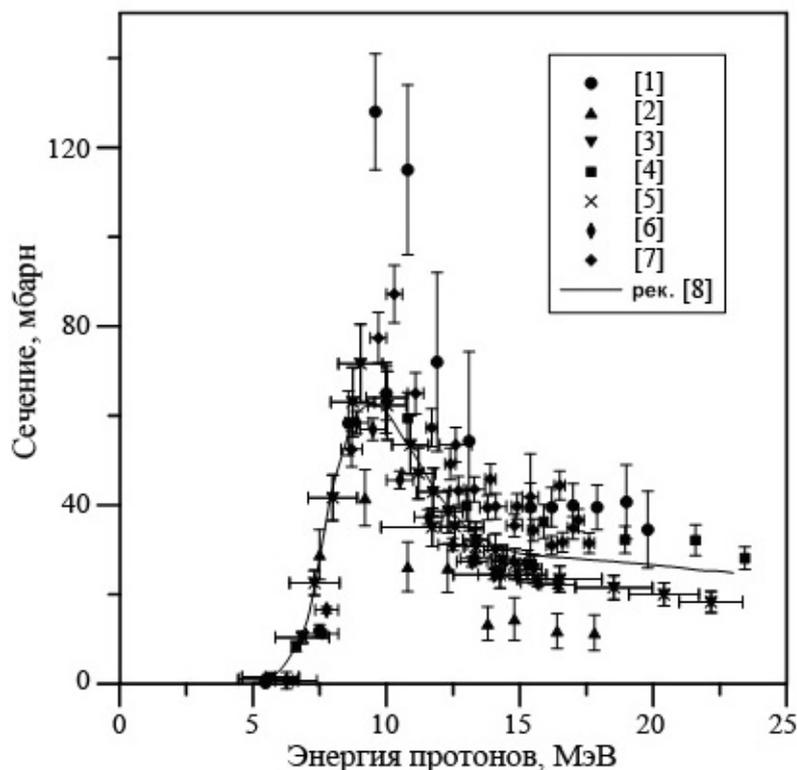


Рис. 1. Сечения реакции  $^{186}\text{W}(p,n)^{186}\text{Re}$  [1–7] (кривая – рекомендованная оценка функции возбуждения [8]).

Столь сильный разброс данных (для  $E_p = 11\text{--}12$  МэВ более чем в 10 раз) не позволяет оценить с требуемой точностью выход целевого нуклида  $^{186}\text{Re}$  в исследуемой реакции. Задачей настоящей работы являлось измерение сечений реакции  $^{186}\text{W}(p,n)^{186}\text{Re}$  в диапазоне энергии протонов от порога реакции до 16,5 МэВ. На первой стадии эксперимента предполагалось использовать в качестве монитора потока и энергии протонов ядерную реакцию с хорошо известной функцией возбуждения. В результате поиска в базе данных EXFOR (CSISRS) имеющихся экспериментальных сечений ядерных реакций различных нуклидов с протонами в исследуемом диапазоне энергий была выбрана ядерная реакция  $^{65}\text{Cu}(p,n)^{65}\text{Zn}$ . Сечения реакции  $^{65}\text{Cu}(p,n)^{65}\text{Zn}$ , измеренные в работах [9–24], и рекомендованная оценка функции возбуждения из работы [25] приведены на рис. 2.

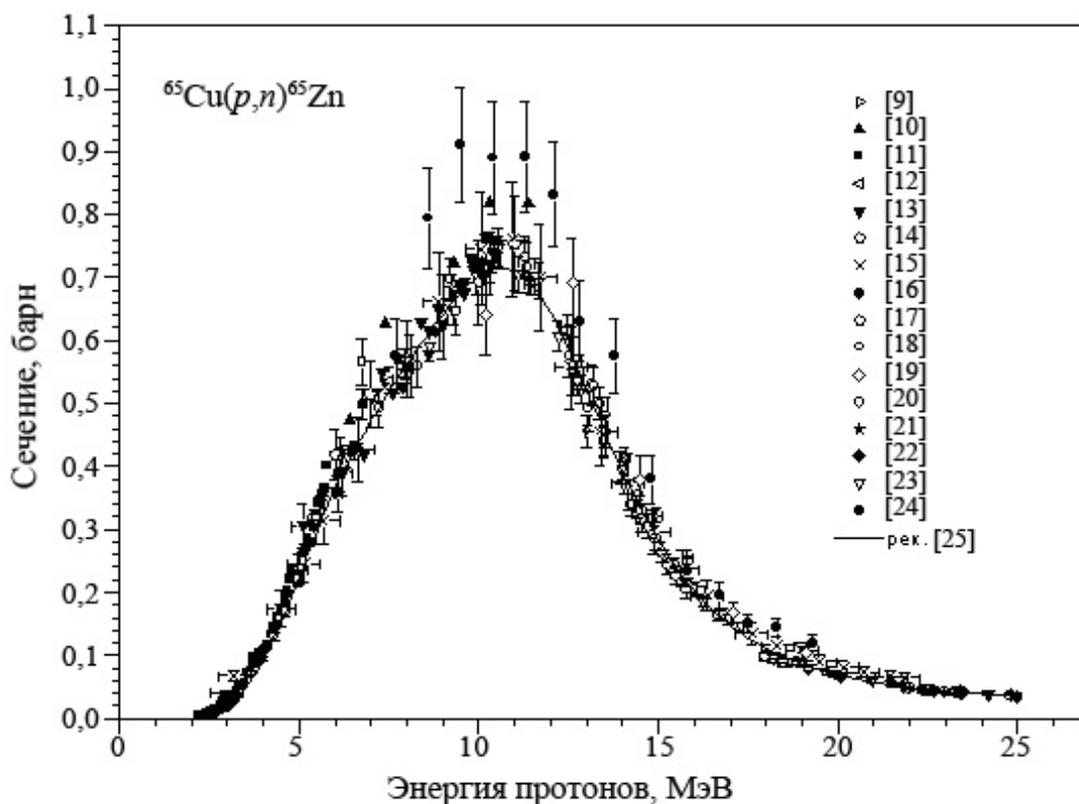


Рис. 2. Сечение реакции  $^{65}\text{Cu}(p,n)^{65}\text{Zn}$  [7–24] (кривая – рекомендованная оценка функции возбуждения [25]).

## Эксперимент

Мишенное устройство представляло собой цилиндр Фарадея с внутренним диаметром 15 и глубиной 140 мм. Стопку из металлических фольг крепили на охлаждаемом проточной водой дне цилиндра Фарадея. Мишени были приготовлены из фольг металлического вольфрама естественного изотопного состава толщиной около 20 мкм (поверхностная плотность отдельных фольг варьировалась от 35,9 до 37,5 мг·см<sup>-2</sup>), химическая чистота вольфрама – 99,95 %. Для определения интегрального тока пучка протонов использовали медные (поверхностная плотность 13,9 мг·см<sup>-2</sup>, химическая

чистота – не менее 99,9 %) мониторы. Мониторы размещали по ходу пучка частиц между вольфрамовыми фольгами.

Энергии протонов, соответствующие отдельным фольгам, рассчитывали на основании энергетических зависимостей пробега протонов в вольфраме и меди. Табличные величины пробега были получены при помощи программы SRIM2000 [26].

За накоплением продуктов ядерных реакций следили при помощи гамма-спектрометрии. Для измерения активностей  $^{186}\text{Re}$  и  $^{65}\text{Zn}$  использовали полупроводниковый детектор ДГДК-80В. Градуировку шкалы спектрометра по энергии и определение эффективности регистрации гамма-излучения в диапазоне 0,050–1,700 МэВ осуществляли при помощи набора стандартных гамма-источников (ОСГИ). Активность образовавшегося  $^{186}\text{Re}$  определяли по фотопику 137,157 кэВ, квантовый выход –  $9,47 \pm 0,04\%$  [27]. Погрешность измерения активности составляла не более 3 %.

## Результаты

Энергетическая зависимость выходов  $^{186}\text{Re}$  (с поправкой на конец облучения) приведена в табл. 1. Таким образом, выход  $^{186}\text{Re}$  в интервале энергии протонов от порога реакции до 16,5 МэВ составил  $0,85 \text{ МБк}\cdot\text{мкА}^{-1}\cdot\text{ч}^{-1}$ ; при использовании мишеней  $^{186}\text{W}$ , обогащенных до 99 %, выход  $^{186}\text{Re}$  может быть увеличен до  $2,94 \text{ МБк}\cdot\text{мкА}^{-1}\cdot\text{ч}^{-1}$ . Сечения реакций  $^{65}\text{Cu}(p,n)^{65}\text{Zn}$  и  $^{186}\text{W}(p,n)^{186}\text{Re}$ , измеренные в данной работе, приведены в табл. 2 и 3 и на рис. 3 и 4 соответственно.

Таблица 1. Выходы  $^{186}\text{Re}$  в реакции  $^{186}\text{W}(p,n)^{186}\text{Re}$ , измеренные в настоящей работе

Энергия протонов, МэВ	16,50/15,95	15,67/15,11	14,82/14,23	13,92/13,26
Выход $^{186}\text{Re}$ , $\text{кБк}\cdot\text{мкА}^{-1}\cdot\text{ч}^{-1}$	41,2	39,2	41,3	52,7
Энергия протонов, МэВ	13,26/12,64	12,31/11,63	11,28/10,57	10,19/9,43
Выход $^{186}\text{Re}$ , $\text{кБк}\cdot\text{мкА}^{-1}\cdot\text{ч}^{-1}$	46,2	66,9	82,5	92,9
Энергия протонов, МэВ	9,02/8,19	7,73/6,83	6,30/5,27	
Выход $^{186}\text{Re}$ , $\text{кБк}\cdot\text{мкА}^{-1}\cdot\text{ч}^{-1}$	87,9	32,9	4,08	

Измерения сечений были проведены с наименьшей погрешностью по сравнению с работами других авторов, а их абсолютные величины находятся в хорошем (в пределах погрешностей) согласии с рекомендованной оценкой [8] (рис. 4).

Таблица 2. Сечения реакции  $^{65}\text{Cu}(p,n)^{65}\text{Zn}$ , измеренные в настоящей работе

$\langle E_p \rangle \pm \Delta E_p$ , МэВ	$\sigma(^{65}\text{Zn}) \pm \Delta\sigma(^{65}\text{Zn})$ , мбарн
15,81±0,14	256±11
14,96±0,14	322±11
14,07±0,15	415±14
12,47±0,16	622±18
11,46±0,17	690±18
10,38±0,19	725±18
9,23±0,20	684±20
7,96±0,23	556±17
6,56±0,26	426±14
4,95±0,32	236,6±7,8
2,95±0,45	41,5±1,6

Таблица 3. Сечения реакции  $^{186}\text{W}(p,n)^{186}\text{Re}$ , измеренные в настоящей работе

$\langle E_p \rangle \pm \Delta E_p$ , МэВ	$\sigma(^{186}\text{Re}) \pm \Delta\sigma(^{186}\text{Re})$ , мбарн
16,22±0,28	24,2±1,2
15,39±0,28	23,6±1,2
14,52±0,29	24,7±1,2
13,59±0,33	29,5±1,4
12,95±0,31	28,4±1,4
11,97±0,34	39,6±2,6
10,92±0,36	49,3±2,3
9,81±0,38	55,4±1,9
8,60±0,42	51,8±1,7
7,28±0,45	19,6±0,5
5,79±0,52	2,4±0,2

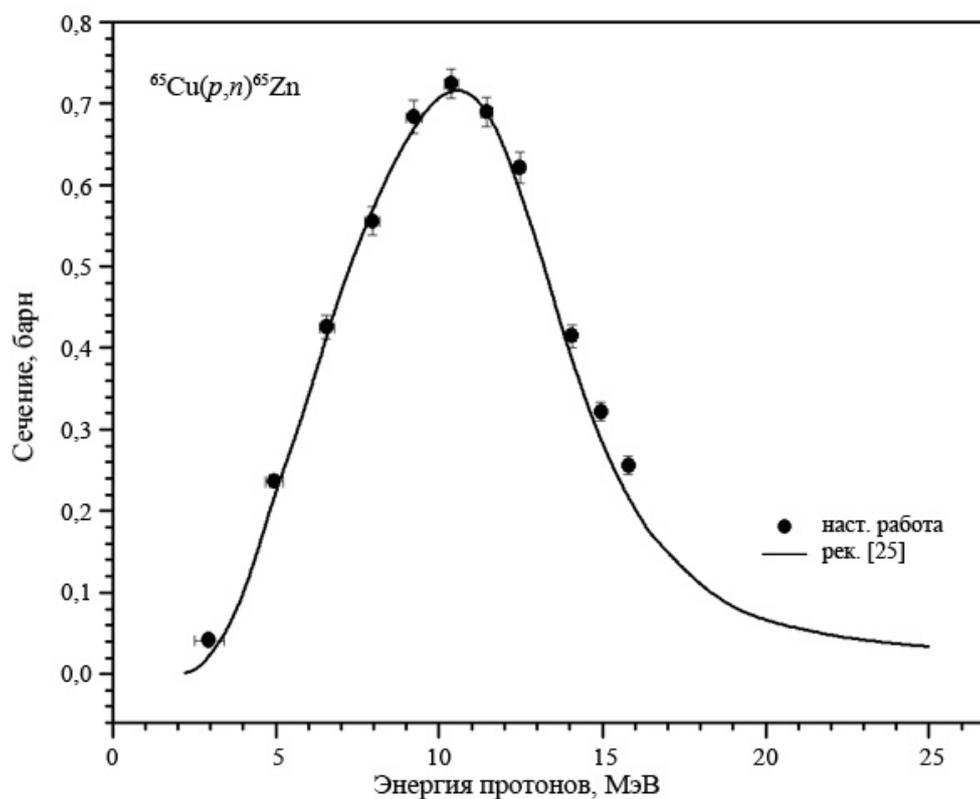


Рис. 3. Сечения реакции  $^{65}\text{Cu}(p,n)^{65}\text{Zn}$ , измеренные в данной работе (кривая – рекомендованная оценка функции возбуждения [25]).

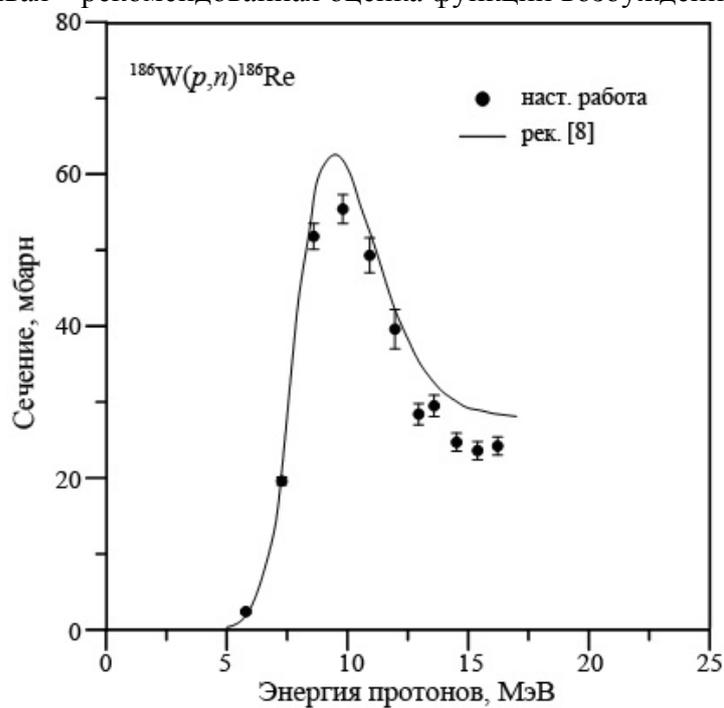


Рис. 4. Сечения реакции  $^{186}\text{W}(p,n)^{186}\text{Re}$ , измеренные в данной работе (кривая – рекомендованная оценка функции возбуждения [8]).

## Список литературы

1. Shigeta N., Matsuoka H., Osa A. et al. Production Method of No-Carrier-Added  $^{186}\text{Re}$  // J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles. 1996. Vol. 205. P. 85.
2. Zhang X., Li W., Fang K. et al. Excitation Functions for  $^{181-186}\text{Re}$  Reactions and Production of No-Carrier-Added  $^{186}\text{Re}$  via  $^{186}\text{W}(p,n)^{186}\text{Re}$  Reaction // Radiochim. Acta. 1999. Vol. 86. P. 11–16.
3. Tárkányi F., Hermanne A., Takács S. et al. New Measurement and Evaluation of Excitation Function of the  $^{186}\text{W}(p,n)$  Nuclear Reaction for Production of the Therapeutic Radioisotope  $^{186}\text{Re}$  // Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. 2007. Vol. B264. P. 389–394.
4. Khandaker U., Uddin M. S., Kim K. S. et al. Excitation Functions of Proton Induced Nuclear Reactions on  $^{186}\text{W}$  up to 40 MeV // Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. 2008. Vol. B266, P. 1021.
5. Szelecsenyi F., Takacs S., Tarkanyi F. et al. Study of Production Possibility of No-Carrier-added  $^{186}\text{Re}$  via Proton Induced Reaction on Tungsten for Use in Radiotherapy // Conf. Symp. Synth. Isot. Labelled Comp. Philadelphia, PA, 1997.
6. Bonardi M. L., Groppi F., Menapace E. et al. Update on Cyclotron Production Studies of No-Carrier-Added Copper-64, Astatine-211/Polonium-211g, Rhenium-186g // 18<sup>th</sup> Int. Conf. Cyclotrons and Their Applications 2007. Giardini Naxos, Italy, Oct. 1–5, 2007. P. 254.
7. Lapi S., Mills W. J., Wilson J. et al. Production Cross-Sections of  $^{181-186}\text{Re}$  Isotopes from Proton Bombardment of Natural Tungsten // Appl. Radiat. Isot. 2007. Vol. 65. P. 345.
8. Hussain M., Sudár S., Aslam M. N. et al. Evaluation of Charged Particle Induced Reaction Cross Section Data for Production of the Important Therapeutic Radionuclide  $^{186}\text{Re}$  // Radiochim. Acta. 2010. Vol. 98, N 7. P. 385–395.
9. Johnson C. H., Galonsky A., Ulrich J. P. Proton Strength Functions from  $(p,n)$  Cross Sections // Phys. Rev. 1958. Vol. 109. P. 1243.
10. Howe H. A.  $(p,n)$  Cross Sections of Copper and Zinc // Phys. Rev. 1958. Vol. 109. P. 2083.
11. Johnson C. H., Galonsky A., Inskip C. N. Cross Sections for  $(p,n)$  Reactions in Intermediate-Weight Nuclei: Progress Report ORNL-2910. 1960. P. 25.
12. Shore B. W., Wall N. S., Irvine, J. W. et al. Interactions of 7.5 MeV Protons with Copper and Vanadium // Phys. Rev. 1961. Vol. 123. P. 276.
13. Wing, J., Huizenga, J. R.  $(p,n)$  Cross Sections of  $^{51}\text{V}$ ,  $^{52}\text{Cr}$ ,  $^{63}\text{Cu}$ ,  $^{65}\text{Cu}$ ,  $^{107}\text{Ag}$ ,  $^{109}\text{Ag}$ ,  $^{111}\text{Cd}$ ,  $^{114}\text{Cd}$ , and  $^{139}\text{La}$  from 5 to 10.5 MeV // Phys. Rev. 1962. Vol. 128. P. 280.
14. Hansen L. F., Albert R. D. Statistical Theory Predictions for 5 to 11 MeV  $(p,n)$  and  $(p,p')$  Nuclear Reactions in  $^{51}\text{V}$ ,  $^{59}\text{Co}$ ,  $^{63}\text{Cu}$ ,  $^{65}\text{Cu}$ , and  $^{103}\text{Rh}$  // Phys. Rev. 1962. Vol. 128. P. 291.
15. Humes R. M., Dell G. F., Jr., Ploughe W. D., Hausman H. J.  $(p,n)$  Cross Sections at 6.75 MeV // Phys. Rev. 1963. Vol. 130. P. 1522.
16. Dell G. F., Ploughe W. D., Hausman H. J. Total Reaction Cross Sections in the Mass Range 45 to 65 // J. Nucl. Phys. 1965. Vol. 64. P. 513.
17. Дмитриев П. П., Константинов И. С., Краснов Н. Н. Функция возбуждения для реакции  $^{65}\text{Cu}(p,n)^{65}\text{Zn}$  // Атом. энергия. 1968. Т. 24. С. 279.
18. Colle R., Kishore R., Cumming J. B. Excitation Functions for  $(p,n)$  Reactions to 25 MeV on  $^{63}\text{Cu}$ ,  $^{65}\text{Cu}$ , and  $^{107}\text{Ag}$  // Phys. Rev. 1974. Vol. C9. P. 1819.

19. Gadioli E., Grassi Strini A. M., Lo Bianco G. et al. Excitation Functions of  $^{51}\text{V}$ ,  $^{56}\text{Fe}$ ,  $^{65}\text{Cu}$  ( $p,n$ ) Reactions Between 10 and 45 MeV // Nuovo Cim. 1974. Vol. A22. P. 547.
20. Pulfer P. Determination of Absolute Production Cross Sections for Proton Induced Reactions in the Energy Range 15 to 72 MeV and at 1820 MeV: Ph. D. Thesis. 1979 (in German).
21. Антропов А. Е., Гусев В. П., Зарубин П. П. и др. Измерение полного сечения ( $p,n$ ) реакций для ядер со средними атомными весами при энергии протонов 6 МэВ // 30-я Ежегодная конф. по ядерной спектроскопии и структуре атомного ядра. Л., 18–21 марта 1980 г. С. 316.
22. Seviour M. E., Mitchell L. W., Anderson M. R. et al. Absolute Cross Sections of Proton Induced Reactions on  $^{65}\text{Cu}$ ,  $^{64}\text{Ni}$ ,  $^{63}\text{Cu}$  // Aust. J. Phys. 1985. Vol. 36. P. 463.
23. Kopecky P. Proton Beam Monitoring via the  $\text{Cu}(p,x)^{58}\text{Co}$ ,  $^{63}\text{Cu}(p,2n)^{62}\text{Zn}$ ,  $^{65}\text{Cu}(p,n)^{65}\text{Zn}$  Reactions in Copper // Int. J. Appl. Radiat. Isot. 1985. Vol. 36. N 8. P. 657.
24. Levkovskij V. N. Activation Cross Section Nuclides of Average Masses ( $A = 40\text{--}100$ ) by Protons and Alpha-Particles with Average Energies ( $E = 10\text{--}50$  MeV) (Experiment and Systematics) // Moscow: Inter-Vesti. 1991.
25. Web address: <http://www-nds.iaea.org/medical/cup65zn4.html>, Last updated by S. Takács ([takacs-s@atomki.hu](mailto:takacs-s@atomki.hu)). March 2007.
26. Ziegler J. F., Biersack J. P., Littmark U. The Stopping and Range of Ions in Solids. New York: Pergamon Press, 1985. New Ed. 1999.
27. <http://iaeand.iaea.org/NUDAT/radform.html>, Data Base Last Updated on Jan. 15, 2003.

### **Nuclear Reaction Cross-Sections and Energy Dependence of $^{186}\text{Re}$ Yield from Tungsten Targets at Proton Low Energy (<20 MeV)**

L. M. Solin, V. A. Jakovlev

Today  $^{186}\text{Re}$  is considered to be the most promising radionuclide for treatment of tumor diseases.  $^{186}\text{Re}$ -labeled preparations have effective therapeutic and anaesthetic action; moreover, rhenium is able to bind with antibodies, which are selective to specified tumor formations.  $^{186}\text{Re}$  differs from other therapeutic beta-emitting radionuclides (for instance  $^{89}\text{Sr}$ ) in that it emits soft 137 keV gamma rays. This allows monitoring of rhenium flux to tissue and organs, and, consequently, more accurate estimation of the dose of therapeutic irradiation. Relatively long half-life of  $^{186}\text{Re}$  (89.3 h) allows its delivery practically anywhere without loss of the volume activity.

## ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ МЕТОДИКИ

### Циклотрон МГЦ-20 Радиевого института для производства медицинских радионуклидов (обзор)

Л. М. Солин

Использование циклотронов в ядерной медицине является актуальной задачей, особенно в связи с последними событиями закрытия атомных реакторов, покрывавших бóльшую часть потребностей в технеции-99m. Современные циклотроны – это ускорители заряженных частиц, позволяющие получать пучки протонов с энергией 10–30 МэВ большой интенсивности. Наиболее перспективный радиоизотоп йод-123 в больших количествах производится на циклотронах с энергией протонов 30 МэВ, однако использование ускорителей с энергиями <20 МэВ для получения того же йода-123 оказывается более экономичным при обеспечении потребностей мегаполиса или небольшой страны. В данной статье даётся обзор работ, выполненных в Радиевом институте по исследованию и совершенствованию работы циклотрона МГЦ-20, разработанного в НИИЭФА им. Д. В. Ефремова и более 20 лет применяющегося для производства медицинских радиоизотопов в Радиевом институте.

#### Введение

Современная ядерная медицина – это область медицины, использующая для диагностики и терапии радиоизотопы. Для получения радиоизотопов применяют или ускорители заряженных частиц (как правило, циклотроны), или атомные реакторы. Ускорители заряженных частиц удобнее использовать в производстве радиоизотопов, особенно короткоживущих. Их можно включать на время, необходимое для получения заранее определённой активности целевого радиоизотопа. Проще обращение с мишенями. Циклотроны, как правило, сооружаются специально для производства определенного набора радиоизотопов. Расходы на их содержание достаточно велики, поэтому циклотронная продукция дороже реакторной. Однако многие радиоизотопы, востребованные ядерной медициной, не могут быть произведены с использованием ядерных реакторов.

Медицинские радиоизотопы могут быть произведены с использованием циклотронов различных типов (различные типы ускоряемых частиц, энергетические диапазоны и интенсивности пучков). Сечения реакций с протонами достаточно велики, а ускорители протонов могут обеспечивать достаточно большие интенсивности пучков, поэтому подавляющее большинство работ по получению медицинских радиоизотопов осуществляется на циклотронах с протонными пучками. Коммерческое производство изотопов требует циклотронов последнего поколения, то есть ускорителей отрицательных ионов большой интенсивности. Хорошие примеры таких машин – CYCLONE-30 [1], производимый фирмой Ion Beam Application (Бельгия), и TR-30 [2], изготавливаемый EBCO Technologies совместно с фирмой TRIUMF (Канада), которые имеют сходные основные характеристики (табл. 1).

Весьма успешна деятельность по производству медицинских радиоизотопов ОАО «Циклотрон», модернизовавшего модель циклотрона У-250 [внутренний пучок 21 МэВ (протоны и дейтерий) до 1000 мкА и 28 МэВ (протоны) – до 300 мкА] [3]. ОАО

«Циклотрон» в состоянии производить коммерческие количества  $^{67}\text{Ga}$ ,  $^{103}\text{Pd}$ ,  $^{57}\text{Co}$  и генератора  $^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$  [4].

Таблица 1. Основные характеристики циклотронов CYCLONE-30 и TR-30

Источник ионов	Внешний
Частица	H-( $p$ )
Число выведенных пучков	2
Энергия	15–30 МэВ
Ток пучка	500 мкА

Для производства терапевтического радионуклида  $^{103}\text{Pd}$  фирмой ИВА разработан циклотрон для получения протонов с энергией 14 МэВ и интенсивностью 1,5 мА [5]. Здесь впервые был реализован метод вывода пучка из циклотрона за счёт неоднородностей краевого магнитного поля, предложенный сотрудниками НИИЭФА.

Однако циклотроны и более низкой мощности успешно применяются для производства медицинских изотопов. Производство изотопов для маленькой страны, большого города или отдельной больницы может быть более дешёвым и надёжным при использовании циклотронов низкой энергии (<20 МэВ). Это очевидно для ПЭТ-центров, когда время жизни произведенного позитронно-испускающего изотопа измеряется минутами. Для производства гамма- и бета-излучающих изотопов также имеются некоторые преимущества. Максимальные величины сечений находятся в диапазоне 10–12 МэВ для ядерных реакций ( $p,n$ ), производящих  $^{123}\text{I}$ ,  $^{124}\text{I}$ ,  $^{67}\text{Ga}$ ,  $^{111}\text{In}$  [6] и  $^{103}\text{Pd}$  [7]. Таким образом, производство некоторых важных медицинских изотопов достижимо при относительно низкой энергии протонов. Кроме того, в некоторых случаях нет необходимости иметь высокую интенсивность пучка. Это справедливо для производства  $^{123}\text{I}$  и  $^{124}\text{I}$  при использовании мишени из диоксида теллура, когда интенсивность протонного пучка больше 25 мкА ведет к расплавлению мишени.

Циклотрон МГЦ-20 был разработан Научно-исследовательским институтом электрофизической аппаратуры им. Д. В. Ефремова (НИИЭФА, С.-Петербург) около 40 лет назад для фундаментальных и прикладных исследований [8]. Четыре машины такого типа были установлены в России и четыре за границей (Финляндия, Венгрия, Северная Корея, Египет). Теперь большинство из них используется для производства изотопов. Первый циклотрон типа МГЦ-20 был запущен в Турку, Финляндия, в 1974 г. Последний циклотрон МГЦ-20 введен в эксплуатацию в 2002 г. в Каире.

До настоящего времени циклотроны МГЦ-20 находят широкое применение благодаря удачному формированию магнитного поля и соответственно удачным характеристикам. Они остаются основой для центров позитронно-эмиссионной томографии (Турку, Дебрецен, Санкт-Петербург) и для производств гамма-излучающих радиоизотопов при своевременном обновлении всех электронных систем, срок службы которых не превышает 15 лет.

### 1. Основные характеристики циклотрона МГЦ-20

МГЦ-20 – циклотрон с изменяемой энергией, позволяющий ускорять лёгкие ионы ( $p$ ,  $d$ ,  $\alpha$ ,  $^3\text{He}$ ) в диапазоне энергий 5–20  $Z^2/A$  МэВ до интенсивности выведенного пучка 25–50 мкА.

Таблица 2. Основные характеристики ускоряемых частиц

Ускоряемые частицы	Внутренний пучок		Внешний пучок	
	энергия, МэВ	ток пучка, мкА	энергия, МэВ	ток пучка, мкА
Протоны	2–20	200	5–18	50
Дейтроны	1–11	300	3–10	50
Гелий-3	4–27	50	8–24	20
Гелий-4	2–22	50	8–20	20

Диаметр полюса магнита циклотрона 103 см, вес магнита – 24 т. Три сектора, которые обеспечивают фокусировку, смонтированы на дисках. Зазор в «долинах» (максимальный зазор) составляет 120 мм, а в «холмах» (минимальный зазор) – 72 мм. Основная обмотка выполнена из медной трубки квадратного сечения. Она охлаждается дистиллированной водой по замкнутому контуру. Ведущее магнитное поле циклотрона обеспечивает изохронизм и стабилизацию движения ускоренных частиц [9].

Высокочастотная (ВЧ) система [10] используется для ускорения и состоит из ВЧ-генератора и резонансной системы. Изменение частоты в диапазоне 8–25 МГц производится изменением положения набора подвижных панелей резонансной системы. Рабочее дуантное напряжение 15–30 кВ зависит от режима ускорения. Подстроечные ёмкости резонатора (триммера) обеспечивают изменения по частоте 0,1 %. Они управляются серво-системами для компенсации температурной зависимости характеристик резонатора.

В циклотроне используется источник Ливингстона с горячей нитью.

Вывод пучка осуществляется через электростатический дефлектор и магнитный канал. На дефлектор может быть подано отклоняющее напряжение до 48 кВ. Эффективность вывода пучка около 50 %.

## 2. Создание и совершенствование циклотрона МГЦ-20 в Радиовом институте

До 1976 г. в Радиовом институте функционировал первый в Европе циклотрон, который к этому времени уже не обеспечивал ни требования эксперимента, ни возможность производства радиоизотопов. После прекращения его деятельности встал вопрос о сохранении в Радиовом институте ускорительной экспериментальной базы, но на более высоком уровне. И уже в ноябре 1976 г. по инициативе Ю. А. Селицкого при участии Ю. А. Немилова были направлены письма в Министерство среднего машиностроения о необходимости установки циклотрона МГЦ-20.

24 декабря 1976 года в адрес директора НИИЭФА, директора Радиового института и начальника 18 управления было направлено ответное письмо из министерства о включении в план работ 1978 г. изготовления одного комплекта МГЦ.

Однако в связи с перегрузкой опытного производства НИИЭФА работами особой важности начало работ по изготовлению циклотрона было перенесено на 1983 г. В 1983 г. Министерством среднего машиностроения СССР были выделены средства на разработку и изготовление циклотрона МГЦ-20 для Радиового института.

### 2.1. Строительно-монтажные работы

С целью экономии средств циклотрон планировалось разместить в готовом корпусе Радиового института, где уже работал электростатический ускоритель ЭГ-5 на

месте большого магнитного спектрографа. Параллельно с изготовлением ускорителя в НИИЭФА в Радиевом институте проводилась реконструкция корпуса.

Для сокращения времени монтажных работ сборку всех элементов циклотронного комплекса производили сразу в Радиевом институте без предварительных испытаний в НИИЭФА. В 1987 г. в Радиевом институте основные узлы циклотронного комплекса были смонтированы и начаты пуско-наладочные работы.

## 2.2. Пуско-наладочные работы

Пуско-наладочные работы проводились совместно сотрудниками Радиевого института и НИИЭФА им. Д. В. Ефремова. Первое требование к современным циклотронам – это создание такой формы магнитного поля, которая бы обеспечивала сильную вертикальную фокусировку для уменьшения потерь в процессе ускорения. Магнитное поле циклотрона сложное и включает как основное поле магнита, так и поля концентрических и гармонических обмоток; поэтому основная и наиболее критическая часть пуско-наладочных работ относится к формированию магнитного поля циклотрона.

В первую очередь проводили проверку геометрии магнитной структуры циклотрона после монтажа электромагнита. Удалось получить зеркальность лучше  $\pm 0,05$  мм. Измеренные величины зазоров показали непараллельность  $\pm 0,1$  мм. Карта зазоров представлена на рис. 1.

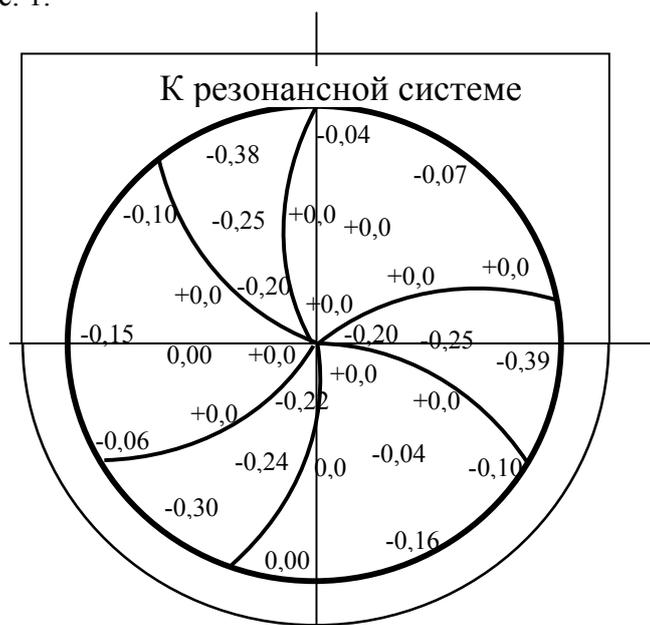


Рис. 1. Отклонения зазоров в «холмах» и «долинах» магнита циклотрона (в мм).

Поскольку магнитные свойства железа отличаются от экземпляра к экземпляру, программа предпусковых испытаний предусматривает магнитные измерения каждого изготовленного магнита ускорителя. Кроме того, требуется изучение полей для четырёх концентрических обмоток, используемых для получения изохронного ускорения частиц разных типов, и для трёх пар гармонических обмоток, исправляющих азимутальные нерегулярности.

Кривую намагничивания электромагнита циклотрона измеряли при установке датчика Холла в центре полюса электромагнита.

Целью полномасштабной программы изучения (измерения) магнитных полей циклотрона Радиового института было получение достаточной информации для расчёта параметров режимов ускорения определённого типа частиц до заданной энергии. Сетка для измерений основного поля определялась шагом по азимуту  $4^\circ$  и в радиальном направлении 1,5 см на полном обороте (2790 точек).

Поле измеряли для 11 уровней возбуждения основной обмотки. Основным объём данных для концентрических обмоток был получен по сетке  $4 \times 1,5$  см в пределах  $120^\circ$  (элемент периодичности магнитной структуры). Измерения для всех концентрических обмоток выполняли при шести уровнях возбуждения основной обмотки (как для положительной, так и для отрицательной полярности токов в обмотках). Влияние гармонических обмоток измеряли при трёх уровнях возбуждения основной обмотки также для двух полярностей токов гармонических обмоток. Эффект каждой обмотки оценивали в величинах Гс/А для каждой точки в магните при разных уровнях основного поля. Из этой информации в принципе возможно вычисление токов, устанавливаемых для любой желаемой формы поля.

Полную программу магнитных измерений (более 50000 точек) выполняли с помощью полуавтоматической аппаратуры, разработанной в Радиовом институте и использованной впоследствии сотрудниками НИИЭФА при пусконаладочных работах на циклотроне МГЦ-20 в Северной Корее. Поле измеряли датчиком Холла, поскольку он даёт достаточно высокую точность ( $1 \cdot 10^{-4}$ ) и имеет малые размеры (с малой результирующей ошибкой в градиенте поля).

Первые измерения среднего поля основного магнита (20.11.87) для индукции, обеспечивающей ускорение частиц до энергий 15 МэВ, показали (рис. 2) его слабое нарастание (140 Гс) по радиусу, которое не может обеспечить изохронизм ускорения, что подтвердило необходимость исследований, несмотря на серийность выпуска данной модели магнита.

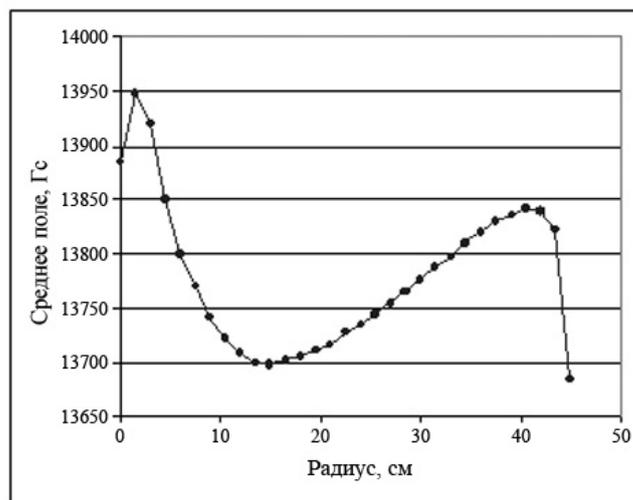


Рис. 2. Радиальное распределение средней по азимуту напряжённости магнитного поля циклотрона МГЦ-20 Радиового института (ток 330 А) до доработки секторов.

Для увеличения нарастания среднего поля до 190–200 Гс была выполнена доработка секторов (вогнутая кромка секторов подрезана до  $52^\circ$  от вертикали к плоскости) в НИИЭФА им. Д. В. Ефремова и проведены повторные измерения поля (23.03.88) (рис. 3). Процедура анализа результатов, демонтажа, доработки и монтажа секторов заняла 4 месяца.

Анализ результатов повторных измерений основного магнитного поля циклотрона Радиевого института показал, что расчётный изохронизм и стабильность движения могут быть достигнуты (рис. 3), а амплитуда первой гармоники в основной зоне ускорения относительно мала (рис. 4).

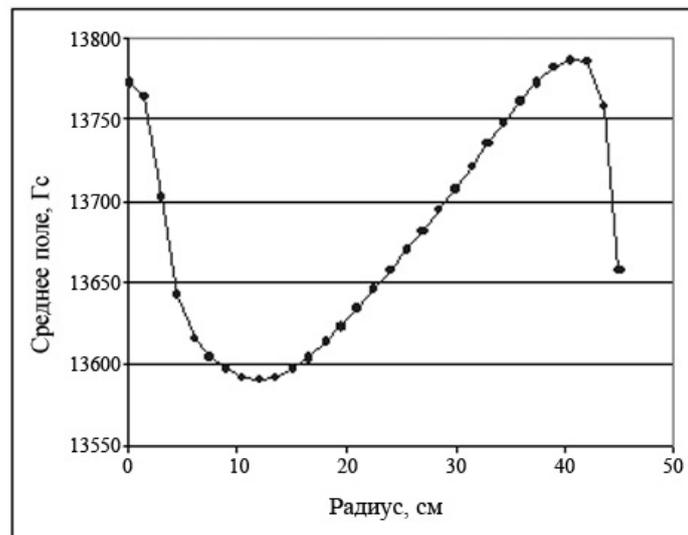


Рис. 3. Радиальное распределение средней по азимуту напряжённости магнитного поля циклотрона МГЦ-20 Радиевого института (ток 330 А) после доработки секторов.

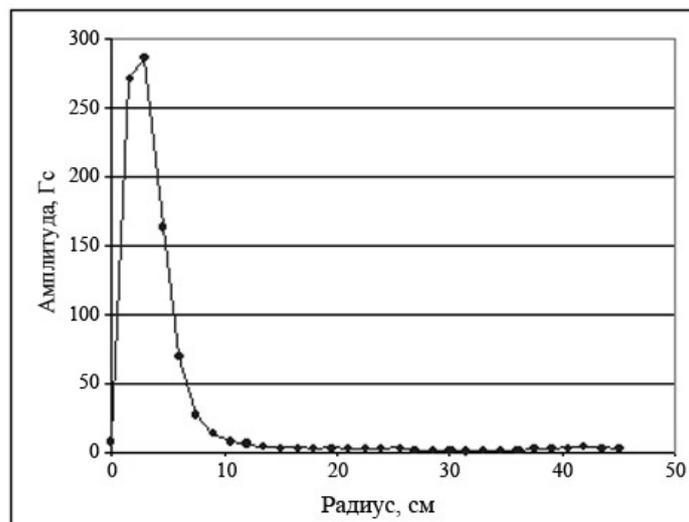


Рис. 4. Радиальное распределение амплитуды первой гармоники магнитного поля циклотрона (ток 330 А).

Комплексное испытание всех систем циклотрона проводили при нескольких номинальных режимах ускорения протонов в диапазоне 6,5–18 МэВ. Было получено хорошее согласие эксплуатационных и расчётных характеристик.

### **2.3. Исследования работы циклотрона и его совершенствование**

Исследование штатных режимов работы циклотрона проводилось главным образом сотрудниками НИИЭФА им. Д. В. Ефремова и в данной статье не описывается. Ниже представлены работы, касающиеся совершенствования систем ускорителя сотрудниками Радиевого института с привлечением специалистов НИИЭФА.

#### **2.3.1. ВЧ система**

Что касается высокочастотной системы, то работам по исследованию и совершенствованию каждой из её составляющих было уделено больше всего внимания. Высокочастотная система включает:

- 1 – синтезатор частот,
- 2 – апериодический усилитель,
- 3 – предоконечный каскад (ПОК или УРУ),
- 4 – окончательный каскад,
- 5 – резонансную систему.

#### **2.3.2. Синтезатор частот**

Для повышения надёжности и стабильности опорной частоты синтезатор частот, полученный при поставке оборудования в 1998 г., был заменен на новый, изготовленный фирмой «Инсаенс». За небольшой срок эксплуатации синтезатор зарекомендовал себя с самых лучших сторон – удобен в управлении, имеет высокую стабильность выходного напряжения и возможность управления от компьютера.

#### **2.3.3. Аperiодический усилитель**

Важным элементом высокочастотной системы является широкополосный апериодический усилитель высокой частоты, включённый между задающим генератором и предоконечным каскадом (ПОК). Данный усилитель обеспечивает усиление сигнала от синтезатора до уровня, необходимого для работы ПОК. В этом же усилителе осуществляется формирование макроимпульсов высокочастотного напряжения, а также регулирование и стабилизация уровня ВЧ напряжения на дуантах.

До недавнего времени использовался ламповый вариант усилителя, содержащий семь радиоламп и пять стабилизированных блоков питания. Этот усилитель располагается в непосредственной близости от предоконечного усилителя в стойке ПОК, вблизи циклотрона. Такое размещение усилителя затрудняет обслуживание и регулировку, а воздействие радиационного излучения способствует возникновению отказов. Особенно ненадёжно работают источники питания усилителя, содержащие большое количество полупроводниковых элементов.

Для повышения надёжности работы этого узла высокочастотной системы и улучшения обслуживания сотрудниками Радиевого института был предложен, а сотрудниками НИИЭФА изготовлен, налажен и введён в эксплуатацию новый широкопо-

лосный усилитель, выполненный на современных радиокомпонентах. Усилитель расположен в помещении пульта управления циклотрона вблизи от задающего генератора. Выходное напряжение с усилителя подаётся по высокочастотному кабелю на вход ПОК, где находится согласующий высокочастотный трансформатор. Такое размещение позволяет значительно облегчить эксплуатацию системы генератора ВЧ и повысить надёжность её работы.

Конструктивно новый усилитель оформлен в виде блока типа «вишня» и вместе с двумя блоками питания (18 В, 36 В) и силовым трансформатором занимает крейт типа «вишня».

Усилитель содержит: входной каскад на полевых транзисторах КП350б, в котором осуществляется формирование макроимпульса и регулирование высокочастотного напряжения, два каскада предварительного усиления на транзисторах КТ610 и КТ913Б(В), каскад оконечного усилителя на полевых транзисторах КП904А.

Усилитель имеет следующие характеристики:

• полоса частот	8–30 МГц
• сопротивление нагрузки	50 Ом
• входное напряжение ВЧ сигнала	0,5 В
• выходное напряжение высокой частоты (максимальное)	40 В
• выходная мощность	20 Вт
• диапазон входного управляющего напряжения	0±1,2 В
• напряжение манипуляции (ТТЛ уровень)	4 В

#### 2.3.4 Предоконечный каскад

Предоконечный каскад обеспечивает усиление высокочастотного сигнала по широкой области частот для ускорения частиц в широкой области энергий. Широкополосность ПОК имеет свою обратную сторону – возможность возбуждения при изменении параметров отдельных элементов (только лампы ГУ-74б – 14 шт.). Для снижения энергопотребления и повышения надёжности работы при производстве изотопов медицинского назначения (энергия протонов 15,5 МэВ) в Радиовом институте разработан ПОК на четырёх лампах ГУ-74б.

Кроме того, для обеспечения большей надёжности работы создаётся резервный ПОК (с 14 лампами ГУ-74б).

#### 2.3.5 Оконечный каскад

На циклотроне МГЦ-20 для создания ускоряющего высокочастотного напряжения используются оконечные каскады на лампах ГУ-67 (триод), работающие по схеме с общей сеткой. Особенностью этой схемы является значительный ток покоя (ток, протекающий через лампу, составляет 2 А при  $U_a = 9$  кВ). Этот ток значительно ухудшает КПД всего циклотрона, особенно при работе со скважностью 10 и 4. Следует отметить, что работа циклотрона в непрерывном режиме на высоких энергиях затруднена из-за недостаточной электрической и вакуумной прочности ускоряющей системы. Для совершенствования высокочастотной системы были проведены работы по проверке возможности использования ламп ГУ-7б (тетрод) в оконечном каскаде генератора высокой

частоты. Для установки ламп ГУ-76 внесен ряд изменений в конструкцию оконечного каскада и в электрическую схему системы питания:

1. В шкафу оконечного каскада установлены новый бак, несущий лампу ГУ-76, и новая ламповая панель, имеющая изолированные выводы управляющей и экранной сетки.
2. Для питания экранной сетки подведено напряжение от стойки питания предоконечного каскада через балластные резисторы, введена в работу релейная защита от перегрузок.
3. Установлены и подключены стабилизированные источники питания для создания смещения на управляющей сетке.
4. Увеличено напряжение накала (лампа ГУ-76 имеет большее напряжение и мощность накала).
5. Внесены изменения в схему электрических блокировок, обеспечивающих необходимую последовательность включения питающих напряжений.

Первоначально производилась отладка статического режима (без ВЧ сигнала). Подобрано необходимое напряжение накала. Подбраны параметры цепи питания экранной сетки. Определено, что поднятие экранного напряжения до номинальной величины желательно производить плавно.

Проверялись 2 варианта включения тетрода ГУ-76 – схема с общей сеткой и схема с общим катодом. В схеме с заземленной управляющей сеткой (подача возбуждения на катод) получили режим, совпадающий по своим показателям с показателями для триода ГУ-67. Следовательно, тетроды ГУ-76 могут использоваться для выходного каскада высокочастотной системы МГЦ-20.

В схеме с заземленным катодом большое внимание уделялось построению цепи питания управляющей сетки, поскольку в цепи управляющей сетки действует значительная (350 пФ) ёмкость сетка–катод. Однако удовлетворительного решения для требуемого (широкого) диапазона частот пока найти не удалось. Схема с общей сеткой не показала ожидаемых результатов. Предварительные результаты оказались близкими к показателям обычного триодного выходного каскада с общей сеткой. В дальнейшем необходимо продолжить исследования тетродного варианта с общим катодом.

### *2.3.6 Резонансная система*

Настройка на резонанс в диапазоне частот 8–25 МГц производится изменением положения набора подвижных панелей резонансной системы. Рабочее дуантное напряжение зависит от режима ускорения. Подстроечные ёмкости резонатора (триммеры) обеспечивают изменения по частоте 0,1 %. Они управляются сервосистемами для компенсации температурной зависимости характеристик резонатора.

Для обеспечения генерации на дуантах высокого напряжения в широком диапазоне частот вплотную к ускорительной камере смонтирована система, которая представляет собой две перестраиваемые волноводные линии, к концам которых присоединены дуанты.

В рабочем состоянии ускорителя проведены измерения зависимости добротности резонаторов от резонансной частоты. Результаты приведены в табл. 3.

Таблица 3. Зависимость добротности резонаторов от резонансной частоты

$f$ , МГц	10,1	15,4	18,2	20,2	22,1	24,1	25,2
$Q_1$ , ед.	2125	1910	1460	1095	907	717	718
$Q_2$ , ед.	2200	1845	1390	1030	925	725	700

Здесь  $f$  - частота напряжения в резонаторе,

$Q_1$  – добротность правого резонатора,

$Q_2$  – добротность левого резонатора.

Расчётная добротность резонаторов на частоте 25,2 МГц – 810, на частоте 9,9 МГц – 3760. Это добротность собственно резонаторов. Измерение добротности выполнено на резонаторах, нагруженных вводами мощности.

Добротность левого и правого резонаторов, нагруженных реальными потерями мощности, сопутствующими работе ускорителя на частоте 24,5 МГц, 610 и 600 для правого и левого резонаторов. При этом на дуантах можно получить высокочастотное напряжение с действующим значением 24 кВ, что приемлемо для нормальной работы ускорителя.

### 2.3.7. Автоматизация управления ВЧ системой

Высокочастотная система – одна из самых сложных и энергоёмких систем циклотрона. Она содержит большое число электронных устройств автоматического регулирования, однако она требует периодического ручного управления. Ручными являются операции начальной настройки положения панелей на резонанс и коррекции накопившихся изменений при длительной работе. Автоматизация этих операций является достаточно большой работой, связанной с разработкой, выполнением и отладкой ряда электронных и механических устройств. Одной из неудовлетворительных в работе является система регулирования положения панелей. От неё требуется достаточно быстрая перестройка от одного крайнего положения до другого и высокоточная настройка на точку резонанса. Высокоточной настройке препятствует ещё и люфт в приводе панелей.

Для улучшения управляемости панелями был проведён опыт с применением двухскоростного сервопривода. Такой привод был выполнен на базе сервомеханизма УР-10 с соотношением скоростей 1:10. Испытания показали, что пониженная скорость позволяет облегчить поиск резонанса, однако не решает полностью проблемы настройки. Для полного решения задачи управления панелями (в том числе автоматического) необходимо применить привод на базе шагового двигателя и принять меры по уменьшению люфта.

При работе ВЧ системы для поддержания резонанса применяется система автоматической подстройки резонанса, использующая подстроечные конденсаторы (триммеры). Если возможности триммеров полностью использованы (вышли на кончики), возникает необходимость в перенастройке панелей. Управление установкой триммеров в исходное положение производилось вручную. Для автоматизации этой операции выполнена система измерения положения триммера и установки его в исходное (среднее) положение. В настоящее время осталась ручной операция включения в работу блоков

автоматической подстройки фазы и амплитуды ВЧ напряжения. Если решить и эту задачу, то высокочастотная система циклотрона будет подготовлена к автоматизации.

#### **2.4. Источник ионов**

В источнике ионов циклотрона МГЦ-20 используется нить диаметром 2,5 мм из Та, которая требует для нормальной работы ток 250 А. Напряжение питания нити подаётся по медной трубке диаметром 6 мм, охлаждаемой водой.

Совершенствование работы ионного источника осуществлялось в двух направлениях. Для улучшения охлаждения анодного блока было предусмотрено дополнительное охлаждение воды, отводящей тепло от анодного блока.

Одним из существенных недостатков конструкции источника ионов является возможность отгибания нити в процессе настройки, что приводит к ухудшению работы (снижению тока) источника вплоть до её прекращения. Один из способов борьбы с этим явлением – обеспечение питания накала переменным током. Был разработан новый источник питания нити переменным током на частоте 50 Гц. Источник имеет тиристорную регулировку тока и благодаря отсутствию балластных элементов значительно экономичнее. Система питания обеспечена возможностью быстрого переключения на штатную.

#### **2.5. Вывод пучка из циклотрона**

Вывод пучка является одним из существенных элементов в работе циклотрона. При ускорении положительных ионов эта задача решается с использованием системы дефлектор–магнитный канал. Конструирование и сборка этих элементов представляют значительные трудности, поскольку дефлектор требует высоковольтного (десятки киловольт) напряжения питания и, следовательно, особых мер для изоляции, а магнитный канал испытывает большие механические нагрузки при взаимодействии с магнитным полем циклотрона. Для эффективного вывода пучка требуется тщательная настройка всех параметров циклотрона, формирующих траекторию пучка, а именно, токов гармонических и концентрических обмоток, положения дефлектора и магнитного канала, тока в обмотке основного магнита и т. д. При этом коэффициент вывода пучка составляет в лучшем случае 50 %. Коэффициент вывода пучка из циклотрона определяет не только эффективность работы циклотрона, но и радиационную обстановку вблизи циклотрона и внутри вакуумной камеры.

Особенность работы дефлектора связана с поддержанием высокого напряжения, однако в процессе работы, особенно после проведения ремонтных работ в объёме вакуумной камеры циклотрона, с высоковольтной пластины дефлектора могут возникать электрические пробой достаточно большой мощности, которые приводят к эрозии электродов и плакировок в области дефлектора. Система стабилизации напряжения дефлектора при пробоях, возникающих на дефлекторе, стремится поддержать напряжение, чем увеличивает мощность в разряде, что приводит к ускоренному разрушению дефлектора. Для устранения этих эффектов в систему стабилизации встроена электронная схема, разработанная в Радиовом институте. Эта схема обеспечивает отключение контура стабилизации при приходе сигнала от датчика пробоя на время 100–200 мс. Для снижения

электрической мощности в разряде введён дополнительный балластный резистор, расположенный непосредственно во вводе высокого напряжения дефлектора.

Для удобства настройки положения магнитного канала на максимальный выпуск пучка в Радиевом институте разработано и установлено устройство для дистанционного перемещения «входа» и «выхода» магнитного канала.

### 3. Автоматическая система управления циклотроном МГЦ-20

Любой современный ускоритель оснащается системой автоматического управления. Это позволяет не только облегчить работу оператора, но и обеспечить более надёжную работу отдельных узлов и элементов. На циклотроне МГЦ-20 Радиевского института им. В. Г. Хлопина проводятся работы по созданию системы автоматического управления (САУ). При проектировании ускорителя МГЦ-20 на стадии технического задания разработчиком проекта – НИИЭФА им. Д. В. Ефремова – была предусмотрена система автоматизированного управления (САУ). Предложенная система представляет собой иерархическую трёхуровневую автоматизированную систему управления технологическим процессом (АСУ ТП) с применением средств вычислительной техники (рис. 5). Первый (нижний) уровень системы содержит датчики и исполнительные механизмы, второй – интеллектуальный контроллер, пульт ручного управления циклотроном МГЦ-20, устройство сопряжения сигналов датчиков и исполнительных устройств с контроллером и устройство коммутации, которое даёт возможность осуществлять управление объектом в трёх режимах:

- а) ручном, при котором все параметры технологического процесса контролируются и изменяются с пульта управления ускорителя оператором;
- б) смешанном, при котором часть параметров контролируется и управляется оператором, а другая часть – средствами вычислительной техники;
- в) автоматическом, при котором все параметры технологического процесса контролируются и управляются средствами вычислительной техники.

Третий (верхний) уровень САУ содержит компьютер для поддержки работы интеллектуального контроллера и хранения программного обеспечения.

Аппаратура нижнего уровня системы состоит как из стандартных элементов, так и из элементов, специально разработанных проектировщиком, второй уровень САУ содержит следующие элементы: интеллектуальный контроллер – микропроцессорный контроллер крейта (МПКК), разработанный НИИЭФА им. Д. В. Ефремова и выполненный в стандарте КАМАК; пульт управления МГЦ-20 – разработанный в НИИЭФА им. Д. В. Ефремова и включающий в свой состав комплекс контрольных приборов, средств ручного управления (кнопки, тумблеры, переключатели и проч.), световой и звуковой сигнализации; устройство коммутации – стойка СК-1 (разработка НИИЭФА им. Д. В. Ефремова); устройство сопряжения – четырёхкрейтная стойка КАМАК с набором стандартных и специально разработанных проектировщиком модулей, а также стойка измерения технологических параметров (СИТП), включающая в себя ряд блоков в стандарте «вишня», разработанных проектировщиком.



Рис. 5. Система автоматического управления циклотроном МГЦ-20 (схема).

Полностью задача автоматизации циклотрона МГЦ-20, а именно вывод пучка на мишень и его поддержание, пока не решена.

Новой ступенью в развитии САУ циклотрона МГЦ-20 явились внедрение сотрудниками Радиового института современного компьютера вместо ранее используемой микроЭВМ СМ1300 и разработка нового программного обеспечения. Использование современного компьютера позволило значительно расширить возможности САУ по графическому отображению процессов управления, повысить надёжность работы всей системы в целом, значительно снизить расход электроэнергии. Для связи персонального компьютера с аппаратурой сопряжения применён интерфейс ППИ-4 с контроллером крейта, совпадающим по составу команд с широко распространённым контроллером типа КК60, выполненный в стандарте КАМАК, что позволило сопрягать его с уже имевшейся аппаратурой.

В настоящее время управляющий компьютер контролирует и управляет 66 параметрами, определяющими технологический процесс. Из них 17 параметров связаны с управлением электромагнитными элементами циклотрона, остальные являются аналоговыми, но в свою очередь подразделяются на измерительные, контролируемые напряжения и токи в элементах конструкции циклотрона, а также положение перемещаемых элементов конструкции, и управляющие, позволяющие осуществлять необходимые перемещения этих элементов и изменять установки напряжений и токов. Для каждого типа канала характерно свое построение и технические характеристики.

Основной пакет включает в себя следующие программы:

- измерения аналоговых напряжений (токов);
- чтения–записи информации в цифровых каналах управления;
- включения–отключения объектов на ускорителе.

#### 4. Определение энергии протонов в пучке

Количество радиоизотопа, образованного в результате ядерной реакции, зависит от энергии частиц, вызывающих эту реакцию. Наиболее информативной характеристикой является функция возбуждения – зависимость сечения ядерной реакции от энергии падающих частиц. Для циклотрона МГЦ-20 энергия пучка на практике определяется по частоте ВЧ-генератора с весьма низкой точностью (порядка 100–200 кэВ). Для более точного определения энергии падающего на мишень пучка нами было предложено [11] использовать различие в кинематике реакций при вылете различных частиц (протонов и альфа-частиц) из одной мишени ( $^{27}\text{Al}$ ), бомбардируемой протонами (рис. 6).

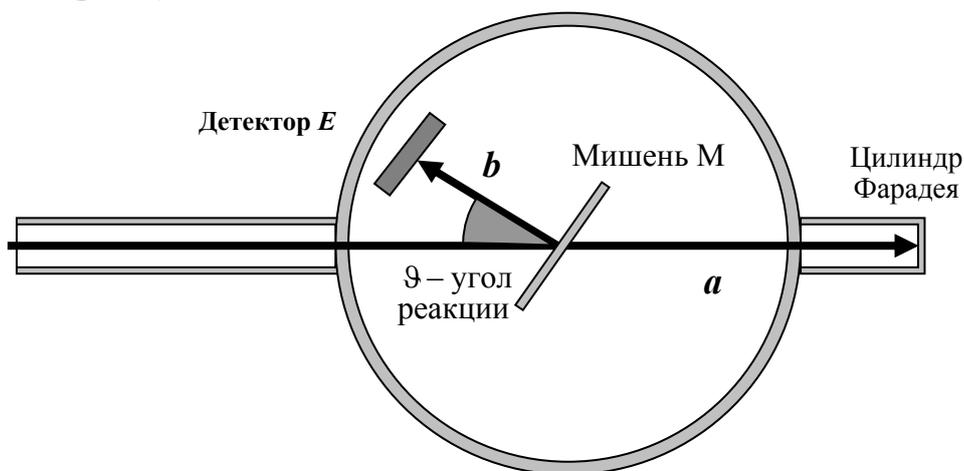


Рис. 6. Камера рассеяния для измерения энергии протонов от циклотрона.

В качестве мишени выбрана самоподдерживающаяся плёнка из алюминия толщиной менее 20 мкг/см<sup>2</sup>. Протоны из неупругого рассеяния <sup>27</sup>Al(*p*,*p'*) и альфа-частицы из реакции <sup>27</sup>Al(*p*, $\alpha$ )<sup>24</sup>Mg регистрировались детектором (Si), предварительно отградуированным по энергии (с использованием альфа-источников) и расположенным в области задних углов реакции, где наиболее существенны кинематические эффекты. Энергии протонов и альфа-частиц из реакций определяются выражениями:

$$E_{p'} = \left( \frac{m_p (\sqrt{E_p} \cdot \cos \vartheta \pm \sqrt{E_p \cdot \cos^2 \vartheta + (M + m_p) \cdot [M \cdot Q + (M - m_p) \cdot E_p]})}{M + m_p} \right)^2,$$

$$E_\alpha = \left( \frac{\sqrt{m_p \cdot m_\alpha \cdot E_p} \cdot \cos \vartheta \pm \sqrt{m_p \cdot m_\alpha \cdot E_p \cdot \cos^2 \vartheta + (M + m_\alpha) \cdot [M \cdot Q + (M - m_p) \cdot E_p]}}{M + m_p} \right)^2.$$

В общем виде:

$$E_i = \left( \frac{\sqrt{m_p \cdot m_o \cdot E_p} \cdot \cos \vartheta \pm \sqrt{m_p \cdot m_o \cdot E_p \cdot \cos^2 \vartheta + (M + m_o) \cdot [M \cdot Q_i + (M - m_p) \cdot E_p]}}{M + m_o} \right)^2.$$

Здесь  $E_p$  – энергия налетающих протонов,

$\vartheta$  – угол реакции,

$E_i$  – энергия вылетающей частицы,

$m_o$  – масса вылетающей частицы,

$Q_i$  – энергия реакции,

$M$  – масса конечного ядра в основном состоянии.

Правые части выражений, которые являются функциями двух параметров ( $E_p$  и  $\vartheta$ ), приравнивались значениям энергий, измеренным полупроводниковым детектором ( $E_i^{\text{exp}}$ ).

$$\left( \frac{\sqrt{m_p \cdot m_o \cdot E_p} \cdot \cos \vartheta \pm \sqrt{m_p \cdot m_o \cdot E_p \cdot \cos^2 \vartheta + (M + m_o) \cdot [M \cdot Q_i + (M - m_p) \cdot E_p]}}{M + m_o} \right)^2 = f_i(E_p, \vartheta) = E_i^{\text{exp}}.$$

Для определения неизвестных  $E_p$  и  $\vartheta$  использовали метод наименьших квадратов, при котором обеспечивался минимум функционала

$$L = \sum_i [f_i(E_p, \vartheta) - E_i^{\text{exp}}]^2 \cdot w_i,$$

где  $w_i$  – статистический вес, определяемый погрешностями измерения энергии вылетающих частиц и значений энергий реакций  $Q_i$ .

Минимизация функционала осуществлялась методом Ньютона, когда функцию разлагали в ряд Тейлора в окрестности некоторого начального решения  $E_{p0}$  и  $\vartheta_0$ , ограничиваясь только линейными членами разложения. При этом исходный функционал заменяется на:

$$L_1 = \sum_i \left[ f_i(E_{p0}, \vartheta_0) + \frac{\partial f_i}{\partial E_p} \Big|_0 \cdot \Delta E_p + \frac{\partial f_i}{\partial \vartheta} \Big|_0 \cdot \Delta \vartheta - E_i^{\text{exp}} \right]^2 \cdot w_i.$$

В точке минимума частные производные от функционала  $L_1$  должны обращаться в ноль. После простых преобразований получаем систему линейных уравнений относительно приращений параметров  $\Delta E_p$  и  $\Delta \vartheta$ .

$$\begin{cases} \sum_i \frac{\partial f_i}{\partial E_p} \cdot \frac{\partial f_i}{\partial \vartheta} \cdot w_i \cdot \Delta E_p + \sum_i \left( \frac{\partial f_i}{\partial E_p} \right)^2 \cdot w_i \cdot \Delta \vartheta = \sum_i (f_i(E_{p0}, \vartheta_0) - E_i^{\text{exp}}) \cdot \frac{\partial f_i}{\partial E_p} \cdot w_i \\ \sum_i \left( \frac{\partial f_i}{\partial \vartheta} \right)^2 \cdot w_i \cdot \Delta E_p + \sum_i \frac{\partial f_i}{\partial E_p} \frac{\partial f_i}{\partial \vartheta} \cdot w_i \cdot \Delta \vartheta = \sum_i (f_i(E_{p0}, \vartheta_0) - E_i^{\text{exp}}) \cdot \frac{\partial f_i}{\partial \vartheta} \cdot w_i \end{cases}$$

Найденные значения используются для второго приближения, то есть вместо  $E_{p0}$  и  $\vartheta_0$  подставляем в функцию  $E_{p0} + \Delta E_p$  и  $\vartheta_0 + \Delta \vartheta$  и снова решаем систему. И так далее. Решения будут сходиться, если начальные значения заданы достаточно близко к истинным значениям.

По предложенному алгоритму была составлена программа автоматизированного нахождения энергии падающих протонов и угла реакции, а также погрешности их определения.

В области энергий, принимаемой детектором (область градуировки по альфа-источникам), при энергии падающих протонов 8–10 МэВ регистрируются группы протонов и альфа-частиц (табл. 4)

Таблица 4. Ядерные реакции, использованные при энергетической калибровке и соответствующие энергии возбуждения конечных ядер и энергии реакций

Реакция	Энергия возбуждения, кэВ	Энергия реакции, кэВ
$^{12}\text{C}(p,p_1)^{12}\text{C}$	4439,2(0,3)	-4439,2(0,3)
$^{27}\text{Al}(p,p_{13})$	4811,7(0,6)	-4811,7(0,6)
$^{27}\text{Al}(p,p_{12})$	4580,0(0,8)	-4580(2)
$^{27}\text{Al}(p,p_{11})$	4510,3(0,5)	-4510,3(0,5)
$^{27}\text{Al}(p,p_{10})$	4410,2(0,4)	-4410,2(0,4)
$^{27}\text{Al}(p,p_8)$	3956,8(0,4)	-3956,8(0,4)
$^{27}\text{Al}(p,p_7)$	3677,8(1,0)	-3677,8(1,0)
$^{27}\text{Al}(p,\alpha_3)$	4233(7)	-2638 (1,1)
$^{27}\text{Al}(p,\alpha_2)$	4122,66(13)	-2522,4(1,1)
$^{27}\text{Al}(p,\alpha_1)$	1368,57(0,04)	231,8(1,1)
$^{27}\text{Al}(p,\alpha_0)$	0	1600,4(1,1)

Измеренные значения энергий для нескольких групп протонов неупругого рассеяния и альфа-частиц из реакций позволяют определить энергию падающих протонов (то есть протонов от циклотрона) с точностью до 5 кэВ в области энергий 8–10 МэВ. Данные, полученные в результате измерений при нескольких энергиях, позволили уточнить связь между энергией частиц в МэВ от циклотрона и частотой ( $f$ ) ВЧ генератора в МГц ( $E_p = 0,0413 \cdot f^2$ ).

## 6. Работа циклотрона на мишень [12]

Основная область использования циклотрона Радиового института – производство медицинских радиоизотопов, и, главным образом,  $^{123}\text{I}$ , который получается при облучении протонами мишени, содержащей диоксид  $^{123}\text{Te}$ . В данной работе на примере производства  $^{123}\text{I}$  с использованием теллуровой мишени делаются оценки параметров пучков циклотрона, занятого производством изотопов для медицинских нужд.

В качестве мишеней для обеспечения высокого качества и большего выхода конечного продукта используются материалы с высоким обогащением стартового элемента, то есть высокой стоимости. Поэтому необходимо обеспечивать сохранность материала мишени на всех стадиях технологического процесса получения конечного продукта, в том числе и во время облучения.

Мишень представляет собой платиновую тарелочку, заполненную диоксидом  $^{123}\text{Te}$ . С обратной стороны платиновая тарелочка охлаждается проточной водой. Со стороны пучка перед мишенью образуется полость между алюминиевой фольгой (отделяющей вакуумный объём ионопровода) и диоксидом теллура, которая заполняется гелием.

Пучок протонов используется для проведения ядерной реакции, превращающей  $^{123}\text{Te}$  в  $^{123}\text{I}$ . Вероятности процессов взаимодействия протонов с веществом таковы, что основная доля энергии пучка тратится на ионизацию вещества мишени и в конечном итоге переходит в тепло. Тепловая энергия из мишени отводится через платиновую тарелочку в воду, так как диоксид теллура наплавлен на дно и боковые стенки тарелочки, а дно тарелочки непосредственно охлаждается интенсивным потоком воды.

Как показывают расчёты, в диоксиде теллура выделяется чуть меньше половины энергии пучка протонов, то есть примерно 100 Вт. Хотя основные потери энергии в диоксиде теллура происходят на границе с платиной, основная доля тепла остаётся на входе пучка протонов в мишень, поскольку теплопроводность гелия примерно в 30 раз меньше, чем у платины.

Наш многолетний опыт показал, что при средней плотности тока пучка 7,5–8 мкА/см<sup>2</sup> можно длительное время пользоваться мишенью без заметной потери диоксида теллура. Однако, если мишень облучать не часами, а несколько минут, то среднюю плотность тока пучка на мишени можно увеличить в 1,5 раза. При таком облучении потери материала мишени не происходит. Это, на первый взгляд, странно, потому что тепловое равновесие в мишени устанавливается примерно за секунду (для нашей конструкции мишени) и, казалось бы, тепловое состояние мишени должно быть одинаковым через минуты и через часы. Согласно оценкам, тепловой поток от мишени через гелий составляет менее 10 % от потока тепла через диоксид теллура и подложку в воду. С другой стороны, опыт показывает, что применение гелиевого заполнения мишенной камеры позволяет увеличить плотность тока пучка на мишени

без заметной потери диоксида теллура. Это можно объяснить, например, если учесть процесс кристаллизации диоксида теллура в мишени.

После приготовления мишени диоксид теллура в тарелочке представляет собой смесь аморфного вещества и небольших кристаллов, сформировавшихся не полностью и крепко сплавленных с аморфной частью мишени. Во время облучения существующие кристаллы растут и оформляются более полно, а также возникают новые кристаллы. Поскольку плотность вещества в кристаллической фазе выше, чем в аморфной, то при оформлении кристаллов диоксид теллура более плотно располагается в них, а рядом с ними образуются свободные полости. Если позволить этому процессу идти до полного завершения, то мишень будет представлять собой рыхлое нагромождение плотных кристаллов. Распределение температур в такой рыхлой мишени будет иным, чем в однородной аморфной мишени. В случае рыхлой мишени гелиевое заполнение камеры является гелиевым заполнением полостей в мишени. Очевидно теплопроводность мишени с полостями, заполненными гелием, выше, чем в случае вакуума между кристаллами.

Если скорость роста кристаллов имеет решающее значение, то роль более равномерного распределения тока пучка на мишени очень велика. Очевидно, что совершенно необходимо иметь возможность воздействия на это распределение.

### ***6.1. Распределение пучка по сечению***

Распределение пучка по сечению зависит от режима работы циклотрона (от внутренней фокусировки) и от настройки квадрупольных линз и корректоров ионопровода. При настройке циклотрона и ионопровода оператор стремится к тому, чтобы потери пучка в камере циклотрона и в ионопроводе были бы минимальными. При такой настройке в распределении пучка по сечению формируется острый максимум плотности тока. Плотность тока в максимуме может быть в 4–10 раз выше средней. Если такой остросфокусированный пучок вывести на мишень, то либо мишень сгорит, либо придется установить пучок очень малой интенсивности и получить очень мало нужного изотопа. Поэтому прибегают к развертке пучка по сечению, воздействуя на пучок переменным магнитным полем. Мы длительное время разворачивали пучок вращающимся магнитным полем от статора асинхронного двигателя. Ток в статоре выбирали таким, чтобы половина тока пучка попадала на мишень диаметром 1 см, а другая половина уходила на диафрагму. В этом случае плотность тока пучка на мишени в пределах максимума диаметром 3 мм получалась в 3–4 раза выше средней. Размер пучка на мишени получается более 1 см. Такая развертка пучка создаёт условия для длительного облучения мишени средним током 6–6,5 мкА.

Впоследствии мы заменили развертку пучка вращающимся полем строчно-кадровой разверткой.

Наибольший эффект «размазывания» пучка нам удалось достичь за счёт дополнительного применения рассеивающей алюминиевой фольги, размещённой на расстоянии 30 см от мишени по аналогии с предложением [13].

На ионопроводе от циклотрона установлены сканеры пучка разработки НИИЭФА. Несмотря на некоторую капризность, это весьма полезные устройства при оценке формы пучка. Однако сканеры не могут служить оперативными устройствами для контроля за плотностью тока пучка на мишени.

## 6.2. Измерения профиля пучка

Когда мы заинтересованы в применении пучка большой интенсивности, очень важно знать распределение пучка по поверхности мишени. «Острый» пучок ведет к появлению горячего пятна на мишени и к плавлению дорогого материала при относительно малой величине тока пучка. Существует множество способов исследования профиля пучка при высоких энергиях (см., например, работу [14]). Однако очень трудно осуществлять постоянный контроль формы пучка (во время облучения) для низкой энергии заряженных частиц.

Нами было разработано устройство, которое может быть использовано для определения формы пучка перед облучением и во время облучения (с коротким перерывом на измерение). Основная часть устройства представляет собой диск с набором отверстий (рис. 7). Малые отверстия (две серии по 13 отверстий 1,2 мм в диаметре) расположены с интервалом  $10^\circ$  относительно оси вращения диска и через 1,2 мм по линиям радиусов. Два отверстия имеют диаметр 14 мм, что даёт возможность измерять ток всего пучка. Шаговый двигатель используется для вращения диска через  $1^\circ$ . Вращение диска позволяет исследовать форму пучка 14 мм в диаметре. Гелиевое охлаждение диска позволяет принимать протонный пучок до 6 мкА. Ток пучка, проходящий через диск, измеряется цилиндром Фарадея. Мы получили интересные результаты уже во время первых же предварительных испытаний (рис. 8–10).

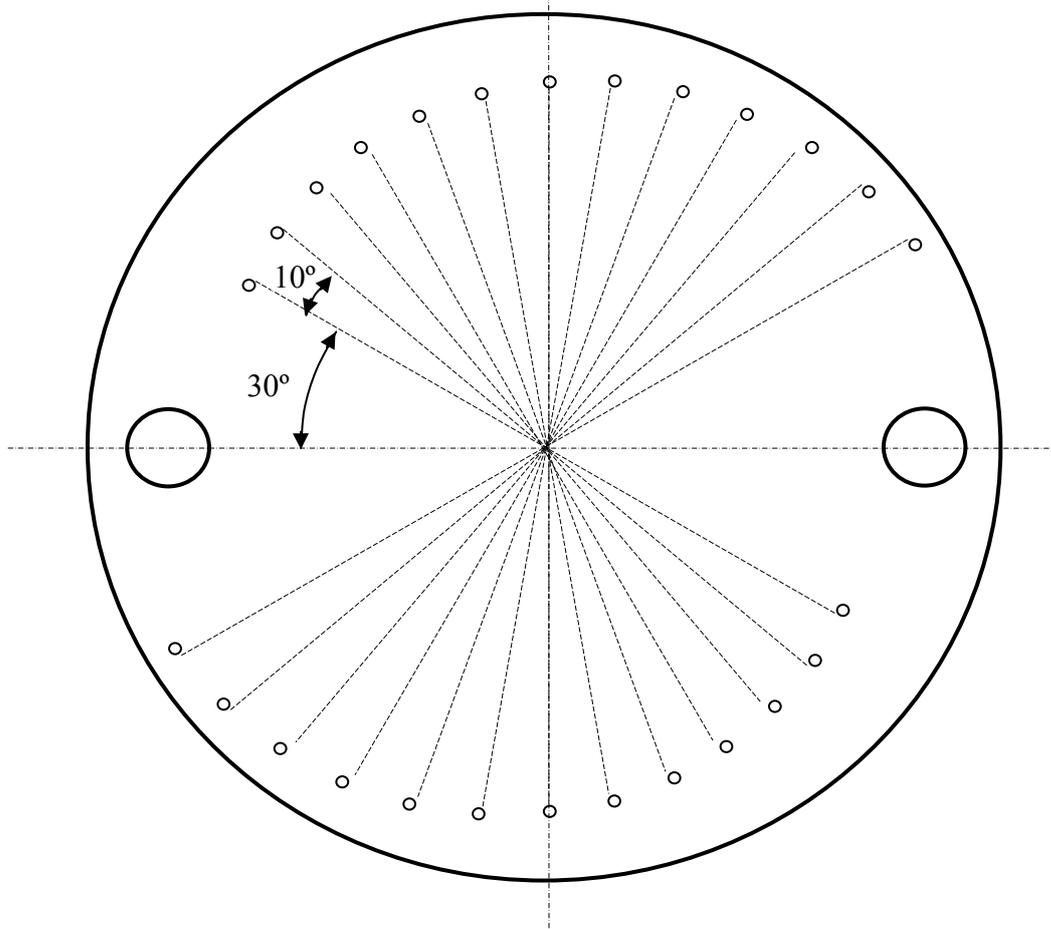


Рис. 7. Схема диска, используемого в устройстве измерения профиля пучка.

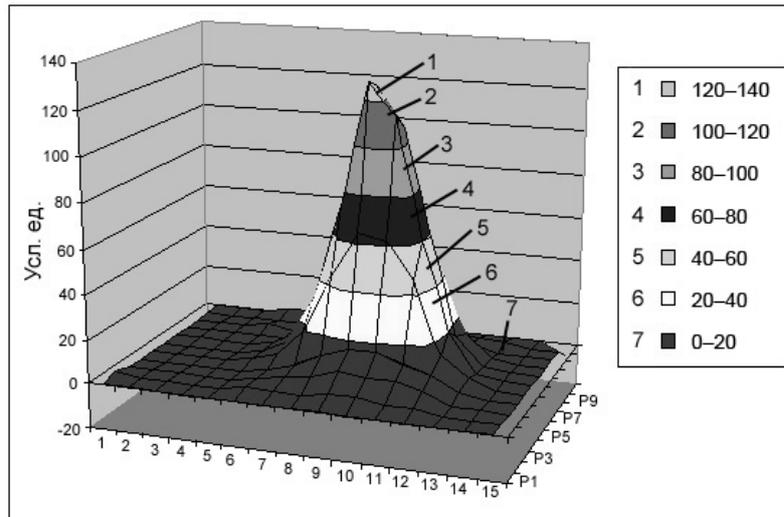


Рис. 8. Вид распределения пучка по сечению вблизи мишени без развертки.

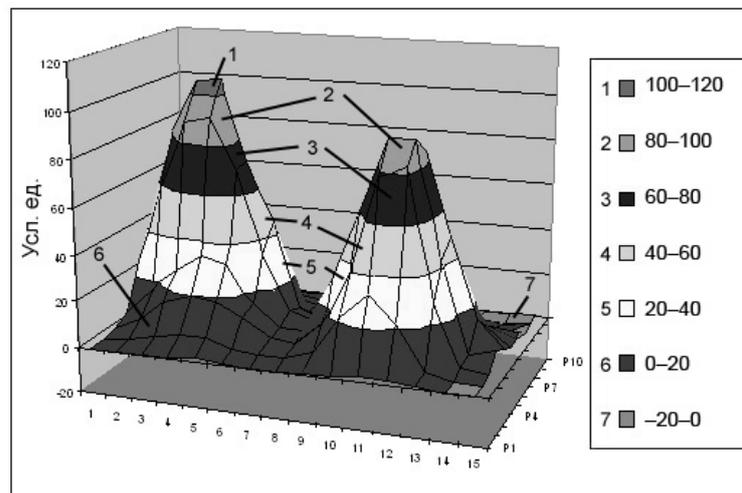


Рис. 9. Вид распределения пучка по сечению вблизи мишени с разверткой вращающимся полем. —

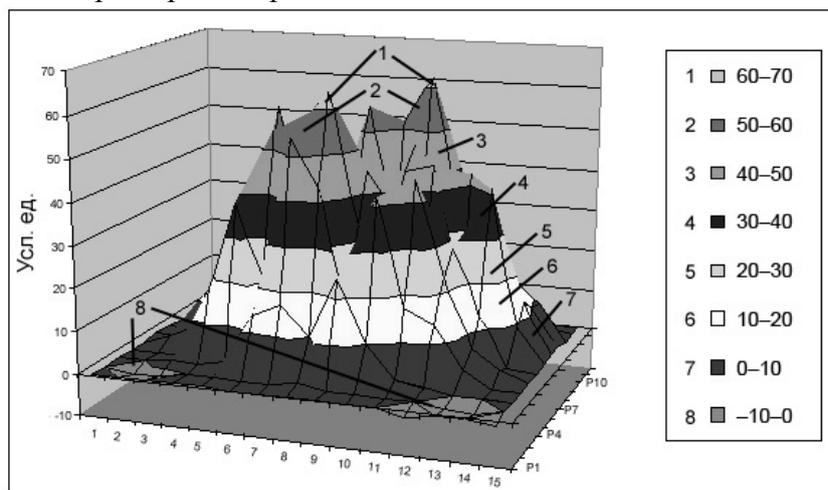


Рис. 10. Вид распределения пучка по сечению вблизи мишени с разверткой сканирующим полем.

Ограниченность величины принимаемого тока и быстрая активация диска (молибден) не позволили его применять в рутинных измерениях, однако, как показали эксперименты с применением данного метода, возможно получение более детальной информации о структуре пучка, чем с применением стандартных проволочных сканеров, интегрирующих пучок в одном направлении.

## **7. Исследования энергетического разброса пучка**

Хорошо известно, что циклотронный пучок имеет энергетический разброс хуже, чем тандем. Мы исследовали зависимость энергетического разрешения от таких факторов, как параметры ионного источника, напряжение на дуантах, скважность и т. д. Как оказалось, ток дуги, скважность и настройка системы транспортировки пучка являются наиболее важными. Увеличение тока дуги приводит к увеличению энергетического разброса. С уменьшением скважности уменьшается энергетический разброс. Нам удалось получить энергетический разброс порядка 0,03 %, что позволило использовать пучок в фундаментальных исследованиях без магнитного монохроматора.

## **8. Исследование возможностей ускорения отрицательных ионов водорода на циклотроне МГЦ-20**

### **8.1. Введение**

Проблема вывода пучка из циклотрона может быть упрощена с использованием для ускорения отрицательных ионов водорода [15]. Использование пучков отрицательных ионов водорода в циклотронах приводит к важным улучшениям характеристик. Если мы ускоряем отрицательные ионы, то становится возможным вывод пучка с любого достаточно большого радиуса без дефлектора и магнитного канала. Очень тонкая фольга вводится на желаемый радиус, отрицательные ионы проходят фольгу, превращаются в положительные, кривизна траектории изменяется и протоны выводятся из поля циклотрона. Радиус вывода пучка (и энергия) могут быть изменены перемещением обдирочной фольги. Пучок выводится через краевое поле магнита со 100 %-ной эффективностью, что позволяет не только повысить к.п.д. ускорителя, но и улучшить радиационную обстановку в зале циклотрона.

Другое преимущество ускорения отрицательных ионов состоит в возможности получения более высокой энергии в пучке, чем номинальная, поскольку здесь нет необходимости в использовании дефлектора, ограничивающего энергию пучка.

Для того, чтобы ускорять отрицательные ионы водорода на циклотроне МГЦ-20 необходимо:

- 1) изменить полярности основного магнита, гармонических и концентрических обмоток;
- 2) заменить источник положительных ионов на источник отрицательных ионов;
- 3) изготовить обдирочные фольги и устройство для их перемещения по радиусу.

Кроме того, для измерения отрицательных токов необходим дополнительный пробник.

На первом этапе было проведено исследование возможности получения пучка отрицательных ионов на циклотроне МГЦ-20 без изменения конструкции источника ионов и пулера, за счёт оптимизации работы источника и магнитной системы.

## 8.2. Настройка пучка $H^-$ на внутренний пробник

Исследования возможности ускорения отрицательных ионов (без обдирочной фольги) проводили с использованием внутреннего пробника при энергиях протонов 8 и 10 МэВ. Магнитное поле для получения  $H^-$  должно быть близко к полю для положительных ионов, поэтому сначала проводили настройку ускорителя на протонах (внутренний пробник), затем изменяли полярности основного магнита, гармонических и концентрических обмоток и определяли максимум интенсивности отрицательного тока на внутреннем пробнике при изменении (увеличении) поля основного магнита. На следующем шаге проводили оптимизацию положения источника ионов; как оказалось, для достижения максимума необходимо было сместить источник (относительно положения источника для положительных ионов) примерно на 1,5 мм к центру симметрии. При работе в режиме отрицательных ионов обнаружено, что интенсивность пучка  $H^-$  зависит главным образом от трёх факторов:

- 1) тока дуги;
- 2) дуантного напряжения;
- 3) натекания газа в источник.

Кроме того, было получено распределение интенсивности пучка  $H^-$  по радиусу для энергий 10 МэВ. В результате исследований на первом этапе была достигнута интенсивность пучка  $H^- \sim 20$  мкА в непрерывном режиме работы циклотрона при токе дуги 1,8 А,  $U = 24$  кВ, натекании газа  $70 \text{ см}^3/\text{ч}$  и энергии протонов 10 МэВ.

## 8.3. Приготовление перезарядных фольг

Для целей перезарядки ионов в ускорителях используются тонкие фольги, главным образом из углерода. Изготовление обдирочных фольг не является простой задачей, поскольку необходимы фольги с толщинами  $20\text{--}40 \text{ мкг}/\text{см}^2$  и большим временем жизни при бомбардировке ионами. Кроме того, изготовление фольг затрудняется необходимостью иметь незамкнутые рамки, то есть открытый край фольги.

Методы изготовления углеродных фольг плотностью  $5\text{--}20 \text{ мкг}/\text{см}^2$  на кольцевых рамках для тандемов достаточно хорошо известны, например [16–18].

Среди них можно выделить четыре основных:

- 1) метод углеродной дуги;
- 2) метод испарения электронным пучком;
- 3) метод ионного покрытия;
- 4) техника крекинга этилена.

Общим для всех методов является использование подложек с полированной поверхностью, на которые наносится испарением в вакууме растворяемый в воде материал (как правило, соль  $\text{NaCl}$ ) и поверх последнего углеродный слой. Углеродные пленки снимаются с подложек методом флотации в дистиллированной воде (при растворении соли). Плавающая фольга поднимается на подводимые под них рамки.

Нами для получения фольг применялся метод углеродной дуги. В качестве подложки использовали стеклянные пластинки. Поверхность пластинок обрабатывали раствором бихромата калия ( $\text{K}_2\text{Cr}_2\text{O}_7$ ), азотной кислотой, а затем промывали спиртом. На поверхность стёкол методом испарения в вакууме наносили слой соли  $\text{BaCl}_2$  толщиной около 10 мкм. Подготовленные таким образом пластинки помещали в рабочий объём установки ВУП-4, предназначенной для вакуумного распыления материалов. Электрическая дуга образовывалась между двумя стержнями особо чистого графита. Расстояние от дуги до стекла 140 мм. Размер стекла  $60 \times 90$  мм. Со стекла углерод снимали на дистиллированную воду. Затем плёнки углерода с поверхности воды снимали на рамки. Для уменьшения поверхностного натяжения при снятии тонких плёнок (до  $40 \text{ мкг}/\text{см}^2$ ) на кольцевые рамки, как оказалось, лучше всего использовать инсулин.

Рамки для перезарядных фольг имеют размер окна  $22 \times 7 \text{ мм}^2$  и один незамкнутый край. Наличие незамкнутого края не позволило снимать плёнки с воды даже с

применением инсулина. Поэтому был опробован способ снятия фольг с воды при использовании тонкой вольфрамовой проволоки (диаметр 0,021 мм), замыкающей рамку. Таким способом были получены перезарядные фольги необходимого размера, используемые в последующих исследованиях. Недостатком данного метода является перехлест фольги вокруг проволоочки, однако это не сказывается на эффективности перезарядки.

#### **8.4. Оптимизация работы циклотрона при получении пучков протонов после перезарядной фольги**

Перед проведением работ по оптимальному выбору параметров ускорения  $H^-$  с использованием обдирочной фольги для перезарядки отрицательных ионов был выполнен расчёт траектории протонов, вылетающих из фольги, размещённой в устройстве, закреплённом на внутреннем пробнике. При этом осуществляется возможность перемещения обдирочной фольги по радиусу вдоль оси резонансной системы, а фланцованное отверстие на вакуумной камере, предназначенное для подсоединения устройства перемещения внутренней мишени, используется для ввода специального пробника измерения тока пучка протонов после перезарядки.

При разработке конструкции этого специального пробника были предусмотрены, во-первых, водяное охлаждение для отвода тепла и, во-вторых, возможность перемещения пробника по радиусу. Для ввода и вывода пробника вдоль радиуса изготовлен дополнительный фланец большой толщины (50 мм) с сальником, позволяющим удерживать специальный пробник в горизонтальной плоскости без перекоса (вылет пробника ~ 360 мм при полной длине 500 мм). Первую ламель внутреннего пробника циклотрона использовали в качестве опоры для устройства удержания рамки с перезарядной фольгой. Устройство изготовлено так, чтобы оно могло легко надеваться на первую ламель, не нарушая изоляции от второй ламели. Рамку с обдирочной фольгой вставляют в паз устройства без дополнительного крепления. Ток электронов, образующихся при обдирке ионов  $H^-$  на фольге, измеряют так же, как ток пучка протонов в обычном режиме – с первой ламели внутреннего пробника, но с изменением направления тока. Величина этого тока должна быть вдвое больше, чем при измерении тока пучка на специальном пробнике, поскольку с каждого иона обдирается два электрона.

Исследование работы циклотрона с регистрацией перезарядного пучка на специальном пробнике проводили с использованием в качестве обдирочной фольги углеродной пленки толщиной  $40 \text{ мкг/см}^2$  и площадью  $22 \times 7 \text{ мм}^2$ . Внутренний пробник устанавливали на радиусе 450 мм. Специальный пробник измерительным краем устанавливали на радиусе 500 мм, то есть так, чтобы, с одной стороны, не перекрывать пучок отрицательных ионов ускоряемых циклотроном, а, с другой стороны, принимать все протоны после перезарядной фольги.

Аналогично процедуре, описанной ранее, проводили настройку поля основного магнита и выбирали положение источника для обеспечения максимальной интенсивности. Были изучены зависимости тока пучка отрицательных ионов (точнее, тока пучка протонов после перезарядной фольги) от тока дуги (рис. 11), от энергии пучка (рис. 12), от скважности (рис. 13), от натекания газа и других параметров. Как показали эти исследования, для данной конструкции источника ионов нет оптимального режима, а именно, чем больше ток дуги, тем выше интенсивность пучка, и максимальная величина тока ограничена, по-видимому, уменьшением срока службы катодной нити источника. Все измерения проводили для скважности 10. Максимальная интенсивность 40 мкА достигнута для непрерывного режима работы, ток дуги 2 А, напряжение дуги 70 В, дуантное напряжение 25 кВ, натекание  $70 \text{ см}^3/\text{ч}$ . Близкие результаты были получены в совместной работе на циклотроне МГЦ-20 в г. Турку (Финляндия).

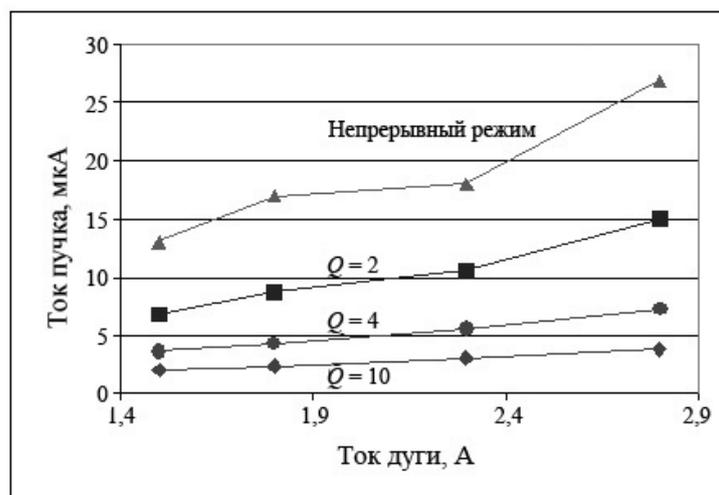


Рис. 11. Зависимость тока пучка отрицательных ионов от тока дуги при различной скважности  $Q$ .

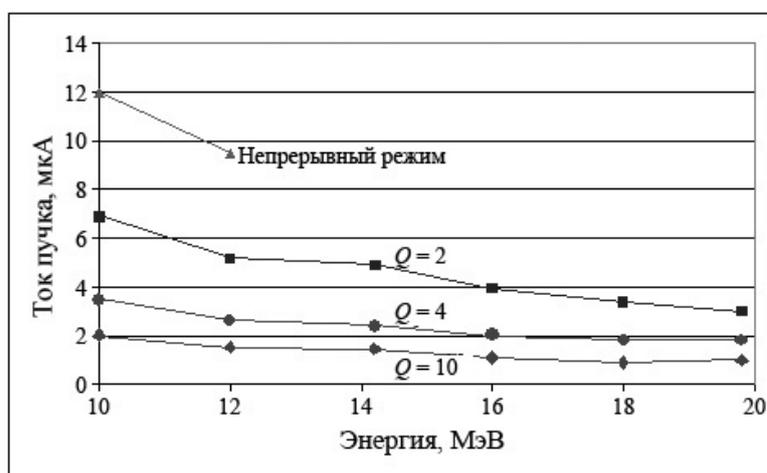


Рис. 12. Зависимость тока пучка отрицательных ионов от энергии протонов при различной скважности  $Q$  (ток дуги 2 А, дуантное напряжение 24 кВ).

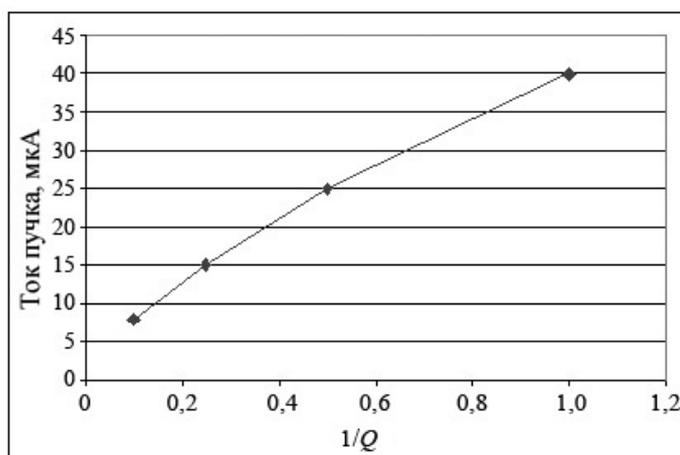


Рис. 13. Зависимость тока пучка от скважности (ток дуги 2 А, энергия 10 МэВ).

### **8.5. Выводы и заключение**

Проведённые исследования показали возможность получения достаточно интенсивных пучков отрицательных ионов водорода в области энергий 10–12 МэВ на циклотроне МГЦ-20. Максимальная интенсивность пучка, достигнутая в исследованиях, – 40 мкА. Стоит заметить, что достигнутая величина не является предельной, поскольку в работе использовался источник, разработанный для получения положительных ионов, а конструкции источников на отрицательные ионы существенно отличаются. Поэтому имеют перспективу работы по увеличению интенсивности, во-первых, при модификации конструкции имеющегося источника, и, во-вторых, при конструировании и изготовлении специального источника для отрицательных ионов.

Кроме того, полученные интенсивности пучков дают основания говорить об использовании пучков отрицательных ионов водорода от циклотрона МГЦ-20 в прикладных задачах, для чего необходимо осуществить вывод пучка из циклотрона, при этом существенно возрастают возможности ускорителя.

## **9. Предложение по модернизации циклотрона МГЦ-20 для производства терапевтических радионуклидов**

### **9.1. Введение**

Начало XXI века характеризуется стремительным ростом производства радиофармпрепаратов для терапии. Объясняется это уникальными возможностями воздействия бета-излучения, альфа-излучения и мягкого рентгеновского излучения на ткани опухолей, в том числе и злокачественных. Это воздействия, которые не только разрушают ткани опухоли, но и значительно ослабляют болевой синдром. Среди радионуклидов, используемых для синтеза терапевтических радиофармпрепаратов, есть и реакторные, и циклотронные. На циклотронах производят такие радионуклиды, как  $^{103}\text{Pd}$  и  $^{186}\text{Re}$ .  $^{103}\text{Pd}$  используется при лечении онкологии предстательной железы,  $^{186}\text{Re}$  – при лечении и снятии болевых синдромов онкологических заболеваний скелета и суставов. Для производства терапевтических радионуклидов необходимы ускорители нового поколения, то есть циклотроны с использованием пучков отрицательных ионов большой интенсивности (до сотен мкА выведенного пучка), такие, например, как Cyclon-30 или TR-30. В циклотроне МГЦ-20 ускоряются положительные ионы. Интенсивности выведенного пучка протонов не превышают 50 мкА. При таких интенсивностях не приходится рассчитывать на наработку достаточных количеств нуклидов для терапии.

### **9.2. Измерения эмитанса пучка протонов после выпуска из циклотрона**

Совместно с сотрудниками НИИЭФА было разработано техническое предложение, целью которого было проведение расчётных и проектных работ для определения возможностей ускорения на действующем циклотроне МГЦ-20 отрицательных ионов водорода с выведенным на внешнюю мишень током пучка до 300 мкА при максимальном использовании существующего оборудования.

Для подтверждения принципиальной возможности ускорения отрицательных ионов водорода на циклотроне МГЦ-20 был проведён комплекс расчётных, проектных и экспериментальных работ. Экспериментальные работы по ускорению отрицательных ионов водорода проводили на циклотроне МГЦ-20 Радиевого института им. В. Г. Хлопина (предыдущая глава). В этих экспериментах был использован стандартный источник ионов циклотрона МГЦ-20, а также стандартное оборудование циклотрона.

В результате был получен ток пучка отрицательных ионов водорода 40 мкА при конечной энергии 10 МэВ. Использование тонкой углеродной фольги в обдирочном устройстве обеспечило 100 %-ную эффективность выпуска пучка ускоренных протонов на внешнюю мишени циклотрона.

Для вывода пучка протонов после перезарядки были сделаны изменения в конструкции вакуумной камеры циклотрона Радиевого института. Специальный пробник теперь использовался для крепления перезарядной фольги. По предварительно рассчитанной траектории отклонённого пучка был построен канал выпуска, проходящий через вакуумный патрубок диффузионного насоса циклотрона, и создан короткий ионопровод (1,2 м) с устройствами (перемещаемая щель и пробник измерения тока) для измерения эмитенса выведенного пучка (рис. 14). Были проведены измерения эмитенса, который составил  $30 \text{ п}\cdot\text{мм}\cdot\text{мрад}$  и  $16 \text{ п}\cdot\text{мм}\cdot\text{мрад}$  для горизонтального и вертикального направлений соответственно.

При максимальном токе ускоренного пучка давление в камере циклотрона составляло  $(4-6)\cdot 10^{-6}$  торр.

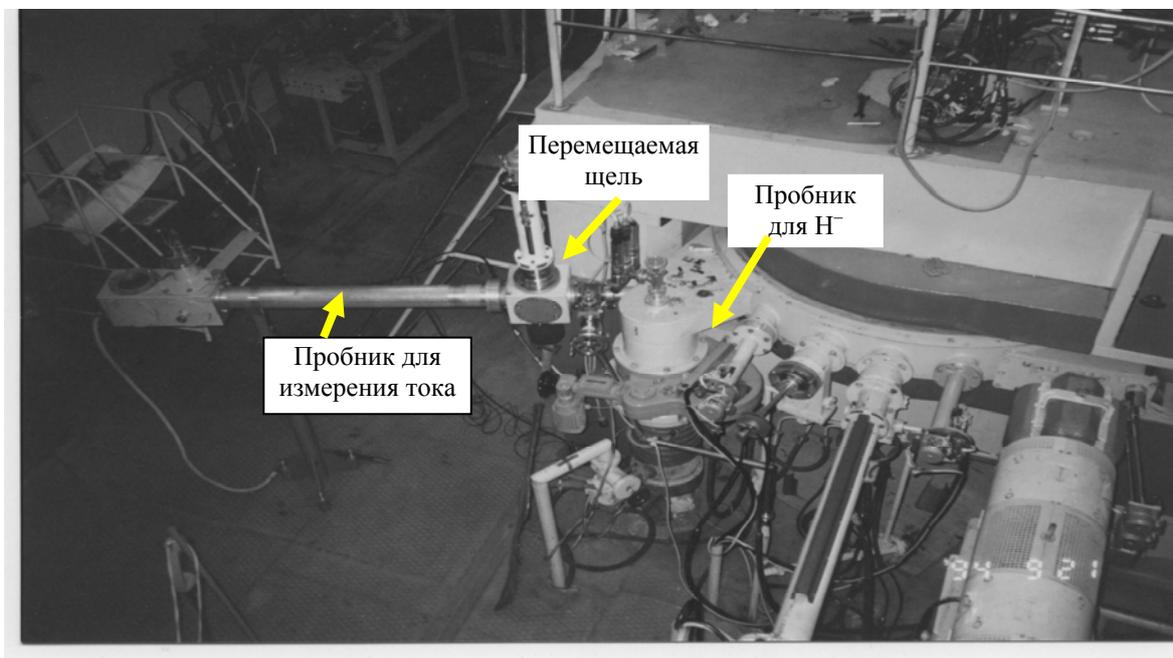


Рис. 14. Вывод пучка протонов после ускорения отрицательных ионов водорода в циклотроне МГЦ-20 Радиевого института для измерения характеристик.

### 9.3. Варианты выпуска пучков ионов после перезарядки для работы на мишенях

Проведенные расчёты и эксперименты показали, что на существующем циклотроне МГЦ-20 возможно ускорение отрицательных ионов водорода с интенсивностью до 300 мкА при использовании системы внешней аксиальной инжекции (САИ) и при улучшении вакуума в камере циклотрона.

На рис. 15 показаны два канала выпуска пучков ускоренных ионов, которые могут быть реализованы на циклотроне МГЦ-20 Радиевого института.

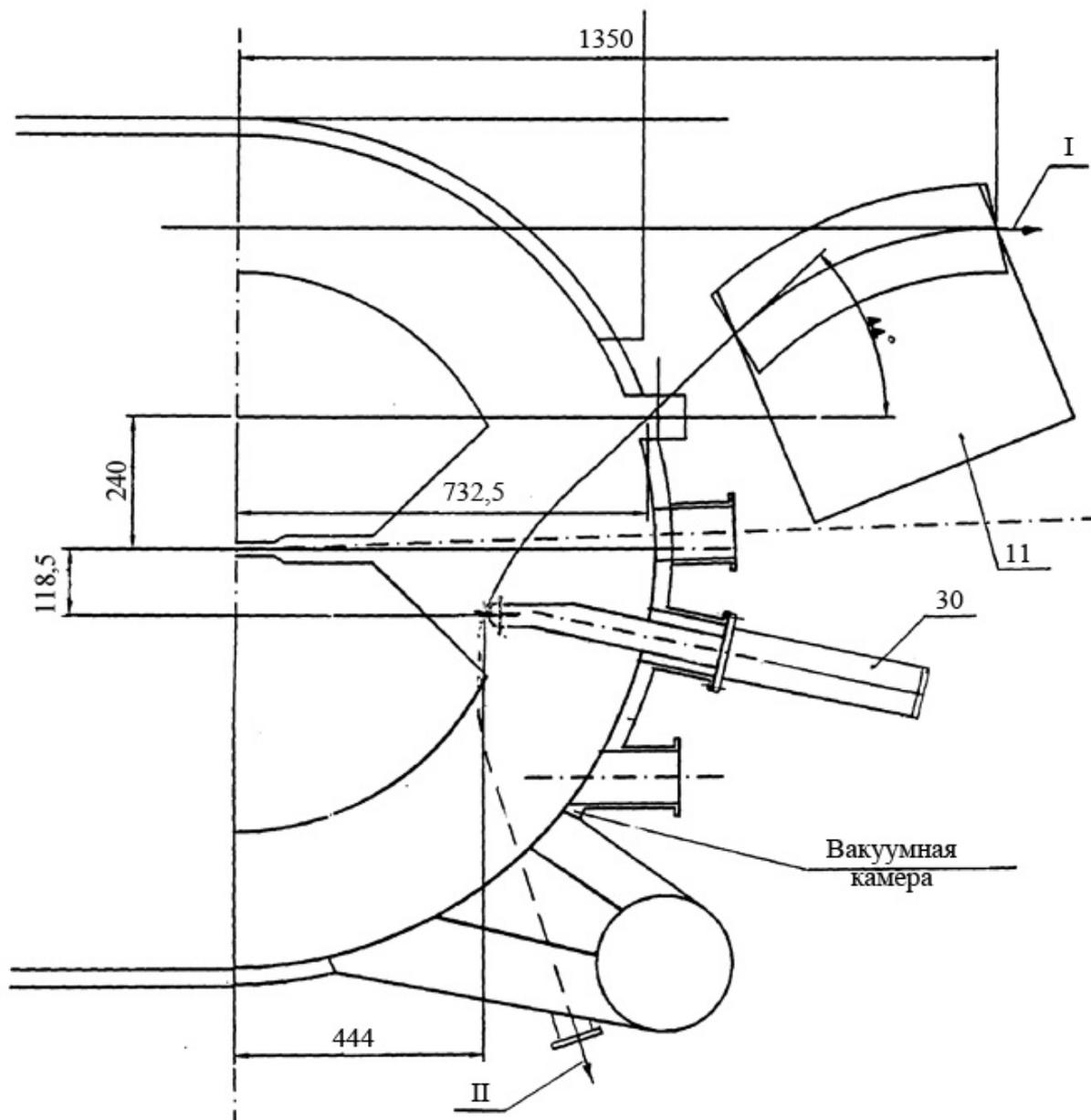


Рис. 15. Два варианта выпуска протонов после ускорения отрицательных ионов водорода для практического использования.

#### Канал выпуска пучка I.

Выпуск пучка ускоренных ионов производится через отверстие в вакуумной камере циклотрона с использованием дополнительно изготовленного поворотного электромагнита с последующим поворотом пучка в существующий канал транспортировки. При этом должен быть демонтирован канал транспортировки пучка «вверх» с поворотным электромагнитом-90°, а также проведена доработка существующей вакуумной камеры циклотрона.

#### Канал II.

На выходе выпускного патрубка (экспериментальный канал) устанавливается поворотный электромагнит, далее стандартный набор элементов, аналогичных каналу I. Канал транспортировки пучка II оканчивается коммутирующим электромагнитом с

присоединенными к нему внешними мишенными устройствами для наработки радионуклидов.

Основные характеристики ионного источника разрабатываемой НИИЭФА системы аксиальной инжекции (САИ) представлены ниже:

- ток пучка  $H^-$ , 3,0 мА
- энергия пучка  $H^-$ , 30 кэВ
- мощность накала, 0,15–0,25 кВт
- мощность разряда, 2,5 кВт
- производительность откачки, 3000 л/с

#### **9.4. Основные этапы работы по модернизации циклотрона МГЦ-20**

- Разработка и выдача технических заданий на проектирование оборудования.
- Изготовление и испытание оборудования.
- Монтаж оборудования.
- Наладка оборудования и ввод установки в эксплуатацию.

#### **9.5. Состав оборудования**

1. Система аксиальной инжекции, в том числе:
  - 1.1) источник ионов,
  - 1.2) камера дифференциальной откачки,
  - 1.3) вакуумный шибер,
  - 1.4) корректирующие электромагниты с системами питания,
  - 1.5) линза соленоидальная с системой питания,
  - 1.6) инфлектор,
  - 1.7) система вакуумной откачки САИ,
  - 1.8) система водоохлаждения САИ,
  - 1.9) ионопровод САИ.
2. Ионопровод для каналов транспортировки пучков I и II, включая стандартные электромагнитные, диагностические, измерительные элементы, системы вакуумной откачки и водоохлаждения.
3. Система стабильного электропитания САИ, электромагнитных элементов системы транспортировки пучков I и II каналов (с учетом имеющихся в наличии).
4. Система управления вновь вводимым комплексом циклотрона МГЦ-20 с внешней инжекцией.
5. Комплект запасных частей.
6. Комплект эксплуатационной документации.

#### **9.6. Разработка и изготовление мишенных устройств**

Проведение работ с высокоактивными мишенями потребует использования специальных мишенных устройств, которые бы обеспечивали эффективный отвод тепла (до 1,5 кВт) и автоматическую передачу облучённой мишени в горячую камеру. Кроме того, мишень при облучении должна находиться в специальном боксе, защищающем персонал, выполняющий профилактические работы на циклотроне, от воздействия излучения.

### **9.7. Обеспечение безопасной радиохимической работы**

Выделение из облучённой мишени целевого продукта высокой активности может производиться в «тяжёлых» боксах с использованием либо манипуляторов, либо роботов.

### **9.8. Выводы**

Проведённые исследования показывают, что для повышения интенсивности пучка протонов до 300 мкА на циклотроне МГЦ-20 в энергетическом диапазоне 5–18 МэВ с целью повышения его потребительских качеств необходимо провести модернизацию, основой которой является перевод циклотрона в режим ускорения отрицательных ионов водорода с использованием внешней инжекции пучка ионов. Создание двух-трех направлений вывода пучка позволит экономично использовать пучковое время, а обеспечение размазывания пучка на мишени высотой 15 мм обеспечит эффективность использования пучка. Все это позволит проводить наработку как диагностических, так и терапевтических радионуклидов в количествах, достаточных для северо-запада России. Кроме того, подобная модернизация позволит значительно уменьшить радиологическую нагрузку на персонал, работающий на циклотроне, так как повышается эффективность выведенного пучка и снижается радиационное загрязнение в помещениях циклотрона. Следует отметить, что на циклотроне в принципе можно будет ускорять отрицательные ионы других частиц.

При разработке настоящего технического предложения был использован опыт многолетней совместной работы коллективов НИИЭФА им. Д. В. Ефремова и Радиевого института им. В. Г. Хлопина при проведении научных исследований и эксплуатации циклотрона МГЦ-20. Реальное воплощение данного технического предложения позволит не только улучшить медицинские услуги для населения Санкт-Петербурга и области, но и эффективно проводить модернизацию уже построенных, действующих циклотронов МГЦ-20 у нас в стране и за рубежом.

### **Заключение**

Создание в Радиевом институте им. В. Г. Хлопина циклотронного комплекса в конце 80-х годов прошлого века явилось решающим фактором в организации производства радиофармпрепаратов на северо-западе России. Именно исследования на пучке протонов циклотрона МГЦ-20 Радиевого института позволили в 1990 г. впервые в стране организовать регулярное производство радиоизотопа  $^{123}\text{I}$  – одного из самых перспективных циклотронных радиоизотопов. Созданное производство требовало надежности в поставках радиофармпрепаратов медицинским учреждениям Ленинграда–Санкт-Петербурга. Поэтому необходимым условием поддержания работоспособности комплекса было проведение как исследовательских работ, так и работ по совершенствованию всех систем. Эти работы выполнялись сотрудниками Радиевого института в тесном контакте с сотрудниками НИИЭФА. Наиболее значимые работы: исследования магнитных полей циклотрона, совершенствование высокочастотной системы, исследования формы пучка протонов, исследования возможностей ускорения отрицательных ионов.

## Список литературы

1. Jongen Y. The Cyclone 30, a 30 MeV, High Intensity H-cyclotron for Radioisotope Production // 7<sup>th</sup> Conf. on Applied Accelerators. St. Petersburg, 1992.
2. Stevenson N. Construction and Operation of Cyclotrons for Medical Isotopes // EPAC-96. P. 249; A 30 MeV H-Cyclotron for Isotope Production / R. Baartman, K. L. Erdman, W. J. Kleeven, R. E. Laxdal, B. F. Milton, A. J. Otter, J. B. Pearson, R. L. Poirier, P. W. Schmor, H. R. Schneider, Q. Walker. TRIUMF, 4004 Wesbrook Mall, Vancouver, B.C., Canada VGT LA3; Ebc Industries Ltd., 7851 Alderbridge Way, Richmond, B.C.: Canada VGX 2A4.
3. Проспект Cyclotron Produced Radionuclides and Radiation Sources. Obninsk, Russia, 1998.
4. Краснов Н. Н. Состояние и перспективы производства радиоактивных изотопов для ядерной медицины на предприятии «Циклотрон» // Всерос. науч.-тех. конф. «Современные проблемы ядерной медицины и радиофармацевтики». Обнинск: ГНЦ РФ ФЭИ, 2002. С. 13.
5. Status Report of the Development of a Multi-mA Self-Extracted H<sup>+</sup>-Beam Cyclotron / S. Lucas, W. Kleeven, M. Abs, E. Poncelet, Y. Jongen IBA, Chemin du cyclotron, B-1348 Louvain-La-Neuve, Belgium. Current Performance of the Self-Extracting Cyclotron S. Lucas, F. Swoboda, IBA Radio-Isotopes, Av de l'Espérance, 1, 6220 Fleurus, Belgium; W. Kleeven, J.L. Delvaux, Y. Jongen. IBA, Chemin du Cyclotron, B-1348 Louvain-La-Neuve, Belgium; Application of Accelerators in Research and Industry. 17<sup>th</sup> Int. Conf. on the Application of Accelerators in Research and Industry. Denton, Texas 72, November 16, 2002. Melville, New York, 2003. P. 956–960.
6. Qaim S. M., Tarkanyi F. T., Oblozinsky P. et al. Charged-Particle Cross Section Database for Medical Radioisotope Production. Diagnostic Radioisotopes and Monitor Reactions // IAEA TECDOC-1211. Vienna, 2001. <http://www.nds.iaea.or.at/medical>.
7. Hermanne A., Sonck M., Fenyvesi A., Daraban L. Study on Production of <sup>103</sup>Pd and Characterisation of Possible Contaminants in the Proton Irradiation of <sup>103</sup>Rh up to 28 MeV // Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A. 2000. Vol. 170. P. 281.
8. Богданов П. В. и др. Параметры пучка 103-см компактного циклотрона // Тр. 5-го Всес. совещания по ускорителям заряженных частиц (Дубна, 5–7 октября 1976 г.). М.: Наука, 1978. Т. 1. С. 174.
9. Галаев А. Н., Галчук А. В., Крымов Е. Б. и др. Структура магнитного поля и система вывода пучка циклотрона 103-СМ // Электродинамическая аппаратура: сб. статей. Вып. 18. М.: Атомиздат, 1981.
10. Богданов П. В., Малышев И. Ф., Мудролюбов В. Г. и др. Резонансная система компактного изохронного циклотрона: препринт НИИЭФА А-0372. 1978.
11. Ninth National Conference on Application of Charged Particle Accelerators in Medicine and Industry: Abstracts. Russia, Saint-Petersburg, September 22–24, 1998. P. 111.
12. Лебедев Л. С., Солин Л. М., Некоторые особенности производства изотопов на циклотроне МГЦ-20 // X междунар. совещание по применению ускорителей заряженных частиц в промышленности и медицине: Тр. СПб., 1–4 октября 2001.
13. Soloviev D., Tamburella C., Ghyoot M., Beyer G.-J. Effect of the Beam Profile on the F-18-Fluoride Target Saturation Yield // Proc. Ninth Int. Workshop on Targetry and Target Chemistry. Turku, Finland, May 23–25, 2002. P. 17.
14. Ausset P., Bousson S., Gardes D. et al. Transverse Beam Profile Measurements for High Power Proton Beams // Proc. EPAC 2002. Paris, France, 2002. P. 245.

15. Rickey M. E., Smythe R. The Acceleration and Extraction of Negative Hydrogen Ions in the C.V.Cyclotron // Nucl. Instr. Meth. 1962. Vol. 18–19. P. 66–69.
16. Tait N. R. S., Tolfree D. W. L., Whitmell D. S., Armitage B. H. The Behavior and Physical Characteristics of Carbon Stripper Foils Prepared by Different Methods // Nucl. Instr. Meth. 1979. Vol. 163. P. 1–14.
17. Tait N. R. S., Tolfree D. W. L., Armitage B. H., Whitmell D. S. New Techniques for the Preparation of Long Lived Carbon Strippers under Heavy Ion Bombardment // Nucl. Instr. Meth. 1979. Vol. 167. P. 21–24.
18. Aaron W. S., Petek M., Zevenbergen L. A., Gibson J. R. Development and Preparation of Thin Supported Targets and Stripper Foils // Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A. 1989. Vol. 282. P. 147–132.

### **Radium Institute MGC-20 Cyclotron for Production of Medical Isotopes (Review)**

L. M. Solin

Use of cyclotrons in the field of nuclear medicine solves many current requirements, especially in the context of recent shutdown of many nuclear reactors that had been producing most of  $^{99m}\text{Tc}$  supply. Modern cyclotrons are charged particle accelerators with high beam intensity and with energy of 10–30 MeV. Highly demanded  $^{123}\text{I}$  is produced commercially in large quantities by 30 MeV proton cyclotrons, while use of <20 MeV proton accelerators has proved to be more economical for large cities or small countries. The present paper reviews the work carried out at the Radium Institute to upgrade and enhance the MGC-20 cyclotron, designed by Efremov Institute and used for more than 20 years to produce medical radioisotopes.

## Измерительный комплекс для контроля распределения бора в материале чехловых труб методами нейтронной радиографии

С. В. Хлебников<sup>1</sup>, А. А. Воронков<sup>1</sup>, М. В. Сафоненко<sup>1</sup>, В. А. Тренкин<sup>1</sup>, С. Г. Явщиц<sup>1</sup>,  
В. В. Кузьмин<sup>2</sup>, А. В. Лапшин<sup>2</sup>, П. С. Прудников<sup>2</sup>, В. М. Бойко<sup>2</sup>, С. В. Булкин<sup>2</sup>

<sup>1</sup> – ФГУП «НПО «Радиовый институт им. В. Г. Хлопина»», С.-Петербург

<sup>2</sup> – НТЦ «РИОН» – филиал ФГУП «НПО «Радиовый институт им. В. Г. Хлопина»», С.-Петербург

Методы нейтронной радиографии положены в основу разработанной в ФГУП «НПО «Радиовый институт им. В. Г. Хлопина»» экспериментальной промышленной установки «УР-Н», которая эксплуатируется в ОАО «Ижорские заводы». Установка позволяет осуществлять непрерывный контроль содержания <sup>10</sup>B в материале шестигранных чехлов для хранения ОЯТ, изготовленных из борсодержащей стали марки ЧС-82. Представлено описание составных элементов этой, на сегодняшний день единственной в мире, промышленной установки и обоснование методики выполнения измерений.

### Введение

Проблема дефицита мест хранения ОЯТ на АЭС является одной из самых острых в настоящее время. Увеличение вместимостей приреакторных бассейнов выдержки является наиболее дешёвым и технически простым решением данной проблемы.

ОАО «Ижорские заводы» совместно с ЦНИИТМАШ разработали и внедрили в промышленном масштабе шестигранные трубы из борированной стали марки ЧС-82 для ОТВС ВВЭР-1000. Эта работа позволила создать новый проект стеллажей уплотнённого хранения топлива (СУХТ) в бассейне выдержки ОЯТ с ВВЭР-1000 и внедрить его на российских и зарубежных АЭС. Для изготовления стеллажей уплотнённого хранения топлива (СУХТ) используются шестигранные трубы из борированной стали ЧС-82 ТУ 14-3-1630-89. Эти трубы на ОАО «Ижорские заводы» проходят контроль по поглощающей способности, которая определяется коэффициентом поглощения тепловых нейтронов их стенками.

Расчётное минимально допустимое значение коэффициента поглощения тепловых нейтронов для труб СУХТ равно 0,867.

Одной из наиболее важных характеристик борсодержащих материалов, обусловленных требованиями ядерной безопасности, является равномерность распределения бора-10 по объёму материалов. Тип структуры решётки стали является определяющим фактором для достижения требуемой равномерности распределения боридов в стали. Атомы бора концентрируются, в зависимости от типа стали, либо на границах зёрен, либо в промежутках между ними [1]. Использование существующих в настоящее время технологий выплавки борсодержащих сталей не позволяет обеспечить требуемую равномерность распределения бора по всему объёму заготовки (см., например, работу [2]), и для контроля качества требуется реальная проверка равномерности.

Использование нейтронов в радиографии имеет ряд преимуществ перед рентгеновскими лучами. Нейтронная радиография используется при неразрушающем контроле сварных швов и соединений материалов, при исследовании затвердевания бетона, для обнаружения микродефектов в материалах, а также для исследования в реальном времени распределения смазочных материалов в работающих механизмах или кипения жидкостей в трубах и сосудах.

Методы нейтронной радиографии положены в основу разработанной в ФГУП «НПО «Радиевый институт им. В. Г. Хлопина»» экспериментальной промышленной установки «УР-Н», которая предназначена для ОАО «Ижорские заводы». Установка позволяет осуществлять непрерывный контроль содержания  $^{10}\text{B}$  в материале шести-гранных контейнеров, изготовленных из борсодержащей стали марки ЧС-82.

Установка как по своему назначению (неразрушающий контроль изделий для реакторов, а также для хранения и транспортировки ОЯТ из борсодержащей стали), так и по принципу действия (измерение степени ослабления потока тепловых нейтронов при прохождении слоев материала), аналогична следующим зарубежным установкам:

1. Лабораторная установка NR II (Neutron Radiography station II) использовавшаяся в Atomic Institute of the Austrian Universities – TU Wien Stadionallee 2, A-1020 Vienna (Австрия). Установка смонтирована на пучке тепловых нейтронов исследовательского реактора TRIGA Mark II мощностью 250 кВт.
2. Лабораторная установка NEUTRA (NEUTron RAdiography) на ускорителе заряженных частиц в Paul Scherrer Institute (Швейцария), использующая один из выведенных пучков протонов с энергией 1 ГэВ для генерации нейтронов при облучении нейтронообразующей мишени.
3. Установка JEN-3, созданная при участии CEA (French Atomic Energy Commissariat). Портативная переносная установка «JEN-3» используется в ряде случаев в промышленности для качественного определения содержания естественного бора в отдельных участках образцов из аустенитной нержавеющей стали, которая выплавляется в австрийской сталеплавильной компании Böhler Bleche GmbH, Mürtzzuschlag, AUTRICHE. Указанная компания использует в процессе производства естественный бор в виде карбида бора, который добавляется в матрицу из стали. Однако установка JEN-3 не является радиографической системой [3].

### Установка УР-Н

Измерительная установка представляет собой шестиканальный радиометр плотности потока тепловых нейтронов, состоящий из шести идентичных блоков детектирования, построенных на стандартных нейтронных счётчиках СНМ-17. Сигналы от счётчиков преобразуются в стандартные сигналы для передачи. Система накопления и передачи информации построена на основе системы АСКРО – РИОН [4]. Она производит накопление по каждому каналу поступающих импульсов за установленные интервалы времени, формирует информационный пакет и передаёт данные в персональный компьютер (ПК). Кроме того, с целью повышения достоверности передачи данных, надёжности и защиты от случайных сбоя блок хранит в своей памяти все измерения последнего цикла. Полученные данные в ПК по окончании цикла измерения проверяются на достоверность и записываются в базу данных (БД). Эти данные после обработки программой представляются в виде гистограмм и таблиц. Схема установки представлена на рис. 1.

В состав установки УР-Н входят:

- облучатель на базе закрытого радионуклидного нейтронного источника типа ИБН-9;
- радиометр нейтронного излучения многоканальный – РН-6М;
- транспортное устройство, обеспечивающее поступательное движение исследуемого образца трубы (чехла) через кольцо из шести блоков детектирования радиометра РН-6М;

- транспортный контейнер для источника типа ИБН-9;
- элементы и узлы физической защиты нейтронного источника (устройство сигнальное; защитный чехол; блоки радиационной защиты);
- устройство для автоматизированного и дистанционного обслуживания процесса нейтронного сканирования исследуемой трубы (чехла);
- измерительно-информационный центр – ИЦ, состоящий из персонального компьютера типа IBM PC с программным обеспечением «ИНСПЕКТОР v.1.0.0».

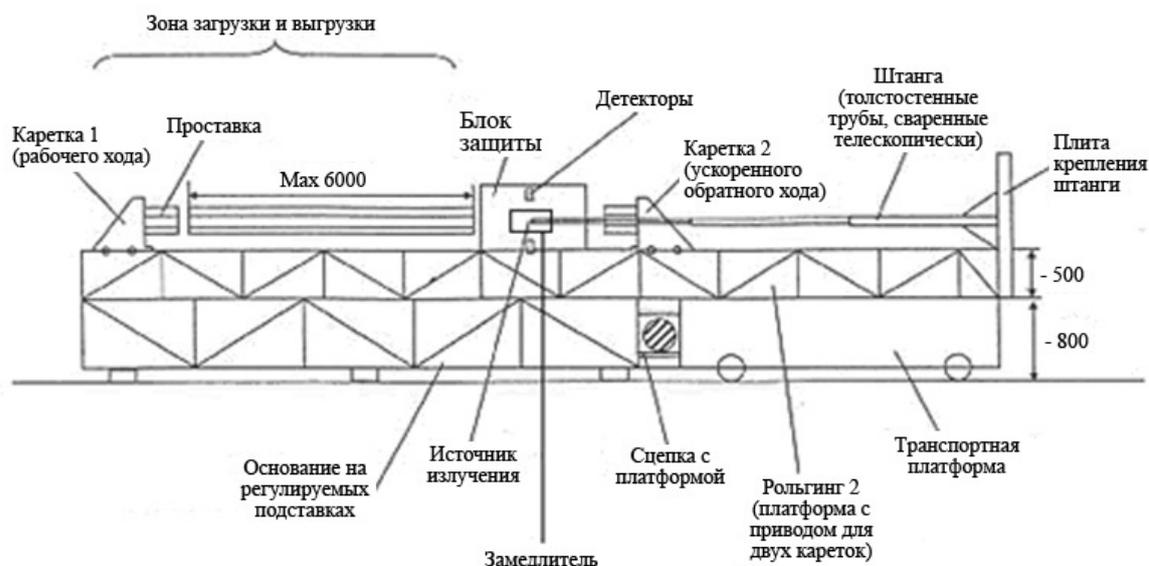


Рис. 1. Схема установки непрерывного контроля содержания  $^{10}\text{B}$  в материале шестигранных чехлов из борсодержащей стали ЧС-82.

### Технические характеристики

- Вид измеряемого излучения: нейтронное излучение источника типа ИБН-9.
- Мощность облучателя установки: активность плутоний–бериллиевого источника  $1,3 \cdot 10^{11}$  Бк (3,5 Ки).
- Номинальная мощность облучателя установки,  $\text{с}^{-1}$ :  $4 \cdot 10^6$  (быстрые нейтроны в телесный угол  $4\pi$  ср),  $1 \cdot 10^6$  (тепловые нейтроны в телесный угол  $4\pi$  ср).
- Коэффициент использования излучения облучателя не менее 20 %.
- Диапазон измеряемых значений коэффициента поглощения тепловых нейтронов в материале из бористой стали марки ЧС-82 –  $K_{\text{th}}$  составляет от 0,80 до 1,00.
- Основная относительная погрешность определения значения коэффициента поглощения тепловых нейтронов –  $K_{\text{th}}$  не более  $\pm 6,5$  %.
- Номенклатура шестигранных труб:

– шестигранные трубы из стали марки ЧС-38 – чехлы для уплотнённого хранения ядерного топлива в бассейнах выдержки атомных электростанций:

№№	Размер под ключ, мм	Длина, мм	Толщина стенки, мм	Масса, кг
1	$157 \pm 7$ %	3000	3,5	100
2	$257^{+2,0}_{-3,0}$	4300–4500	$6^{+2,0}_{-1,0}$	200

- Время установления рабочего режима установки не более 30 мин.
- Время непрерывной работы установки не менее 8 ч при питании от сети переменного тока.

- Время и число точек сканирования шестигранных труб:

№№	Размер под ключ, мм	Длина, мм	Время снятия показаний измерительного канала РН-6М, с	Время сканирования трубы, мин	Число точек сканирования трубы
1	$157 \pm 7 \%$	3000	5	14	171
			10		86
			15		57
2	$257^{+2,0}_{-3,0}$	4300–4500	5	21	257
			10		129
			15		86

- Скорость поступательного движения исследуемого образца на транспортном устройстве установки:  $2,0 \pm 0,5$  мм/с.
- Производительность установки:
  - не менее 7 труб/(рабочая смена) длиной 4500 мм,
  - не менее 10 труб/(рабочая смена) длиной 3000 мм.
- Грузоподъемность транспортирующего устройства установки не менее 250 кг.
- Максимальная потребляемая мощность установкой не превышает:
  - радиометром РН-6М – 300 Вт,
  - транспортирующим устройством ТУ – 200 Вт,
  - измерительно-информационным центром ИЦ – 500 Вт.
- Габариты установки, не более:
  - длина – 5220 мм
  - ширина – 2050 мм
  - высота – 750 мм, в том числе:
    - блока детектирования радиометра РН-6М –  $325 \times 100 \times 30$  мм;
    - шестигранной рамки –  $580 \times 505 \times 6$  мм;
    - блока УСПД –  $260 \times 120 \times 100$  мм.
- Масса блоков и устройств установки, не более:
  - блоки детектирования радиометра РН-6М в сборе – 6300 г,
  - блок УСПД – 4000 г.
- Установка имеет следующие показатели надёжности:
  - средняя наработка на отказ 4000 ч,
  - назначенный срок службы 6 лет,
  - среднее время восстановления не более 2 ч.

В состав детектирующей части входят: Pu–Be источник нейтронов в замедлителе, помещённый на оси сканируемой трубы, набор из счётчиков тепловых нейтронов, расположенных над измеряемыми гранями перпендикулярно направлению сканирования. Нейтроны от Pu–Be источника термализуются в водородсодержащем замедлителе. Оптимальную конфигурацию замедлителя определяли с помощью разработанной математической модели установки и серии контрольных экспериментов.

Исследовали различные конфигурации замедлителя (цилиндрическую, в виде шестигранной звезды – см. рис. 2 и далее). Цель – получить распределение плотности потока тепловых нейтронов вдоль оси счётчика, близкое к равномерному. Последнее требование обеспечивает одинаковую реакцию системы на место расположения дефекта по профилю грани исследуемого объекта. На рис. 3–5 показаны наиболее характерные зависимости указанной величины для разных конфигураций замедлителя.

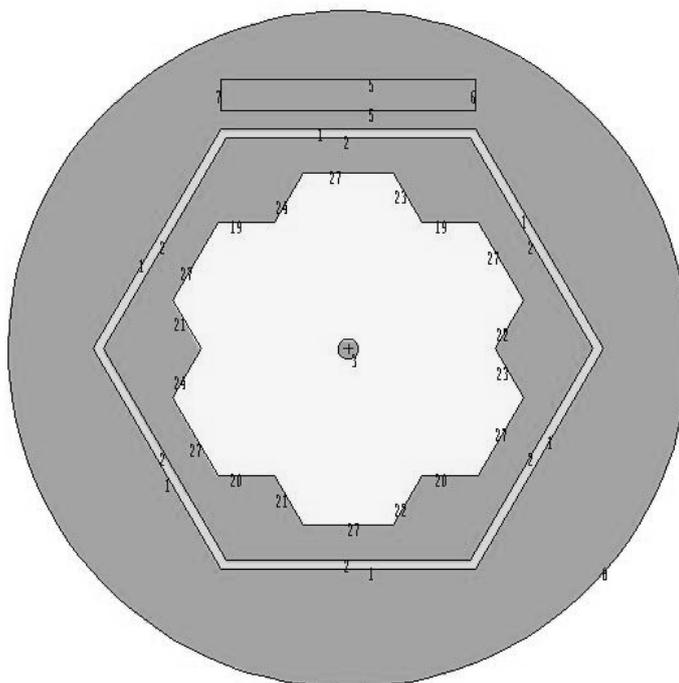


Рис. 2. Конфигурация замедлителя, отвечающая наибольшей равномерности нейтронного потока вдоль нейтронного счётчика (см. рис. 5).

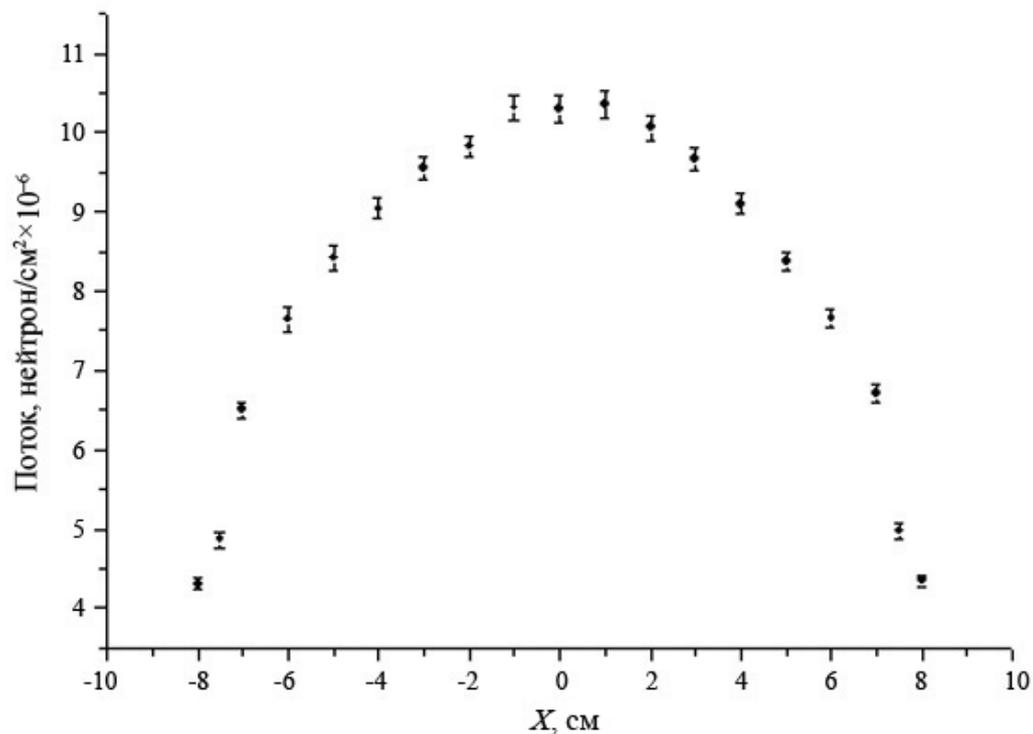


Рис. 3. Поток нейтронов вдоль оси счётчика  $X$  (начало отсчёта соответствует середине счётчика), расположенного параллельно грани трубы (и перпендикулярно оси трубы) на расстоянии 13,5 см от источника нейтронов (Pu-Be), находящегося на оси трубы (см. рис. 5, конфигурация 1). Замедлитель – цилиндр из полиэтилена радиусом 8,6, длиной 100 см.

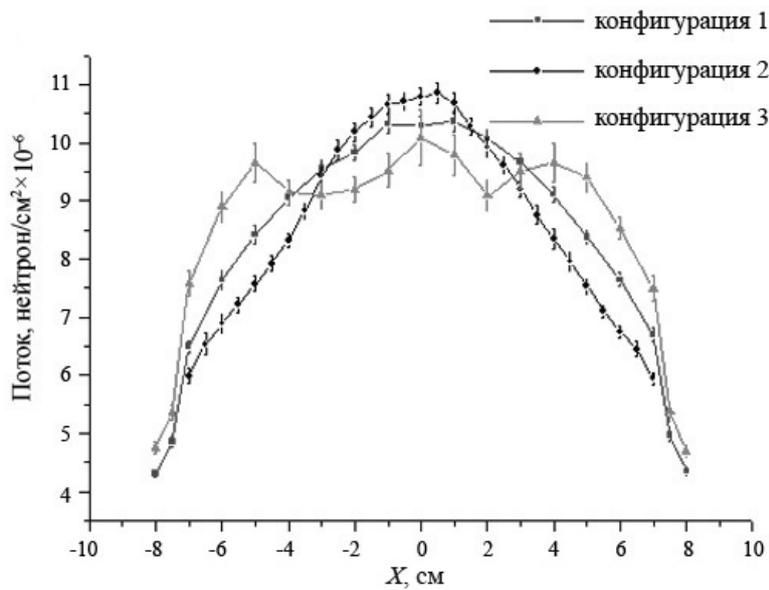


Рис. 4. Поток нейтронов вдоль оси счётчика  $X$  (как на рис. 2), расположенного параллельно грани трубы (и перпендикулярно оси трубы) на расстоянии 13,5 см от источника нейтронов (Pu-Be), находящегося на оси трубы.

Конфигурации замедлителя представлены на рис. 5.

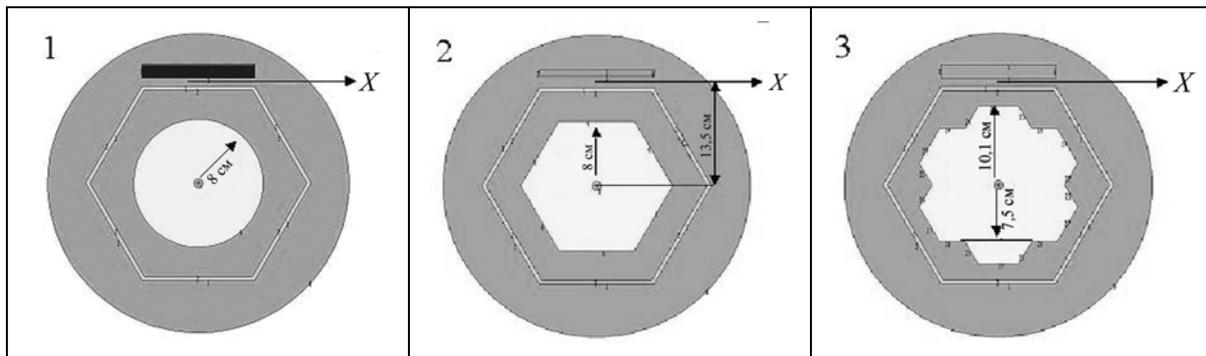


Рис. 5. Конфигурации замедлителя.

Система управления протяжкой исследуемых образцов – СУПО – предназначена для выполнения последовательности его перемещений через плоскость установки блоков детектирования радиометра в автоматическом и ручном режимах управления. В состав СУПО входят:

- частотные преобразователи, приводящие мотор-редукторы кареток установки УР-Н в движение с необходимыми скоростями и защищающие механизмы кареток от механических перегрузок;
- индикаторы и переключатели пульта управления – ПУ, реализующие диалог оператора с системой;
- датчики положения механических узлов установки УР-Н, в том числе рабочие и аварийные путевые выключатели кареток и защитной дверки камеры, которые непрерывно сообщают системе их текущие позиции;
- программируемый контроллер, который в ходе выполнения циклограммы сканирования исследуемого образца по сигналам кнопок и переключателей

пульта управления и датчиков положения изменяет управляющие сигналы частотных преобразователей;

- аварийное реле безопасности, которое независимо от контроллера сканирует состояния аварийных датчиков и ключей остановки/блокировки движения. Гарантированный останов кареток выполняется разрывом линий питания мотор-редукторов от частотных преобразователей СУПО при выбеге каретки за допустимые пределы, при закрытой защитной дверке измерительной камеры, при разъединённом разъёме мобильной части установки УР-Н, при нажатой кнопке экстренной остановки или при переводе системы оператором в режим ручного управления;
- резервные реверсивные пускатели с собственным источником питания и пультом управления, посредством которых оператор может перемещать каретки в режиме ручного управления.

### Устройство и работа радиометра

Радиометр состоит из следующих основных устройств:

- сети измерительных каналов, в состав каждого из которых входят блок детектирования, включающий счётчик типа СНМ-17 (ОТЗЗ 394.132 ТУ), источник высокого напряжения и блок преобразования импульсного сигнала в цифровой код;
- шестигранной рамки для размещения блоков детектирования при выполнении измерений плотности потока и/или переноса нейтронов при сканировании поверхности шестигранных труб в 2л-геометрии на определённом радиусе относительно точечного нейтронного источника типа ИБН-9;
- блока сбора и передачи информации с каждого измерительного канала типа УСПД на основе микропроцессора,
- помехозащищённого канала связи для передачи информации;
- персонального компьютера.

Блок-схема радиометра представлена на рис. 6.

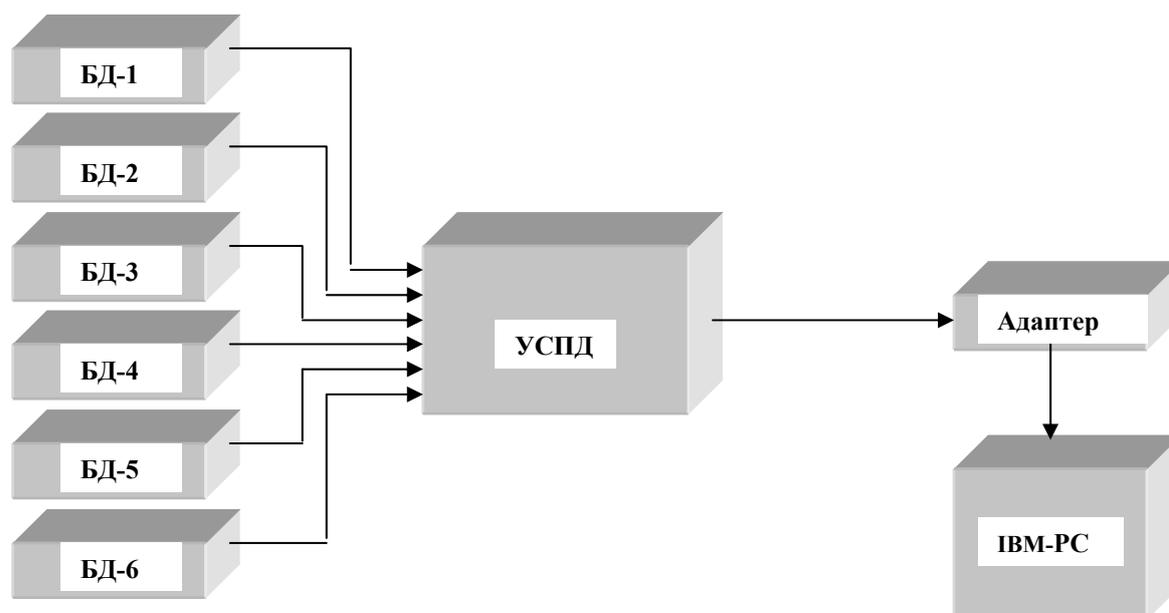


Рис. 6. Блок-схема радиометра многоканального РН-6М.

Блок детектирования радиометра конструктивно размещён в корпусе из алюминиевого сплава. На поверхности корпуса размещены метки, указывающие на эффективный центр счётчика СМ-17.

Принцип действия блока детектирования радиометра основан на преобразовании при помощи счётчиков типа СМ-17 плотности потока нейтронов в импульсную последовательность электрических сигналов, частота следования которых пропорциональна плотности потока тепловых нейтронов.

Шестигранная рамка выполнена из алюминиевого сплава, имеет симметрично расположенные посадочные места для корпусов блока детектирования радиометра и обеспечивает условия выполнения одновременных измерений в каждом из шести ( $\frac{2}{3} \pi$ ) секторов обзора.

Управление режимами работы радиометра, выполнение необходимых вычислений, хранение и индикация результатов измерений осуществляются с помощью специально разработанного программного продукта «ИНСПЕКТОР» v.1.0.0. Программное обеспечение радиометра реализует стандартные процедуры измерения случайных процессов [вычисление средних значений числа импульсов от блоков детектирования на заданном временном интервале и их среднеквадратических отклонений (коэффициента вариации)], оперативное отображение измерительной информации в различных видах на дисплее компьютера, процедуры тестирования и калибровки измерительных каналов, ввода параметров управления измерительным процессом, защиты от несанкционированного доступа к узлам, влияющим на метрологические характеристики радиометра, и т.д.

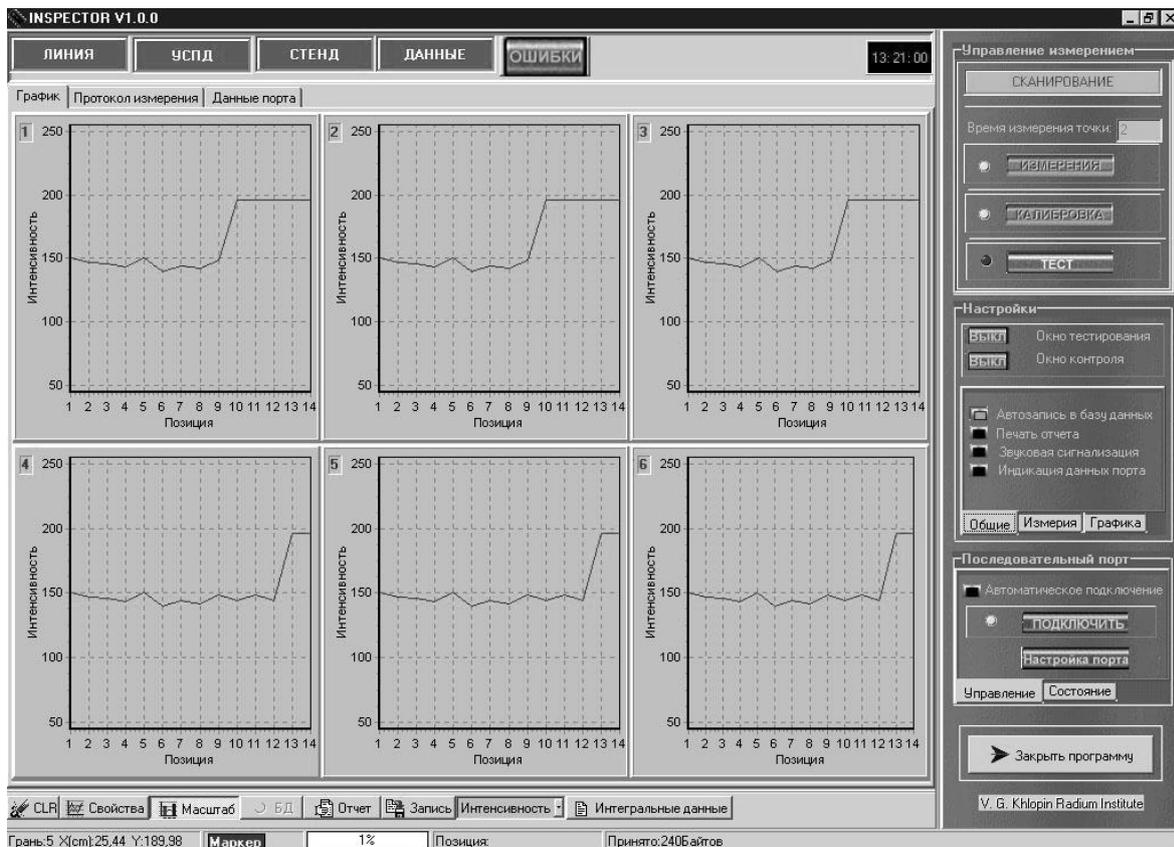


Рис. 7. Основное окно программного обеспечения «ИНСПЕКТОР» v.1.0.0.

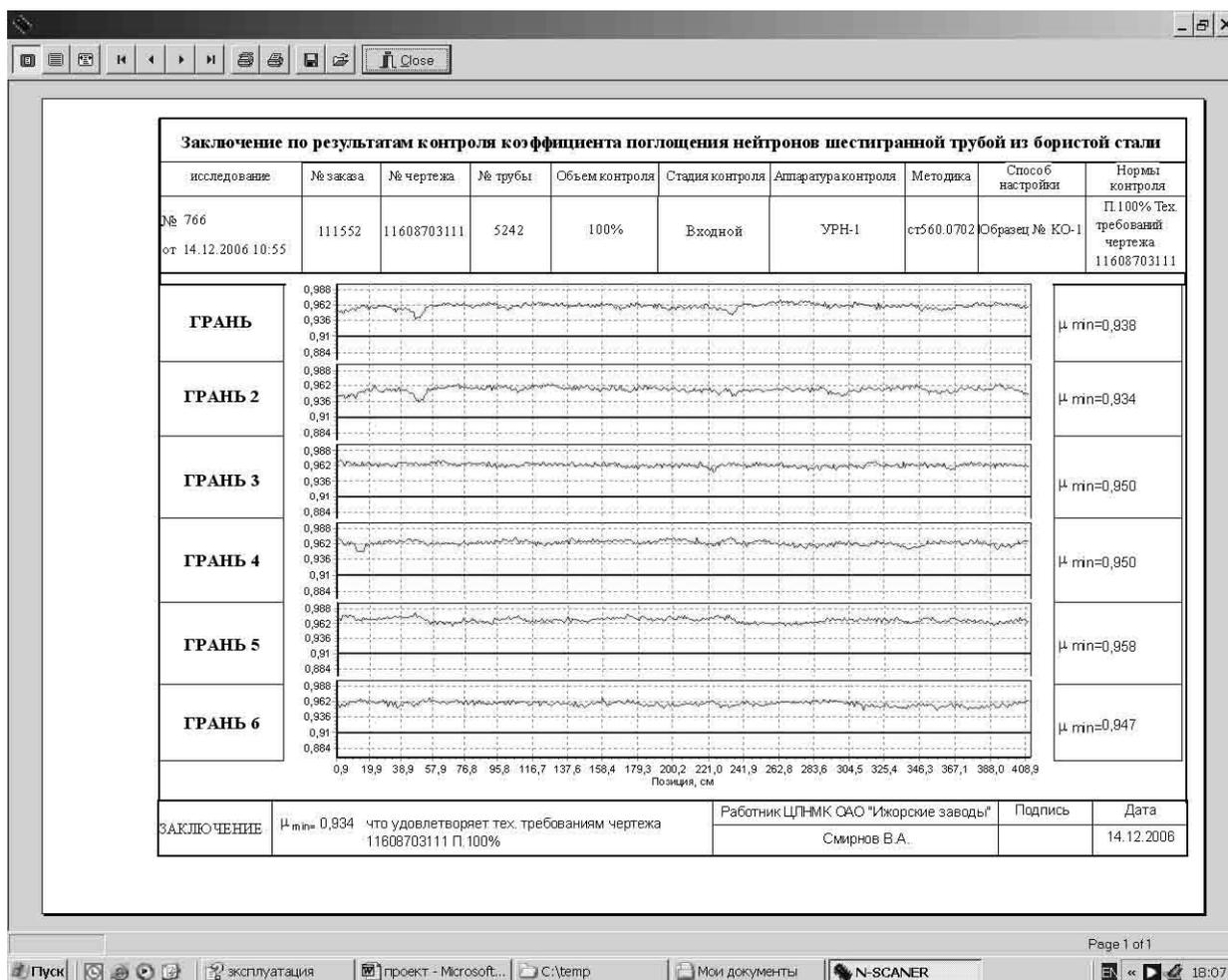


Рис. 8. Заключение по результатам контроля отдельного чехла.

### Выборочные результаты измерений труб. Статистический анализ геометрических характеристик «дефектных зон» в бракованных гранях труб

Ниже представлена сводка характеристик «дефектных зон» в бракованных гранях труб. Под «дефектными зонами» подразумеваются области грани трубы с минусовыми отклонениями коэффициента поглощения тепловых нейтронов от допустимого значения.

Длина «дефектных зон» выражается в значениях  $N$ , причем с достаточной степенью точности в данном рассмотрении можно полагать, что  $N \approx 1$  см.

Эффективная площадь «дефектных зон» представляет сумму коэффициентов поглощения

$$\Sigma K_{\text{полг}} \cdot N,$$

где суммирование ведётся по области грани трубы с минусовыми отклонениями коэффициента поглощения тепловых нейтронов. Эта величина характеризует степень прозрачности отдельных «дефектных зон» для тепловых нейтронов и позволяет определить параметры ядерной безопасности трубы для хранения ОЯТ.

На рис. 9 и 10 гистограммами изображены геометрические характеристики «дефектных зон» в бракованных гранях труб. На рис. 11 изображена взаимосвязь линейных размеров и эффективных площадей дефектов.

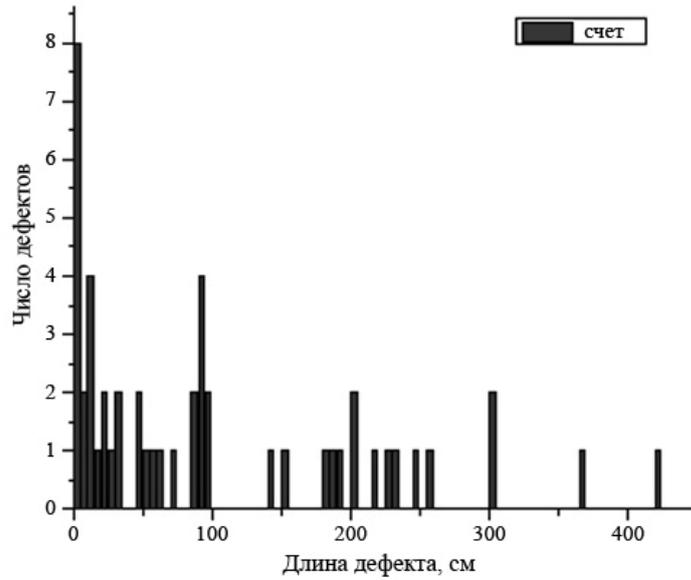


Рис. 9. Распределение дефектов по величине их линейных размеров.

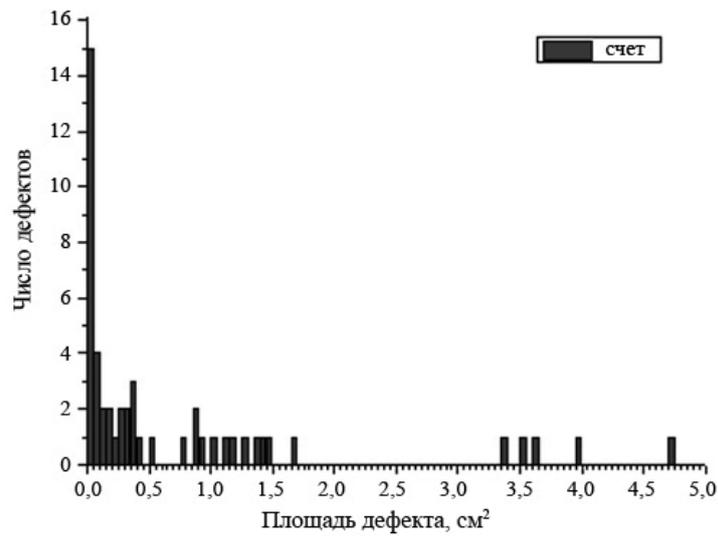


Рис. 10. Распределение дефектов по величине их эффективных площадей.

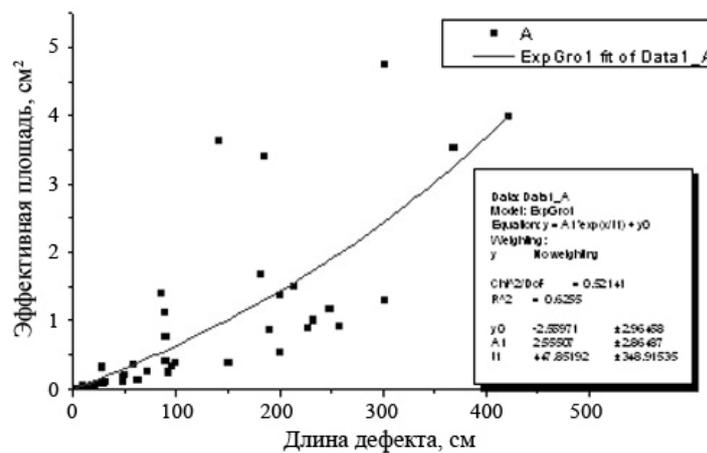


Рис. 11. Взаимосвязь линейных размеров и эффективных площадей дефектов.

Установка УР-Н изготовлена как средство измерений единичного изготовления и с 2007 г. регулярно эксплуатируется в ОАО «Ижорские заводы». Она отградуирована непосредственно в единицах коэффициента поглощения тепловых нейтронов, поэтому при контроле качества и аттестации контейнеров результат измерений получается в виде значений коэффициента поглощения нейтронов в материале измеряемого участка.

Анализ начального периода эксплуатации установки свидетельствует о целесообразности проведения следующих работ:

1. Разработка томографической системы на основе позиционно-чувствительных детекторов тепловых нейтронов. Использование такой системы в практике контроля распределения  $^{10}\text{B}$  в борированных сталях даст возможность точно определить размеры дефектных и потенциально дефектных участков.
2. Развитие критериев отбраковки дефектных участков. Следует разработать методы статистической аппроксимации непосредственных результатов измерений с учётом существующих критериев ядерной безопасности. Это позволит уменьшить число отбракованных труб.
3. Разработка методик контроля выгорания  $^{10}\text{B}$  с целью экспериментального подтверждения достаточности заложенных в проекте исходных поглощающих свойств изделий на весь срок эксплуатации.

#### Список литературы

1. Vilpponen K. O., Salmela A. E. // Scand. J. Metall. (Stockholm). 1974. Vol. 2, P. 298.
2. Bastürk M., Arzmann J., Jerlich W. et al. Monte Carlo Simulation of Neutron Transmission of Boron-Alloyed Steel // IEEE Trans. Nucl. Sci. 2005. Vol. 52. N 1. P. 394–399.
3. Сопряжение ведомственной автоматизированной системы контроля радиационной системы Росатома с единой государственной автоматизированной системой контроля радиационной обстановки. Отчет о НИР (заключительный) / Рук. Кузьмин В. В. СПб.: ФГУП «НПО «Радиевый институт им. В. Г. Хлопина»», 2009. 70 с. Инв. № 3404-И.
4. Bastürk M., Arzmann J., Jerlich W. et al. Analysis of Neutron Attenuation in Boron-Alloyed Stainless Steel with Neutron Radiography and JEN-3 Gauge // J. Nucl. Mater. 2005. Vol. 341. N.º2–3. P. 189–200.

#### Neutron Scanning Facility for the Critical Evaluation of Boron Distribution in Boronized Steel Containers for Nuclear Spent Fuel Storage

S. V. Khlebnikov<sup>1</sup>, A. A. Voronkov<sup>1</sup>, M. V. Safonenko<sup>1</sup>, V. A. Trenkin<sup>1</sup>, S. G. Yavshits<sup>1</sup>, V. V. Kuzmin<sup>2</sup>, A. V. Lapshin<sup>2</sup>, P. S. Prudnikov<sup>2</sup>, V. M. Boyko<sup>2</sup>, S. V. Bulkin<sup>2</sup>

<sup>1</sup> – Khlopin Radium Institute, St. Petersburg

<sup>2</sup> – NTC “RION”, Branch of the Khlopin Radium Institute, St. Petersburg

Methods of neutron radiography are taken as a base for the experimental industrial setup “UR-N” developed in Federal State Unitary Enterprise “Khlopin Radium Institute”. The setup is installed and operated at Public Stock Company “Izhorskiye Zavody”. The setup allows continuous monitoring of boronized  $^{10}\text{B}$  in a material of the hexagonal containers for SNF storage made of boronized ChS-82 steel. The components of this up to date unique, industrial setup and the measurement procedure are briefly described.

## **Портативный спектрометр нейтронов высоких энергий для активной диагностики радиационной обстановки на борту МКС**

С. А. Колычев, Н. В. Ковалев, Н. А. Кудряшев, И. В. Рыжов, А. В. Саульский,  
А. Н. Смирнов, Г. А. Тутин

Детальное исследование нейтронных полей на борту пилотируемых космических кораблей имеет большое значение для планирования эффективной стратегии сокращения риска. Нейтронное поле в космическом корабле в значительной степени сформировано вторичными нейтронами, произведёнными высокоэнергетическими заряженными частицами галактического и солнечного происхождения в их столкновениях с конструкционными элементами космического корабля. Нейтронный спектр простирается от тепловых до энергий нескольких ГэВ, но большая часть радиационного воздействия на членов экипажа производится нейтронами в энергетическом диапазоне от 0,2 эВ до 200 МэВ. Нейтронные измерения в космическом пространстве остаются трудной проблемой, особенно в области высоких энергий.

В лаборатории нейтронной физики разработан портативный спектрометр нейтронов высоких энергий (ПСНВЭ) для измерений в реальном времени на борту Международной космической станции (МКС). В качестве детектора нейтронов используется стопка толстых кремниевых детекторов. Датчик измеряет энергетический спектр заряженных частиц и тяжёлых ядер отдачи, возникающих при ядерных взаимодействиях (упругих и неупругих) нейтронов с ядрами кремния. Чтобы отделить нейтроны от первичных и вторичных заряженных частиц, сборка кремниевых детекторов окружена активным экраном антисовпадений, изготовленным из кристаллов CsI(Tl) с PIN-диодным считыванием.

Спектр энерговыделения, измеренный кремниевыми детекторами, преобразуется в энергетический спектр нейтронов с помощью процедуры развертки, для которой функция отклика датчика должна быть известна для широкого набора энергий нейтронов. Предварительно получены данные по функции отклика для нейтронов с энергией 14 МэВ. Подготавливается программа калибровочных измерений (вплоть до 200 МэВ) на источнике нейтронов с «белым» спектром ГНЕЙС (ПИЯФ им. Б. П. Константинова).

### **Введение**

С запуском орбитальной станции «Мир» в 1986 г. началась эра длительных космических полётов. В настоящее время является обычным многомесячное пребывание космонавтов на борту МКС, а также проведение ими нескольких полётов в течение карьеры. Кроме того, существуют планы в обозримом будущем осуществить пилотируемый полет на Марс, что предполагает многолетнее пребывание человека в космосе. Существенным моментом в разработке программ длительных космических полётов является воздействие радиации на экипаж.

Ядерные взаимодействия космических лучей галактического и солнечного происхождения, а также радиационных поясов Земли со структурами космического корабля создают поток вторичных нейтронов внутри обитаемого модуля. Средний коэффициент качества для нейтронов примерно в 4–5 раз больше, чем соответствующий средний коэффициент качества для заряженных частиц. Недавние дозиметрические измерения, сделанные на борту космических аппаратов, показали, что нейтроны могут вносить существенный вклад в облучение космонавтов. По различным оценкам, вклад нейтронов в полную эквивалентную дозу может составлять от 10 до

60 % на околоземной орбите [1] и свыше 50 % при космических полетах за пределами магнитосферы Земли. Реальные данные для орбитальных космических кораблей сильно зависят от солнечного цикла, защиты корабля, параметров орбиты (наклонение и высота) и в настоящее время изучены недостаточно хорошо. Значительная неопределённость нейтронной дозы связана с недостатком информации о нейтронных полях внутри космических аппаратов.

Две принципиальные проблемы делают измерения на космическом корабле особенно сложными. Первая из них – широкий диапазон энергий нейтронов, в котором необходимо проводить измерения. Спектр нейтронов внутри космического корабля простирается от тепловых энергий до энергий в несколько ГэВ. Он состоит из четырёх энергетических групп, включающих замедленные нейтроны с энергиями <1 МэВ, испарительные нейтроны с энергиями 1–10 МэВ, нейтроны промежуточных энергий в интервале от 10 до 200 МэВ и нейтроны с энергиями выше 200 МэВ, которые образуются в результате фрагментации ядер под действием высокоэнергетических частиц галактического происхождения. Хотя для оценки радиационного риска космонавтов необходимы измерения нейтронного спектра в интервале 0,2 эВ–200 МэВ, не существует детекторов, обладающих достаточной чувствительностью во всем этом диапазоне, и, следовательно, приходится использовать детекторы разных типов, дополняющие друг друга.

Вторая, и более существенная, трудность связана с тем, что измерения на космическом корабле проводятся в смешанных радиационных полях, которые формируются заряженными и нейтральными частицами (гамма-квантами и нейтронами). В результате при измерении нейтронных спектров на борту космического корабля необходимо отделять нейтроны от первичных и вторичных заряженных частиц, а также от гамма-излучения.

Имеющаяся в настоящее время аппаратура может обеспечить точные измерения потока нейтронов при энергиях ниже 14 МэВ, в то время как измерения при больших энергиях остаются трудной и до сих пор не решённой проблемой.

В 2008 г. в лаборатории нейтронной физики начата разработка портативного спектрометра нейтронов высоких энергий (ПСНВЭ) для измерений в реальном масштабе времени на борту космического корабля. В основу прибора взят методологический подход, предложенный в работе Maurel и др. [2] для спектрометра нейтронов (MANES), который был выбран для полёта на Mars 2003 Lander. Однако в ноябре 2000 г. НАСА провела реструктуризацию программы исследования Марса, разработка посадочного модуля была отменена, и проект был приостановлен.

### 1. Принцип действия ПСНВЭ

В ПСНВЭ в качестве детектора нейтронов используется стопка толстых кремниевых детекторов. Детектор измеряет спектры энергии, выделяемой ядрами отдачи и лёгкими заряженными частицами, образующимися в результате взаимодействий (упругого и неупругого) нейтронов с ядрами кремния. Имея этот спектр, можно получить нейтронный спектр при условии, что функции отклика детектора известны для широкого набора энергий нейтронов. С математической точки зрения число событий  $C(E_D)$  с определённым выделением энергии является линейным функционалом спектрального флюенса нейтронов  $\Phi(E_N)$ :

$$C(E_D) = \int dE_N R(E_D, E_N) \Phi(E_N), \quad (1)$$

где  $R(E_D, E_N)$  – функция отклика детектора, которая зависит от величины энергии продукта реакции  $E_D$  и энергии нейтрона  $E_N$ . Уравнение (1) – вырожденный случай интегрального уравнения Фредгольма первого типа. Оно может быть преобразовано в систему линейных уравнений, из которых получают искомый спектр  $\Phi(E_N)$  и его матрицу ошибок с использованием метода наименьших квадратов или других методов, реализованных в различных компьютерных программах.

Следует отметить, что хорошая «статистика» в спектре энерговыделения может быть использована эффективно только при условии, что функция отклика известна с большой точностью. Таким образом, особенно важным для разработки ПСНВЭ является точное определение его матрицы отклика на нейтроны с энергией в диапазоне от 10 до 200 МэВ. Для этой цели необходимы прокалиброванные пучки нейтронов, либо моноэнергетических и квази-моноэнергетических, генерируемых в реакциях взаимодействия протонов или дейтронов с лёгкими ядрами (D, T, и  ${}^7\text{Li}$ ), либо нейтронов с «белым» спектром, генерируемых в «spallation» реакциях протонов с тяжёлыми ядрами (Ta, W, Pb). Необходимы также соответствующие мониторы нейтронных потоков.

## 2. Конструкция ПСНВЭ

### 2.1. Структурная схема

ПСНВЭ состоит из четырёх основных частей (рис. 1):

- блок детектирования (БД), включающий детекторную сборку и предварительные усилители-формирователи;
- блок обработки и накопления (БОН), обеспечивающий функционирование устройства, а именно, управление всеми режимами работы, преобразование электрических импульсов от блока детектирования к виду, удобному для последующей обработки и хранения, привязку получаемой информации от БД к реальному времени, предварительную обработку, накопление и хранение полезной информации, обеспечение работы блока управления и индикации;
- блок индикации и управления (БИУ), предназначенный для визуализации, контроля и выбора режимов работы прибора, а так же ввода и вывода необходимой информации;
- блок питания, формирующий необходимые уровни питающих напряжений, защиту и фильтрацию от помех цепей питания устройства.



Рис. 1. Структурная схема ПСНВЭ.

## 2.2. Блок детектирования

Устройство блока детектирования показано на рис. 2. Si(Li)-детекторы, разделённые между собой токосъёмными шайбами, установлены в изоляционном контейнере цилиндрической формы. Для обеспечения надёжных электрических контактов сборка детекторов и токосъёмных шайб сжата конусной пружиной через изоляционную шайбу. Изоляционный контейнер, в свою очередь, установлен в вольфрамовый контейнер. Каждый Si(Li)-детектор обеспечен отдельным зарядочувствительным предусилителем и реперным источником альфа-частиц, предназначенным для обеспечения контроля работоспособности детектора и выравнивания коэффициентов усиления предусилителей. Источник представляет собой слой естественного урана толщиной около  $80 \text{ мкг/см}^2$ , диаметром около 16 мм, нанесённый на алюминиевую подложку толщиной 0,1 мм. Активность источника составляет около 6 Бк. Источники вмонтированы в контактные кольца со стороны лицевой поверхности детекторов.

Сцинтиллятор, Cs(I), цилиндрической формы с цилиндрической же полостью внутри состоит из двух равных половин, имеющих форму стакана, наружная и внутренняя поверхности сцинтиллятора имеют светоотражающее покрытие. В качестве фотоприёмников используются два PIN-диода, снабжённые двумя предусилителями.

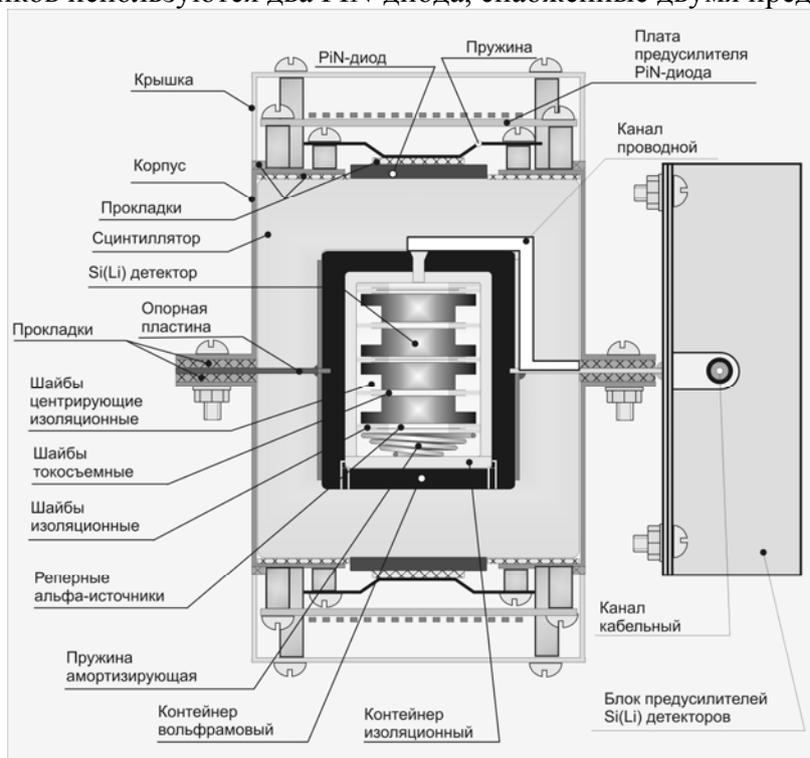


Рис. 2. Эскиз компоновки блока детектирования.

## 3. Исследование функции отклика

Предварительная калибровка блока детектирования была проведена на моноэнергетических нейтронах с энергией 14 МэВ. Использовали D–T нейтронный генератор, дающий поток нейтронов около  $7 \cdot 10^7 \text{ с}^{-1}$  (в телесном угле  $4\pi$ ). Измерялись скорости счета и амплитудные распределения импульсов Si(Li) детектора и активного экрана CsI(Tl) на разных расстояниях от источника нейтронов. Величину потока нейтронов измеряли встроенным в генератор счётчиком сопутствующих  $\alpha$ -частиц, а также внешним монитором нейтронов, работающим с использованием реакции

$^{238}\text{U}(n,f)$  и регистрацией осколков деления с помощью тонкоплёночного пробойного счетчика (ТПС).

Внешний вид блока детектирования, подготовленного для калибровочных измерений на пучках нейтронов, и экспериментальная установка для измерений на пучке нейтронов с энергией 14 МэВ приведены на рис. 3 и 4.



Рис. 3. Внешний вид блока детектирования.



Рис. 4. Размещение экспериментального оборудования при калибровке нейтронами с энергией 14 МэВ.

В результате измерений получен спектр энергосодержания в активном объеме детекторного модуля (сборка из четырёх Si(Li) детекторов), приведённый на рис. 5. На рис. 6 этот же спектр приведён в сравнении со спектрами энергосодержания аналогичного детектора для моноэнергетических промежутков «белого» спектра нейтронов нейтронной фабрики LANSCE, измеренными в 2003 г. [2].

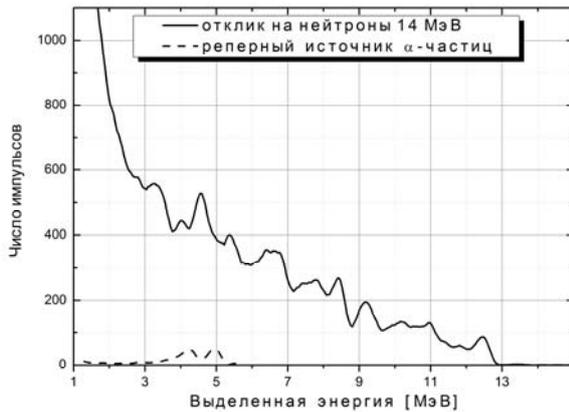


Рис. 5. Спектр энергосодержания, полученный при облучении Si(Li) детектора нейтронами с энергией 14 МэВ.

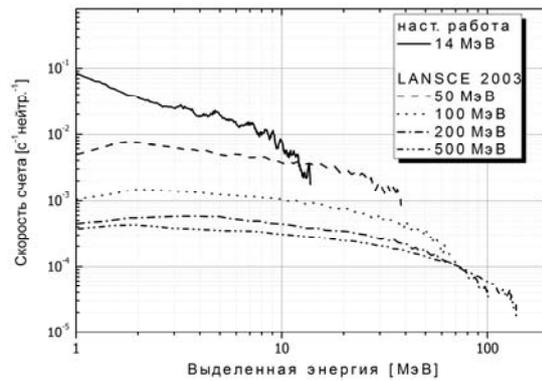


Рис. 6. Спектры энергосодержания от моноэнергетических нейтронов с энергией 14 МэВ и моноэнергетических участков спектра нейтронной фабрики LANSCE.

Эффективность Si(Li) детектора к нейтронам с энергией 14 МэВ определяли как отношение числа импульсов детектора к числу нейтронов, прошедших через его чувствительный объем. Величина эффективности, нормализованная на чувствитель-

ный объём детектора, имеющего размеры  $2 \text{ см}^2 \times 5,5 \text{ мм}$ , составила около 3,5 %. На рис. 7 этот результат сравнивается с результатами, полученными авторами работы [2], и расчётами по моделям.

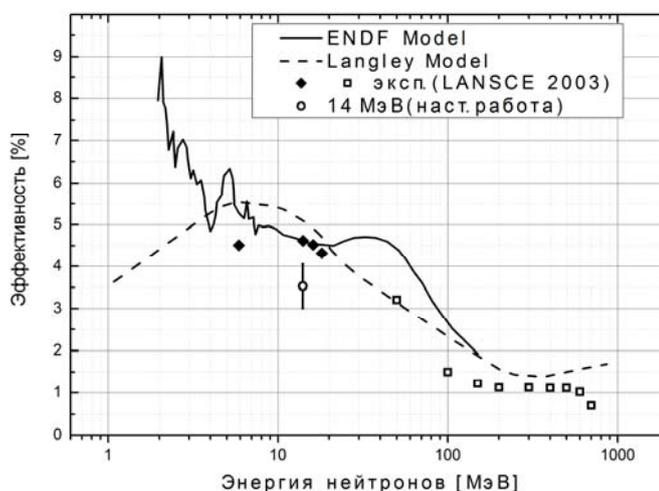


Рис. 7. Экспериментальные эффективности Si(Li) детектора к нейтронам высоких энергий в сравнении с расчётными по общим моделям сечений реакций нейтронов с ядрами кремния.

Для определения полной матрицы отклика блока детектирования на нейтроны с энергией в диапазоне от 10 до 200 МэВ планируются калибровочные измерения на пучке нейтронов с «белым» спектром установки «ГНЕЙС» (ПИЯФ им. Б. П. Константинова). Измерения будут проводиться с использованием метода времени пролёта на базе 48 м. В качестве стартовой отметки будет использован импульс тормозного  $\gamma$ -излучения установки. Импульсы кремниевых детекторов будут анализироваться с помощью оцифровщиков CAEN V1721. Будут получены энергетические спектры продуктов реакций для нейтронов в примерно 60 выделенных интервалах энергий. На рис. 8 показан спектр нейтронов установки «ГНЕЙС», разделённый на интервалы, соответствующие временной структуре импульса пучка первичных протонов (полуширина 10 нс), для пролетной базы 48 м.

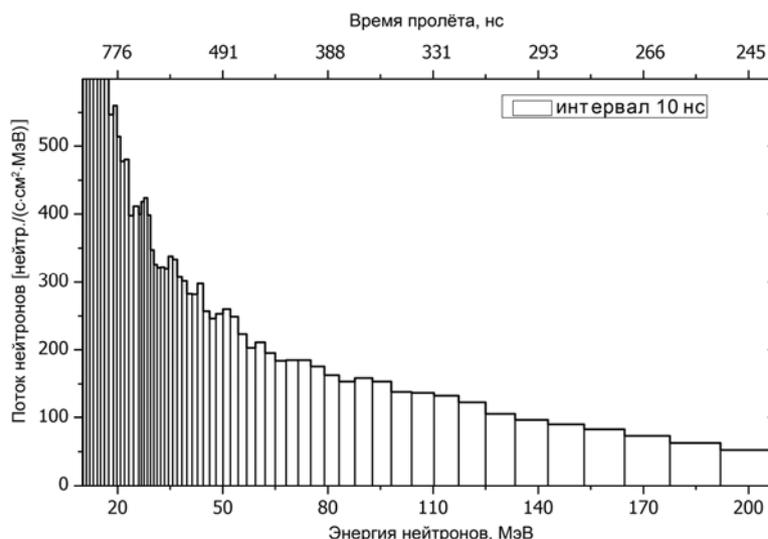


Рис. 8. Спектр нейтронов установки «ГНЕЙС» в диапазоне энергий 10–200 МэВ.

Для определения эффективности отбора и исключения из регистрации событий, вызванных в кремнии высокоэнергичными протонами, планируются эксперименты на пучке протонов с энергиями 200 МэВ и 1 ГэВ синхроциклотрона ПИЯФ.

### Заключение

ПСНВЭ предполагается использовать на борту МКС и на исследовательском спутнике «БИОН». Все стадии испытания ПСНВЭ и инженерная доводка будут выполнены в специальном конструкторском бюро экспериментального оборудования при Институте медико-биологических проблем. ПСНВЭ будет подвергнут механическим и климатическим испытаниям, а также испытаниям на электро- и пожаробезопасность, электромагнитную совместимость, газовую токсичность и т. д.

Данные, полученные с помощью ПСНВЭ, позволят проводить:

- изучение динамики энергетических спектров нейтронов;
- изучение динамики доз нейтронов;
- исследования радиационно-защитных свойств различных материалов по ослаблению дозы нейтронов.

В то же время детектор может быть использован в авиационной дозиметрии, медицине, использующей ускорители частиц, в исследованиях, связанных с применением ускорителей, для утилизации радиоактивных отходов и т. д.

### Список литературы

1. Badhwar G. D., Keith J. E., Cleghorn T. F. // Radiat. Meas. 2001. Vol. 33. P. 235.
2. Maurer R. H., Roth D. R., Kinnison J. D. et al. / Acta Astronaut. 2003. Vol. 52. P. 405.

### Portable High-Energy Neutron Spectrometer for Active Diagnostics of Radiation Environment aboard the ISS

S. A. Kolychev, N. V. Kovalev, N. A. Kudryashev, I. V. Ryzhov,  
A. V. Saulskiy, A. N. Smirnov, G. A. Tutin

A detailed study of neutron fields aboard manned spacecrafts is of crucial importance for mapping out an effective risk reduction strategy. Neutron field inside a spacecraft is largely formed by secondary neutrons produced by high-energy charged particles of galactic and solar origin and the trapped radiation in their collisions with spacecraft structures. The neutron spectrum extends from thermal to GeV energies, but the strongest radiation effects on crew members are produced by neutrons in the energy range from 0.2 eV to 200 MeV. Neutron measurements in space remain a difficult problem, especially at high energies.

Portable high-energy neutron spectrometer (PHENS) for real-time measurements aboard the International Space Station has been developed in the laboratory of neutron physics. A stack of thick silicon detectors is used as neutron-detecting element. The detector measures energy deposition spectrum of heavy recoils and light charged particles due to nuclear interactions (elastic and inelastic) between energetic neutrons and silicon nuclei. To separate neutrons from primary and secondary charged particles the silicon detector assembly is surrounded with anti-coincidence shield fabricated from CsI(Tl) crystals with PIN-diode readouts.

The energy deposition spectrum measured by the silicon detectors is converted to the incident neutron energy spectrum using an unfolding procedure, for which the detector response function has to be known for a wide set of neutron energies. Preliminary data on the response function for 14 MeV neutrons are obtained. A program of calibration measurements at the "white" neutron source GNEIS (Petersburg Institute of Nuclear Physics, Gatchina) is under preparation.

## Использование метода PLS для анализа гамма-спектров

Д. Н. Вахтин, М. Д. Зубков, А. В. Евсенин, А. В. Кузнецов, О. И. Осетров,  
Д. В. Постоварова, П. Д. Юрманов

Метод PLS представляет собой мощный современный метод множественной регрессии, который может быть использован для устойчивого разложения спектров, набранных с малой статистикой, на большое число компонент. В статье описано применение алгоритма PLS для анализа спектров гамма-квантов, полученных при измерении активностей проб грунта и в реакциях неупругого рассеяния быстрых нейтронов на ядрах различных элементов. Результаты анализа спектров методом PLS сравниваются с результатами применения стандартного метода наименьших квадратов.

### Введение

При анализе спектров  $\gamma$ -квантов часто ставится задача выделить вклады в них от различных источников:  $\gamma$ -излучающих нуклидов или ядерных реакций. При этом спектры могут представлять собой сложную смесь различных компонент, каждая из которых может содержать большое число характерных особенностей: фотопиков, аннигиляционных пиков, «комптоновских хвостов» и т. п.

В большинстве  $\gamma$ -спектрометров задача выделения вкладов от различных компонент решается путём подсчёта числа событий в выделенных участках спектра, соответствующих ярко выраженным пикам. Этот подход, однако, имеет два существенных недостатка. Во-первых, пики могут накладываться друг на друга, что приводит к неправильному подсчёту числа событий в них. Во-вторых, энергии  $\gamma$ -квантов часто распределяются между большим числом пиков в спектре, так что при учете лишь одного пика для достижения требуемой статистической достоверности результатов необходимо увеличивать время измерения.

На рис. 1 представлены экспериментальные спектры  $\gamma$ -квантов из реакций неупругого рассеяния нейтронов с энергией 14 МэВ на кремнии, фосфоре и сере, измеренные детектором на основе кристалла германата висмута (BGO). Видно, что основные линии в спектрах фосфора и серы (~1250 и ~2200 кэВ) накладываются друг на друга, а широкая линия в спектре серы с энергией ~1700 кэВ плохо разрешается с линией в спектре кремния. Кроме того, в линии кремния ~1780 кэВ содержится лишь около 15 % всех событий в диапазоне выше 500 кэВ, то есть существенная часть информации, содержащаяся в менее «ярко выраженных» частях спектра, при вышеуказанном анализе просто отбрасывается.

На практике эта ситуация приводит к тому, что с помощью сцинтилляционных спектрометров можно определять лишь малое число изотопов, и то лишь при анализе спектров, содержащих небольшое число линий. Например, спектрометр МКС-АТ6101Д<sup>1)</sup> позволяет измерять удельные активности только для  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{40}\text{K}$  и  $^{137}\text{Cs}$ . Если требуется определять большее число нуклидов, то используются дорогостоящие детекторы на основе высокочистого германия (HPGe). Однако в этих спектрометрах проблема «отбрасывания» полезной информации часто выражена ещё более явно, особенно при использовании пиков с большими энергиями, для которых собственная эффективность детектора на основе HPGe мала.

<sup>1)</sup> См., например, <http://atomtex.com/product.phtml?r=16&id=61>.

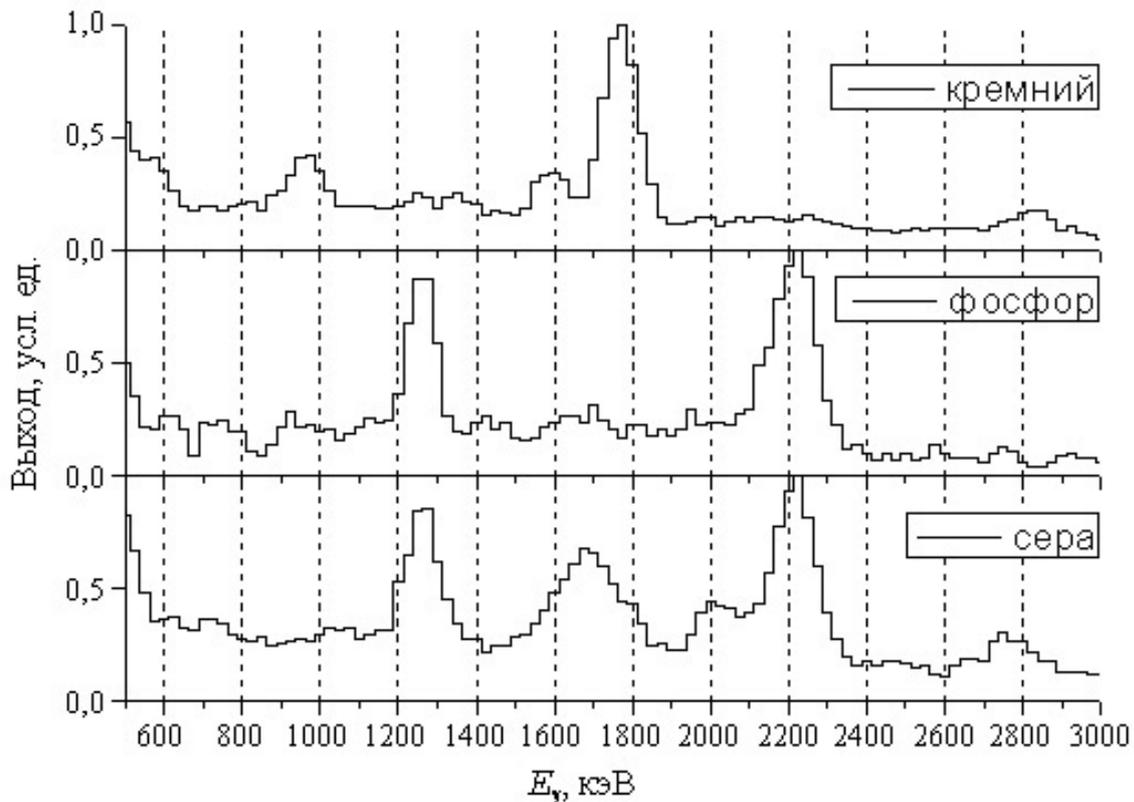


Рис. 1. Спектры  $\gamma$ -квантов из реакций неупругого рассеяния нейтронов с энергией 14 МэВ на кремнии, фосфоре и сере.

Значительно более мощным методом определения вклада различных компонент в спектр является многомерный регрессионный анализ [1]. В этом методе отдельные линии в спектре не рассматриваются, а вместо этого производится разложение измеренного спектра на функции отклика прибора на  $\gamma$ -излучение от отдельных нуклидов (или реакций). Как правило, эти спектры имеют сложную форму, представляющую собой суперпозицию фотопиков, пиков, вызванных аннигиляцией электрон-позитронных пар, и низкоэнергетических «хвостов», вызванных комптоновским рассеянием  $\gamma$ -квантов. Использование функций отклика в принципе позволяет полностью учесть всю информацию, содержащуюся во всех частях экспериментального спектра.

Ситуация, однако, осложняется тем, что при большом числе компонент разложения многомерный регрессионный анализ представляет собой математически некорректную задачу. Это происходит в основном из-за мультиколлинеарности компонент разложения, то есть наличия сильной корреляции между функциями отклика на разные нуклиды, выражающейся в наличии в спектрах пиков с близкими или совпадающими энергиями. Мультиколлинеарность приводит к неустойчивости процедуры разложения по отношению к малым изменениям в исходных экспериментальных спектрах и в итоге к тому, что простейшие методы многомерной регрессии, такие как метод наименьших квадратов (МНК), обычно работают только при числе компонент порядка 7–8, что явно недостаточно для анализа сложных спектров.

Для решения данной задачи необходимо использовать более стабильные методы, использующие ортогональные наборы компонент разложения.

### 1. Метод частичных наименьших квадратов (PLS)

Метод частичных наименьших квадратов (PLS<sup>2)</sup>) [2–5] представляет собой мощный современный метод построения многомерной градуировочной модели. Метод PLS можно рассматривать как дальнейшее развитие метода главных компонент (PCA<sup>3)</sup>) [6] и линейного регрессионного анализа [1]. В применении к анализу спектров метод PLS состоит в одновременном разложении матрицы спектральных данных **A** и матрицы концентраций **C** и переходе к новым переменным **F<sub>a</sub>** и **F<sub>c</sub>** (рис. 2), представляющим собой ортогональные наборы «главных компонент». Использование ортогонального набора позволяет обойти проблему мультиколлинеарности и анализировать спектры, содержащие практически неограниченное число компонент.

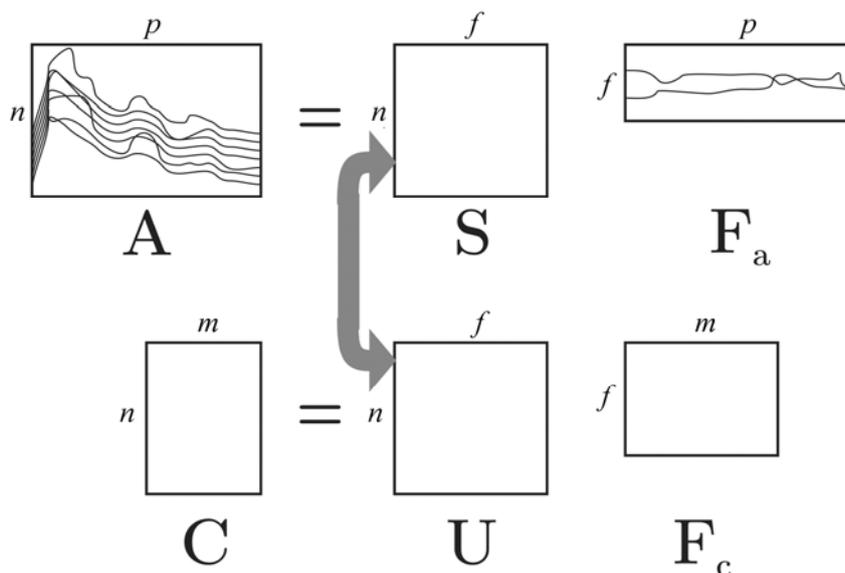


Рис. 2. Схема PLS. **A** – матрица спектральных данных ( $n$  строк – число спектров;  $p$  столбцов – число точек по энергии). **C** – матрица концентраций ( $n$  строк,  $m$  столбцов – число включённых в анализ элементов). Матрицы **A** и **C** вместе задают калибровочный набор. **S**, **U** – матрицы размерности ( $n \times f$ ), содержащие коэффициенты, определяемые в ходе работы PLS;  $f$  – число компонент разложения. **F<sub>a</sub>**, **F<sub>c</sub>** – матрицы главных компонент размерностью ( $f \times p$ ) и ( $f \times m$ ).

В используемом нами варианте PLS (так называемом PLS1) наборы «главных компонент» строятся независимо для каждого элемента, входящего в калибровочный набор. На рис. 3 приведены примеры первой и второй «главных компонент», полученных при построении градуировочной модели PLS для спектров  $\gamma$ -квантов от углерода и кислорода, полученных в методе неразрушающего анализа состава вещества ННА [7]. Нулевая компонента не показана, так как она представляет собой просто среднее по всем спектрам; более «старшие» компоненты не показаны, чтобы не загромождать рисунки.

<sup>2)</sup> В англоязычной литературе аббревиатура PLS расшифровывается либо как «partial least squares», либо как «projection to latent structures» («проекция на скрытые структуры»). Второй вариант, на наш взгляд, точнее передает суть метода.

<sup>3)</sup> См. о методе PCA: <http://support.sas.com/publishing/pubcat/chaps/55129.pdf>.

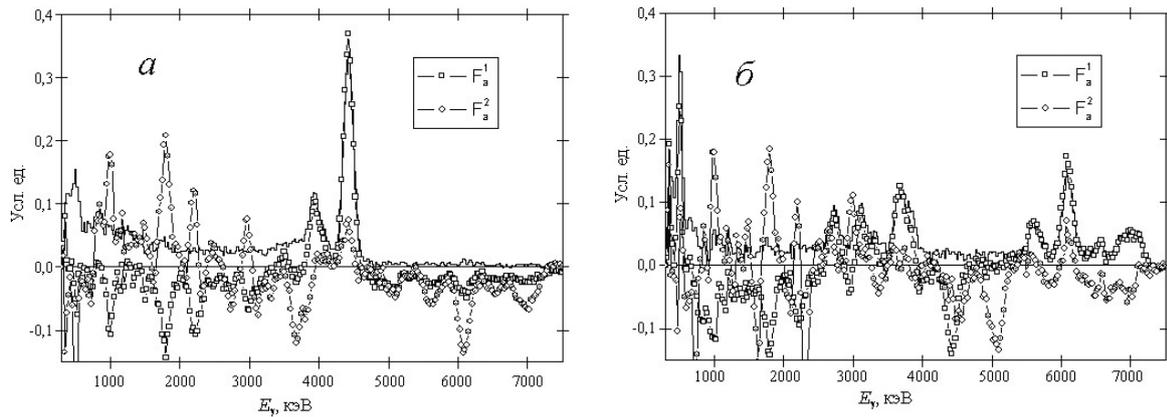


Рис. 3. Первая (линия с квадратиками) и вторая (линия с кружками) ортогональные компоненты PLS, полученные для спектра  $\gamma$ -квантов от углерода (а) и кислорода (б), облучаемых нейтронами с энергией 14 МэВ.

Видно, что в обоих случаях первая компонента (линия с квадратиками) примерно повторяет форму исходного спектра в области основных пиков, а остальные взаимно ортогональные компоненты описывают оставшиеся спектры калибровочного набора. Таким образом, PLS сохраняет в нескольких первых ортогональных компонентах максимум информации об исходном спектре, что позволяет в дальнейшем перейти от результатов разложения экспериментальных спектров в ортогональном базисе «главных компонент» обратно к исходным элементам, концентрации которых требуется определить. Этот переход невозможен в стандартном методе PCA, в котором ответ даётся в терминах «главных компонент», не имеющих физического смысла.

Изначально количество ортогональных компонент равно количеству исходных функций отклика. Затем все компоненты, начиная с некоторой, отбрасываются, так как в них содержится лишь описание случайных статистических флуктуаций. Такое уменьшение числа компонент в чем-то аналогично отбрасыванию высоких частот при Фурье-сглаживании сигналов. В используемой нами реализации PLS число сохраняемых компонент (на рис. 2 обозначено  $f$ ) определяется из требования наилучшего описания набора тестовых спектров, сгенерированных методом Монте-Карло с данной статистикой. При низкой статистике в спектрах, как правило, остается небольшое число ортогональных компонент, описывающих немногие статистически значимые различия в спектрах. При увеличении статистики число компонент возрастает. При анализе экспериментального спектра, содержащего конкретное число событий, используется набор компонент, полученный именно для такой или близкой статистики.

## 2. Процедура PLS

Нами было разработано программное обеспечение (ПО), реализующее метод PLS для разложения спектров на компоненты. Это ПО представляет собой классы C++, которые могут быть встроены в пользовательскую программу обработки спектров либо реализованы в виде отдельного исполняемого файла, читающего входные спектры из текстового файла.

ПО реализует следующие основные функции.

1. Процедуру построения градуировочной модели на основе предоставляемых пользователем функций отклика спектрометра. Градуировочная модель создается для данного спектрометра (и данного типа источника излучения) один раз, сохраняя-

ется в файле и затем может использоваться в любое время для анализа экспериментальных спектров.

2. Процедуру настройки параметров градуировочной модели с помощью графического пользовательского интерфейса.
3. Процедуру разложения спектров на компоненты с выдачей результатов в графическом виде и в виде текстовых файлов.

Процедура построения градуировочной модели производится следующим образом.

- а. Пользователь формирует библиотеку функций отклика – компонент разложения, на которые необходимо разложить экспериментальный спектр. Можно использовать как экспериментальные, так и расчётные спектры, записанные в виде колонок цифр в текстовые файлы. Эти спектры затем преобразовываются программой в единый внутренний формат представления библиотеки функций отклика.
- б. Если приблизительно известны диапазоны значений концентраций для каких-либо компонент разложения (то есть их ожидаемые относительные вклады в полный спектр), то пользователь задаёт эти диапазоны, используя графический интерфейс программы. Для остальных компонент разложения используются полные диапазоны (0–100 %).
- в. Пользователь задаёт диапазон значений статистики, с которой могут быть набраны экспериментальные спектры, и разбивает этот диапазон на произвольное число поддиапазонов. Если значения статистики для экспериментальных спектров заранее неизвестны, то используются значения  $10^2$ ,  $10^3$ ,  $10^4$ ,  $10^5$ ,  $10^6$ , перекрывающие широкий диапазон возможной статистики в экспериментальных спектрах.
- г. Для каждого указанного значения статистики программа автоматически генерирует большое количество (обычно 10000) спектров калибровочного набора, представляющих собой линейную комбинацию функций отклика с весами, представляющими собой случайные числа из выбранных диапазонов для концентраций.
- д. Программа автоматически определяет матрицы главных компонент  $F_a$  и  $F_c$  (рис. 2), используя в качестве матриц  $A$  и  $C$  спектры калибровочного набора и соответствующие им концентрации.
- е. Для каждого указанного значения статистики программа автоматически генерирует большое количество (обычно 10000) тестовых спектров, так же как это делается для спектров калибровочного набора.
- ж. Программа раскладывает спектры из тестового набора на компоненты  $F_a$ , сравнивает полученные значения концентраций со значениями, использованными при генерировании спектров тестового набора, и определяет для каждого значения статистики оптимальное количество главных компонент из матрицы  $F_a$ , для которого средняя погрешность определения концентраций для данного изотопа минимальна.
- з. Необходимое число (ортогональных) главных компонент для каждого изотопа запоминается программой и записывается в файл настроек.

Процедура разложения экспериментальных спектров на ортогональные компоненты производится следующим образом.

- а. Программа раскладывает экспериментальный спектр на главные компоненты и определяет концентрации всех изотопов.
- б. Программа генерирует небольшое число (обычно 100) спектров со статистикой, равной статистике в экспериментальном спектре, используя экспериментальный спектр в качестве математического ожидания.
- в. Программа раскладывает каждый из этих спектров на главные компоненты и определяет концентрации всех изотопов. Дисперсия распределения концентраций каждого изотопа принимается за оценку погрешности метода.

г. Концентрации и погрешности выдаются в качестве результата работы программы, например, в виде текстовых файлов.

### 3. Сравнение МНК и PLS

Для прямого сравнения методов МНК и PLS были использованы модельные спектры, генерированные с заданной статистикой из расчётных функций отклика детектора на основе кристалла BGO на спектры  $\gamma$ -квантов от изотопов  $^{40}\text{K}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{106}\text{Rh}$ ,  $^{134,137}\text{Cs}$ ,  $^{152,154}\text{Eu}$ ,  $^{207,208,209}\text{Tl}$ ,  $^{211,214}\text{Pb}$ ,  $^{211}\text{Po}$ ,  $^{212,214}\text{Bi}$ ,  $^{228}\text{Ac}$  и  $^{234}\text{Pa}$ , а также на аннигиляционную линию 511 кэВ. При расчёте функций отклика учитывали выход  $\gamma$ -квантов при распаде данного изотопа [8], а также экспериментально определённую зависимость разрешения детектора от энергии. Расчёт функций отклика производили при помощи программного кода MCNP<sup>4)</sup>, а корректность расчёта проверяли сравнением с экспериментальными спектрами от изотопов  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{152}\text{Eu}$ .

Для каждого значения статистики генерировали 100 спектров, которые затем раскладывали на компоненты методами МНК и PLS. Концентрации изотопов с погрешностями, полученные из этих разложений, сравнивали с истинными значениями концентраций, заложенными в генератор спектров.

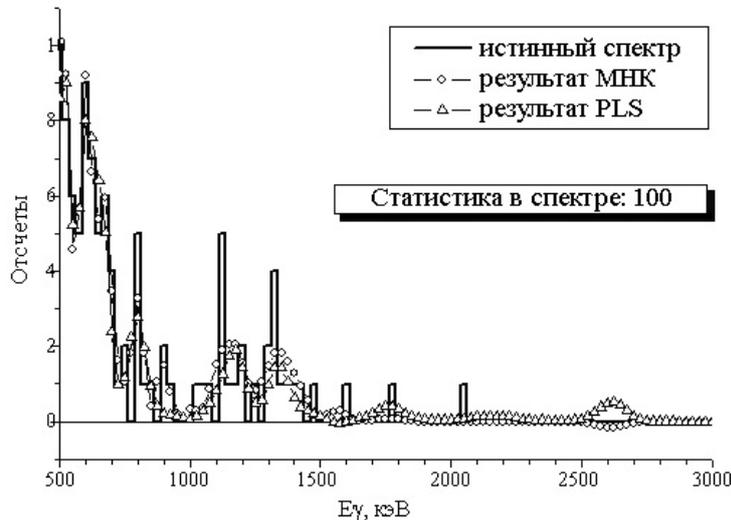


Рис. 4. Спектр  $\gamma$ -квантов, сгенерированный со статистикой 100 событий (гистограмма), и наилучшие приближения, полученные методами МНК (линия с ромбиками) и PLS (линия с треугольниками).

Пример спектра, сгенерированного со статистикой 100 событий, приведён на рис. 4, а полученные при его разложении концентрации изотопов – на рис. 5 а. Видно, что практически для всех изотопов метод PLS имеет меньшую погрешность, чем МНК. В тех случаях, когда из-за низкого выхода  $\gamma$ -квантов какой-либо изотоп даёт крайне малый вклад в общий спектр (например,  $^{106}\text{Rh}$ ,  $^{207}\text{Tl}$ ,  $^{211}\text{Pb}$ ,  $^{211}\text{Po}$ ), значения, полученные в МНК, оказываются далеко за диапазоном, показанным на рис. 5 а, в то время как PLS даёт для этих изотопов результаты, близкие к реальным.

При увеличении статистики в спектрах (рис. 5, б, в) погрешности МНК и PLS постепенно сравниваются, хотя МНК по-прежнему не способен определить наличие в спектрах вкладов от элементов с низкими выходами  $\gamma$ -квантов.

<sup>4)</sup> MCNP - A General Monte Carlo N-Particle Transport Code - Version 5. <http://mcnp-green.lanl.gov/-index.html>.

Такая стабильность метода PLS обусловлена его ортогональностью, а также тем, что для каждого изотопа набор ортогональных компонент определяется независимо оптимальным образом (см. примеры на рис. 3).

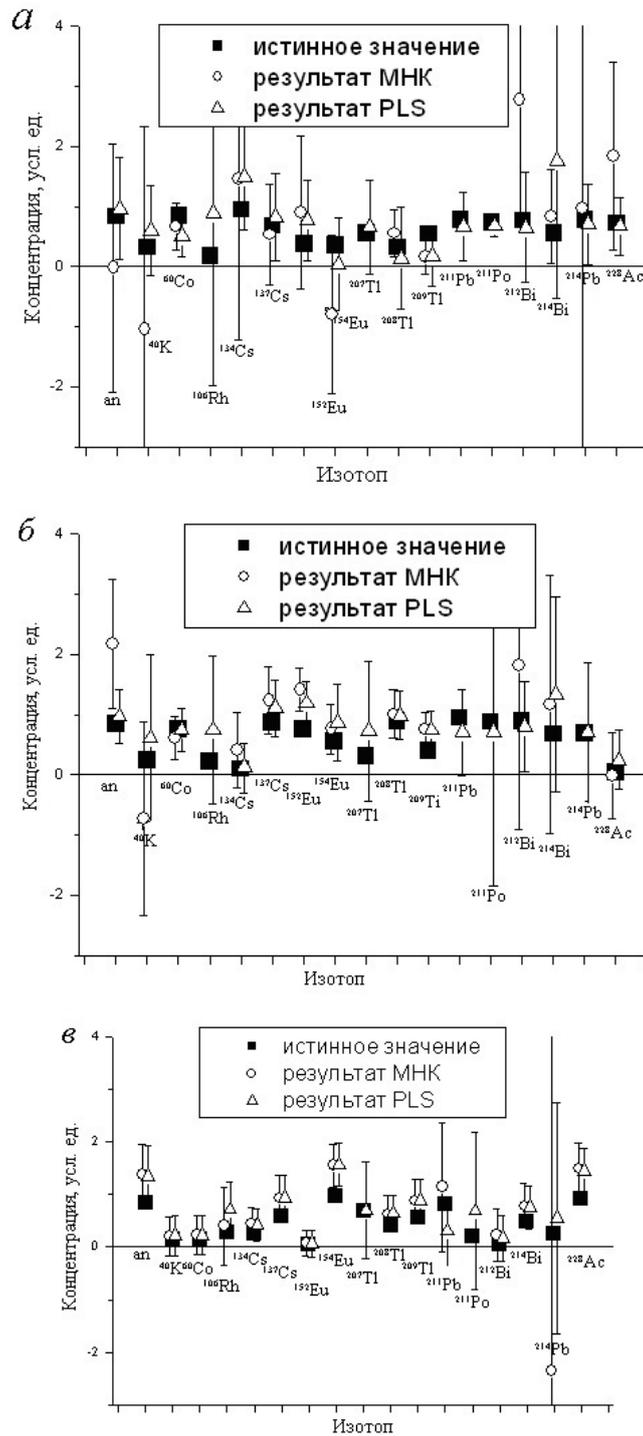


Рис. 5. Результат определения концентраций изотопов методами PLS и МНК по спектру, показанному на рис. 4. Статистика событий: *a* – 100, *б* – 1000, *в* – 100000.

#### 4. Применение метода PLS в спектрометре на основе кристалла BGO для детального анализа проб грунта

Для проведения лабораторных измерений гамма-излучающих нуклидов в пробах грунта был создан спектрометр (рис. 6) на основе сцинтилляционного кристалла германата висмута (BGO). Основным преимуществом данного кристалла перед другими часто используемыми в  $\gamma$ -спектрометрии сцинтилляторами является его высокая плотность и, как следствие, высокая собственная эффективность. К достоинствам кристалла BGO можно также отнести значительно лучшее, чем у NaI, соотношение фотопика и комптоновской части спектра. Основными недостатками являются низкий световыход и сильная зависимость световыхода от температуры.

Для задачи измерения проб сильная зависимость световыхода кристалла BGO от температуры незначительна, так как измерения проводятся в помещении. Кроме того, измеряемые в течение длительного времени (нескольких часов) спектры периодически (например, раз в 5 мин) записываются на диск, их энергетическая калибровка производится независимо, и суммируются уже откалиброванные спектры. Низкий световыход кристалла BGO, приводящий к потере энергетического разрешения на малых энергиях, также не играет существенной роли, так как измерения проводятся при относительно высоком пороге регистрации (500 кэВ). В детекторе используется фотоумножитель ФЭУ 6233-01 фирмы Hamamatsu с активным делителем, обеспечивающим независимость коэффициента усиления от загрузки в диапазоне загрузок от 0 до  $10^5$  импульсов в секунду. ФЭУ обернут листовым пермаллоем, защищающим его от влияния внешних магнитных полей. Детектор закреплен в вертикальном положении на специальной стойке так, что пробы могут располагаться в непосредственной близости от кристалла.

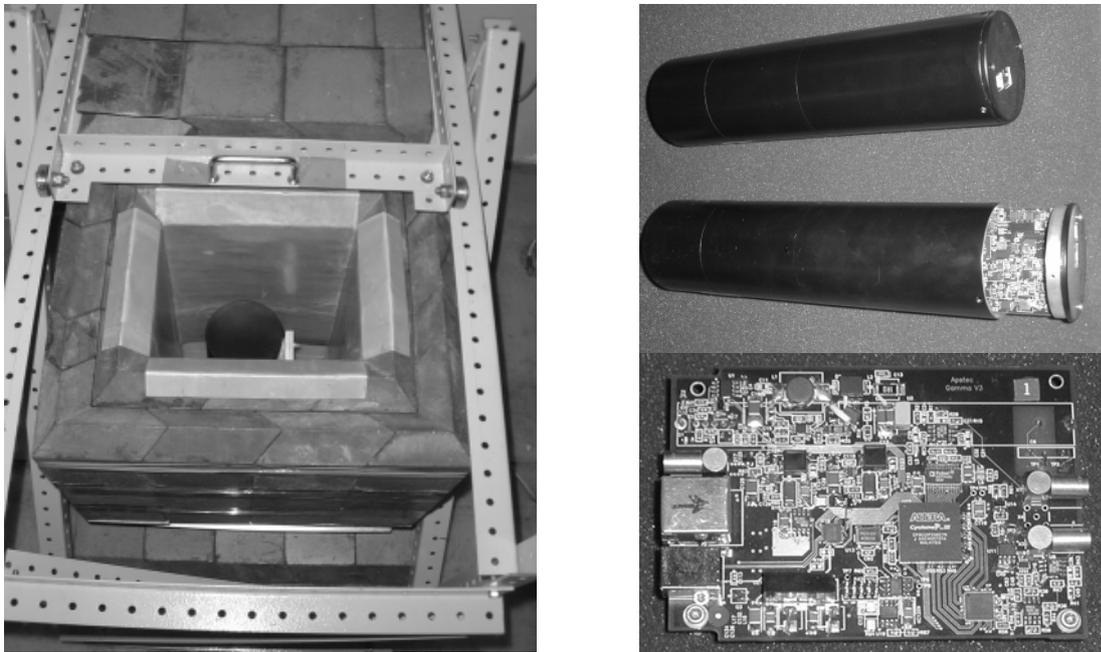


Рис. 6. Прототип лабораторного спектрометра на основе кристалла BGO (слева). Два детектора гамма-квантов на основе кристаллов BGO со встроенным цифровым спектрометром (справа сверху). Плата цифрового спектрометра (справа внизу).

Система сбора данных с детектора  $\gamma$ -квантов представляет собой универсальный цифровой спектрометр в составе усилителя-формирователя сигнала, быстрого АЦП, работающего на частоте 200 МГц, микросхемы программируемой логики ALTERA Cyclone III, реализующей цифровую обработку оцифрованного сигнала в реальном времени, а также управляемой микросхемы высоковольтного питания Transorwer MHV-12 для питания фотоумножителя.

Плата спектрометра устанавливается непосредственно в корпус детектора  $\gamma$ -квантов. Связь спектрометра с управляющим компьютером осуществляется либо напрямую через интерфейс USB 2.0, либо через специализированную объединительную плату с использованием стандартного кабеля Ethernet cat.5 и разъема типа RJ-45. При использовании интерфейса USB низковольтное питание спектрометра берется непосредственно от компьютера, а при использовании RJ-45 оно передается по одной из витых пар кабеля от объединительной платы. Высоковольтное питание ФЭУ вырабатывается непосредственно в микросхеме высоковольтного питания спектрометра. Цифровой спектрометр производит обработку оцифрованного импульса от детектора в реальном времени, отслеживая при этом изменение «нулевого» уровня АЦП, что позволяет эффективно бороться с наложениями импульсов.

Управление универсальным цифровым спектрометром осуществляется с компьютера. При этом пользователь может настраивать высокое напряжение и параметры цифровой обработки импульсов под конкретный тип детектора. Эти установки затем записываются в энергонезависимую память спектрометра и автоматически выставляются при подаче питания.

Для уменьшения скорости счёта фоновых событий детектор  $\gamma$ -квантов защищён со всех сторон слоем свинца толщиной 10 см и слоем кадмия толщиной 1.5 мм. Сдвигающаяся крышка позволяет помещать пробы непосредственно на детектор. Использование защиты позволяет снизить скорость счёта фона примерно в 20 раз.

На рис. 7 приведён пример разложения спектра  $\gamma$ -квантов от пробы грунта, полученного на спектрометре с детектором на основе кристалла BGO, на 16 компонент, соответствующих отдельным нуклидам (перечислены на картинке). Среди компонент разложения присутствует также отклик детектора на линию 511 кэВ, поскольку интенсивность этой «аннигиляционной» линии зависит от плохо контролируемой геометрии окружающего пробу вещества, в котором происходит рождение электрон-позитронных пар. При этом в списке компонент разложения нет отклика детектора на «естественный фон», поскольку состав этого фона может оказаться объектом исследования, и, кроме того, этот фон может меняться со временем.

Использование метода PLS позволило выполнить лабораторные измерения гамма-нуклидов в пробах грунта, используя дешёвые детекторы на основе BGO вместо детекторов на основе высокочистого германия. При этом состав определяемых нуклидов и достигнутая точность определения активностей соответствовали требованиям, предъявляемым к спектрометрам на основе HPGe.

Таким образом, предложенный спектрометр на основе BGO (или NaI) может с успехом использоваться для лабораторного анализа проб грунта и воды на наличие широкого класса природных и техногенных радионуклидов. Для этого требуется аттестация соответствующей методики измерений.

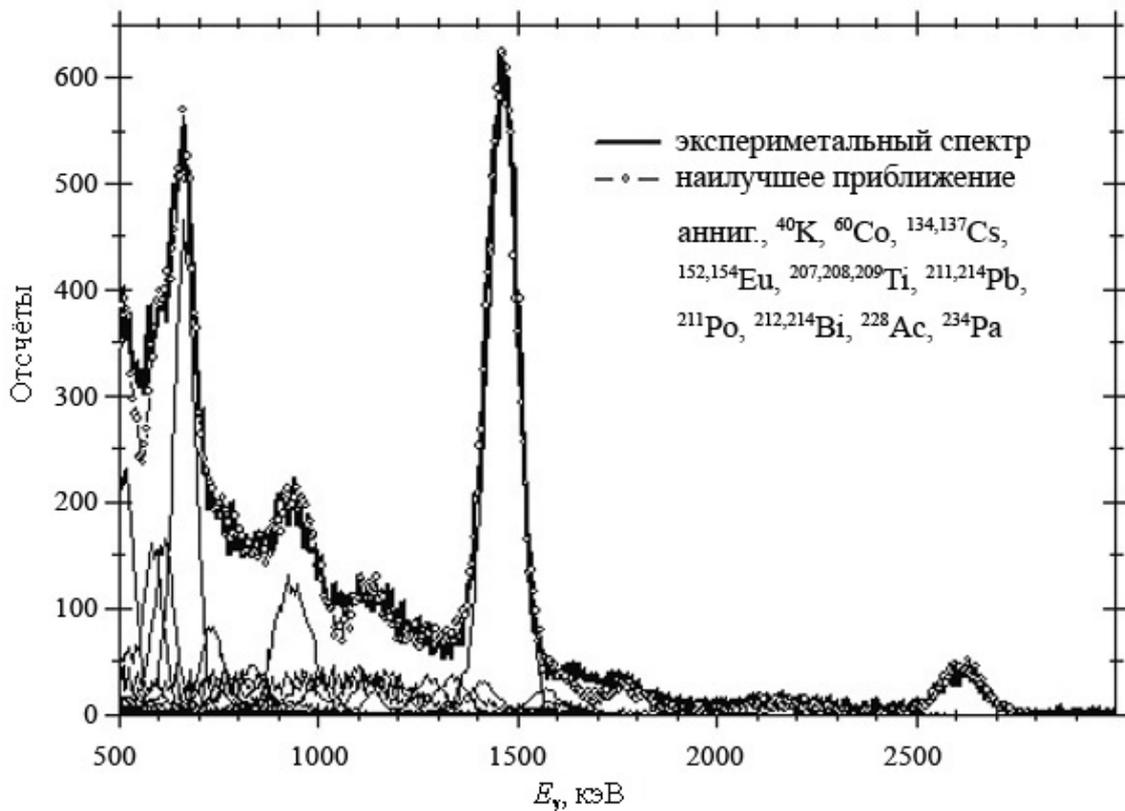


Рис. 7. Пример применения метода PLS к анализу  $\gamma$ -спектра от пробы грунта, измеренного с помощью детектора на основе кристалла BGO.

### Выводы

Метод частичных наименьших квадратов (PLS) позволяет устойчиво раскладывать спектры, набранные с малой статистикой, на большое число компонент. Используемая нами модификация метода PLS1 в совокупности с оригинальным подходом к определению требуемого числа компонент разложения в зависимости от статистики в экспериментальном спектре позволяет определять вклады от компонент даже в том случае, когда эти вклады крайне малы по сравнению с остальными.

Использование процедуры PLS позволяет использовать дешёвые детекторы на основе сцинтилляторов NaI или BGO для детального анализа  $\gamma$ -излучающих нуклидов в пробах грунта и воды. Достижимая при этом статистическая погрешность определения активностей сопоставима со статистической погрешностью, получаемой на спектрометрах HPGe, а полная погрешность определяется в основном качеством пробоподготовки.

### Список литературы

1. Дрейпер Н., Смит Г. Прикладной регрессионный анализ. Множественная регрессия. – 3-е изд. – М.: Диалектика, 2007.
2. Wold H. Estimation of Principal Components and Related Models by Iterative Least Squares // *Multivariate Analysis* / Ed. P. R. Krishnaiah. New York: Academic Press, 1966. P. 391–420.
3. Geladi P. Kowalski B. Partial Least Square Regression: A Tutorial // *Anal. Chem. Acta*, 1986. Vol. 35. P. 1–17.

4. Martens H., Naes T. *Multivariate Calibration* London: J. Wiley, 1989.
5. Hervé Abdi. *Partial Least Squares Regression and Projection on Latent Structure Regression (PLS Regression)* // *Wiley Interdisciplinary Reviews: Computational Statistics*. 2010. Vol. 2, Issue 1. P. 97–106. (см. также <http://www.utdallas.edu/~herve/abdi-wireCS-PLS2010.pdf>)
6. Зиновьев А. Визуализация многомерных данных. Красноярск: Изд. КГТУ, 2000. (<http://pca.narod.ru/ZINANN.htm>).
7. Кузнецов А. В. и др. Использование портативных генераторов нейтронов со встроенным детектором сопутствующих частиц для обнаружения опасных веществ // Сб. матер. Междунар. науч.-техн. конф. «Портативные генераторы нейтронов и технологии на их основе». 18–22 октября 2004 г. М., Россия, 2005. С. 286.
8. Схемы распада радионуклидов. Энергия и интенсивность излучения: Публикация 38 МКРЗ: В 2 ч. / Пер. с англ. М.: Энергоатомиздат, 1987.
9. Hogan M. A. et al., *Multiple Linear Regression Analysis of Scintillation Gamma-Ray Spectra: Automatic Candidate Selection* // *Nucl. Instr. Meth.* 1970. Vol. 80. N 1. P. 61–68.

### **Using PLS Method for the Analysis of Gamma-Ray Spectra**

D. N. Vakhtin, M. D. Zubkov, A. V. Evsenin, A. V. Kuznetsov, O. I. Osetrov,  
D. V. Postovarova, P. D. Yurmanov

PLS is a powerful modern multiple regression technique that allows one to perform stable fit of low-statistics spectra with a large number of fitting components. This article describes application of PLS to the analysis of gamma-ray spectra obtained from spectroscopic measurements of soil samples as well as from inelastic scattering of fast neutrons on nuclei of different elements. The results of the spectral analysis obtained by PLS are compared to those obtained by the standard least-squares fit.

## Возможности рентгенофлуоресцентного метода анализа в решении задач ГК Росатом и других федеральных ведомств

А. С. Серебряков, В. И. Кудряшов

Обсуждаются возможности энергодисперсионного рентгенофлуоресцентного метода в решении типичных задач элементного анализа, возникающих в ГК Росатом и других федеральных ведомствах. Кратко описан анализатор X-Арт М, разработанный при поддержке и под руководством ЗАО «Комита», и представлены результаты применения этого прибора в различных областях за последние 10 лет.

Метод рентгенофлуоресцентного анализа (РФА) основан на возбуждении в образце характеристического излучения элементов периодической системы с помощью внешнего источника излучения – рентгеновской трубки (РТ) или изотопного источника фотонов – и регистрации этого характеристического излучения в виде линейчатого спектра, как правило, с помощью твёрдотельного рентгеновского детектора (энергодисперсионный подход). Положение пиков *K*, *L*, *M*-серий характеристического излучения на шкале энергий отвечает за идентификацию химических элементов в образце, а площади под пиками содержат информацию о концентрациях этих элементов.

В Радиевом институте работы, связанные с этим методом, в начале 90-х годов прошлого века велись, в частности, в отделе В. В. Смирнова и были направлены на изучение возможности обнаружения тяжёлых элементов в багаже авиапассажиров.

В то время в распоряжении исследовательской группы имелась многопроволочная пропорциональная камера производства НПО «Буревестник», заполненная ксенон-метановой смесью под давлением 3 атм. Благодаря значительным размерам чувствительного объёма камеры (площадь окна  $25 \times 25$  см<sup>2</sup> и глубина 12 см), несмотря на плохое энергетическое разрешение, удавалось регистрировать линии тяжёлых элементов – от Та до Вi – на уровне их содержания порядка 1 г в кейсе стандартных размеров. При этом для возбуждения флуоресценции использовался изотопный источник <sup>57</sup>Со, расположенный по центру окна камеры и излучающий поток первичных фотонов в телесный угол, направленный в сторону объекта измерений и близкий к  $2\pi$ . Впоследствии похожая тема обнаружения металлов, входящих в состав детонаторов взрывчатых веществ, обсуждалась в работе [1].

На анализаторе МЕСА 10-44 производства фирмы Oxford (Великобритания), оснащённом Si(Li) детектором, в Радиевом институте несколько лет велись работы по оценке содержания тяжёлых металлов в объектах окружающей среды, а также по определению урана и тория в технологических растворах. Минимальные обнаруживаемые содержания урана и тория в этих растворах составляли 1 мг/л.

Проведение аналитических работ на имеющейся аппаратуре составляло только часть работы исследовательского коллектива, одновременно с этим предпринимались попытки разработать собственные приборы. Однако в силу полного отсутствия интереса государства к научному приборостроению в 90-е годы все начинания по разработке собственных анализаторов состава вещества на основе метода РФА были обречены на неудачу.

Положение изменилось в 1996 г., когда коммерческий интерес к проблеме проявила частная фирма «Комита», которая поддержала разработку рентгенофлуоресцентных анализаторов и стала головной организацией по координации всех работ в этом направлении. При этом удобная и экономически выгодная форма сотрудниче-

ства с Радиевым институтом эффективно обеспечивалась научно-производственным предприятием «КИРСИ».

Первый действующий макет прибора с кремниевым полупроводниковым детектором под названием X-Арт (X-Art) появился в 1998 г. и по инициативе А. А. Римского-Корсакова был испытан в Государственном Русском музее для анализа произведений живописи [2]. Затем в течение трёх лет была выпущена небольшая партия спектрометров типа X-Арт, описанных в работе [3], которые получили сертификат Госстандарта РФ как средство измерения. Один из этих приборов был приобретён в КНР Нанкинским Электротехническим институтом и один спектрометр – Государственной Третьяковской галереей в Москве.

Приборы серии X-Арт использовали жидкий азот для охлаждения Si(Li) детектора, что было неудобно для пользователей, хотя малогабаритный и легко заполняемый криостат позволял работать непрерывно в течение 16 ч. В дальнейшем было принято решение перейти на электрический способ охлаждения, и к разработке новой модификации прибора X-Арт М был привлечен зарубежный партнер.

Базовые комплектующие изделия для рентгенофлуоресцентных анализаторов X-Арт М поставляет фирма Baltic Scientific Instruments (BSI, Латвия), которая является прямым преемником Рижского института радиоизотопного приборостроения (РНИИРП), входившего в состав Минатома до 1991 г. Сердце прибора – блок детектирования на основе полупроводникового Si(Li) детектора с высоким энергетическим разрешением – разработан совместно с этой фирмой. Охлаждение детектора до температуры  $-105\text{ }^{\circ}\text{C}$  осуществляется с помощью многоступенчатого пельтьекулера, изготавливаемого в Санкт-Петербурге ОАО «НПП теплофизического приборостроения «ОСТЕРМ СПб» ([www.osterm.ru](http://www.osterm.ru)).

В отличие от Si-pin детекторов и дрейфовых кремниевых детекторов SDD, широко используемых сегодня европейскими фирмами в производстве аналогичных анализаторов, Si(Li) детектор имеет более высокую эффективность регистрации линий тяжёлых элементов. В то же время конструкция входного коллиматора детектора, изготовленного с использованием высоких технологий в ОАО «Концерн “ЦНИИ Электроприбор”» (Санкт-Петербург), позволяет эффективно регистрировать на открытом воздухе линии лёгких элементов, включая магний, алюминий и кремний. Это было продемонстрировано в отчете фирмы BSI по возможностям прибора X-Арт при анализе проб Ковдорского ГОК [4], где показано, что в спектрах отчетливо видны линии трех указанных элементов и предел обнаружения по магнию составляет 0,2 %. Особенность конструкции входного коллиматора состоит в том, что он выполнен из чистого бериллия и, таким образом, не искажает спектр излучения, идущего от образца к детектору. Бериллиевое входное окно толщиной 7 мкм приварено к коллиматору методом диффузионной сварки.

Система возбуждения флуоресцентного излучения в образце основана на РТ производства фирмы RTW (Германия) и наиболее надёжном высоковольтном источнике питания производства фирмы Spellman (США). От используемой ранее отечественной РТ с анодом прострельного типа пришлось отказаться: трубка фирмы RTW с боковым анодом обладает более выгодным спектром для целей элементного анализа и существенно надёжнее в эксплуатации.

На выпускаемых ЗАО «Комита» аппаратах типа X-Арт М исследовались образцы различного происхождения. В 2009 г. во ВНИИМ им. Д. И. Менделеева была аттестована методика измерений массовой доли элементов в порошковых пробах грунтов, горных и осадочных пород методом РФА [5]. Эта методика работает в составе программного комплекса «X-Арт Аналит» разработки ЗАО «Комита», предна-

значенного для количественного анализа состава образцов. Параллельно метод РФА с применением анализатора X-Арт М успешно использовался для анализа осадков проб воды (льда) [6], а также для анализа проб воздуха на фильтрах [7].

Среди пользователей прибора X-Арт М следует особо отметить Государственный Русский музей и Педагогический университет им. А. И. Герцена в Санкт-Петербурге, Институт биофизики (ФМБЦ) им. А. И. Бурназяна в Москве, Институт проблем химической физики РАН в Черноголовке.

Исследование халькогенидных стёкол в одной из лабораторий Педагогического университета им. А. И. Герцена на аппарате X-Арт М позволило с высокой точностью определять состав систем типа  $As_{1-x}S_x$ ,  $Ge_{1-x}S_x$ ,  $As_{1-x}Se_x$ ,  $Ge_{1-x}Se_x$  [8], а также  $As_x(Ge_ySe_{1-y})_{1-x}$  [9].

В биологической ткани чувствительность анализа тяжёлых элементов особенно велика. Это позволяет с пользой применить анализатор X-Арт М в решении подготовительных задач дозсаплиментарной лучевой терапии с гадолинием и висмутом, которые интересуют коллектив авторов ФМБЦ им. А. И. Бурназяна и Национального исследовательского ядерного университета «МИФИ» [10].



Рис. 1. Общий вид анализатора X-Арт М. На столе стойки расположены: аналитический блок, который произвольно разворачивается в пространстве и передвигается вертикально на опоре с воздушным тормозом, и монитор с точным прицелом, указывающим область наблюдения. Ниже расположены: блок питания и управления системой возбуждения и спектрометрический тракт анализатора.

Анализатор X-Арт М также был неоднократно использован экспертными криминалистическими центрами МВД Москвы и Санкт-Петербурга для анализа разнообразных вещественных доказательств, включая фальшивые купюры, образцы наркотиков и следы выстрелов [11].

Совместно с ОАО «Климов», начиная с 2006 г., на анализаторе X-Арт М активно велась работа по определению продуктов изнашивания в авиационных моторных маслах. С использованием метода стандартов были построены калибровочные кривые по 16 элементам, которые могут присутствовать в масле двигателей и коробок самолётных агрегатов. В последние годы эти работы по трибодиагностике ведутся совместно с ЦИАМ им. П. И. Баранова и 13-ым ГНИИ МО РФ в Москве. Моторное масло анализируется на фильтрах «Владипор», через которые прокачивается объём масла от 15 до 25 мл, и без отбора проб на фильтры. В 2011 году совместно с ОАО «Климов» планируется создание системы анализа в режиме *in line*, которая будет анализировать масло в потоке маслопровода вертолётных двигателей. Характерные результаты анализа, которые имеют значение для всех типов масел, употребляемых не только в авиации, представлены в работе [12].

Общий вид анализатора показан на рис. 1. Он комплектуется ЭВМ типа Note book.

Аналитический блок прибора может быть «оторван» от стойки и передвинут в произвольную точку пространства на удаление до 4 м от основного блока. Это позволяет анализировать любые крупногабаритные объекты сложной формы, например, лопатки больших турбин. Также становится возможен анализ произведений архитектуры [13], храмовых и иных фресок *in situ*.

В Государственном Русском музее в течение ряда лет с помощью аппарата X-Арт М ведётся анализ живописи и ценных исторических бумаг [14]. На рис. 2 показан образец подобного анализа на примере двух бумажных объектов XVIII века, из коих более поздний является подделкой более раннего. Из сопоставления двух спектров видно, как сильно образцы отличаются по составу бумаги при их полном внешнем сходстве.

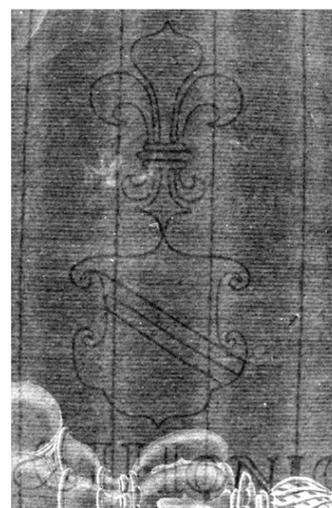
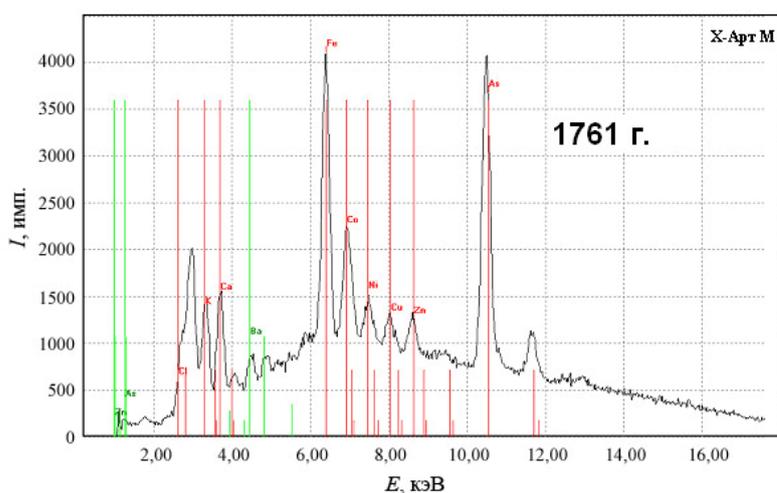
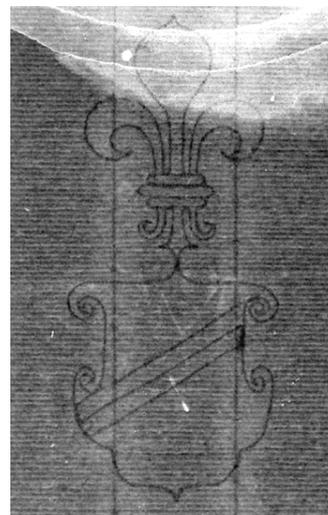
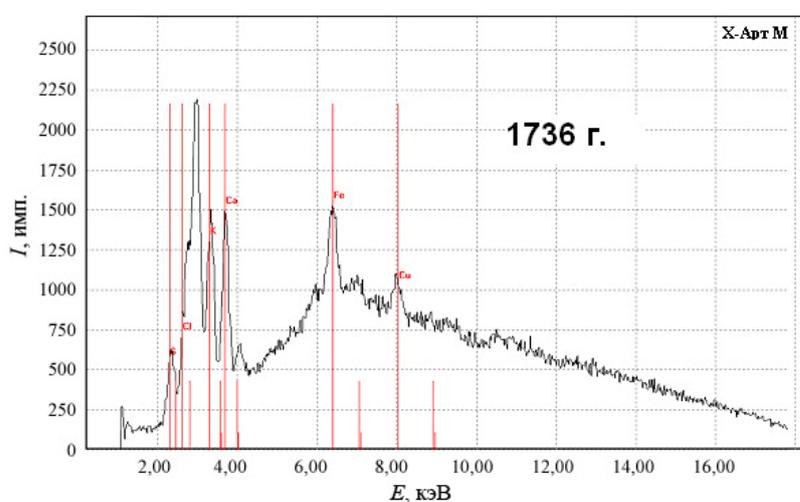


Рис. 2. Примеры спектров (старинные бумаги). Образец 1736 г. – основные аналитические элементы: S, K, Ca, Fe и Cu, образец 1761 г. – Cl, K, Ca, Ba, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn и As.

На рис. 3. показана рентгенооптическая схема анализатора X-Арт М. Ход лучей РТ соответствует наибольшей открытой диафрагме на первичном пучке, при этом анализируемая площадь на поверхности образца имеет характерный размер около 10 мм. Этому размеру примерно соответствует и зона видимости детектора, площадь кристалла которого составляет  $20 \text{ мм}^2$ .

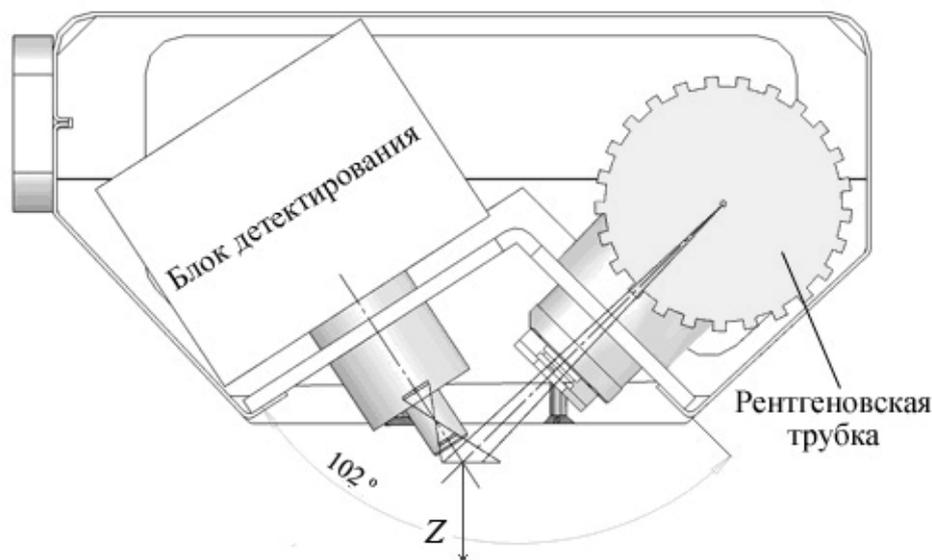


Рис. 3. Схема анализатора X-Арт М. Показан ход лучей, падающих на образец измерений, и конус видимости детектора.

Важной особенностью данного прибора является то, что зону пересечения двух указанных конусов (конуса излучения и видимости детектора) легко сделать значительно меньше. Этого можно достичь с помощью сменных диафрагм на пучке излучения РТ. И в этом случае у прибора появляется новая функция, которая условно может быть названа РФА-томографией.

Идея метода была впервые заявлена в 2008 г. на 9-й Международной конференции Art2008 в Иерусалиме [15] и получила одобрение заинтересованных исследователей из разных стран.

Согласно работе [16], если речь идёт о многослойном объекте измерений, то для получения независимых данных по элементному составу каждого слоя, а также для определения положения границ слоёв необходимо и достаточно в процессе измерений прецизионно передвигать объект измерений относительно анализатора в направлении  $Z$ , нормальном к поверхности объекта. При этом упомянутая выше зона пересечения конусов пучка излучения и видимости детектора последовательно пересекает изучаемые слои, а в регистрируемых спектрах появляются линии элементов, соответствующих им.

Возможности метода по определению абсолютного значения толщин покрытий демонстрируются ниже: на примере простого тест-объекта № 1, состоящего из пластинки чистого алюминия толщиной 0,8 мм на подложке из толстого слоя молибдена, и на примере многослойного объекта № 2, составленного из различных пигментов на холсте.

Обычно для измерения толщин покрытий применяется метод стандартов, для него заранее готовятся и промеряются образцы на подложках с покрытиями строго

известной толщины, после чего путём сопоставления результатов по неизвестному образцу с набором таких стандартов выявляется толщина слоя в неизвестном образце. Однако это длительный и дорогостоящий метод, к тому же зависящий от материала конкретных подложек.

В случае РФА-томографии положение объекта измерений изменяется пошагово с высокой точностью вдоль рабочей оси анализатора  $Z$ , нормальной к поверхности образца. Размер шага вдоль оси от 10 до 50 мкм. В покрытии и в подложке выбираются два элемента, каждый из которых присутствует только в одном слое (для тест-объекта № 1 это будут, естественно, Al и Mo). Интенсивности сигналов (площади под пиками соответствующих элементов за вычетом фона), равны нулю, когда объект находится далеко от анализатора.

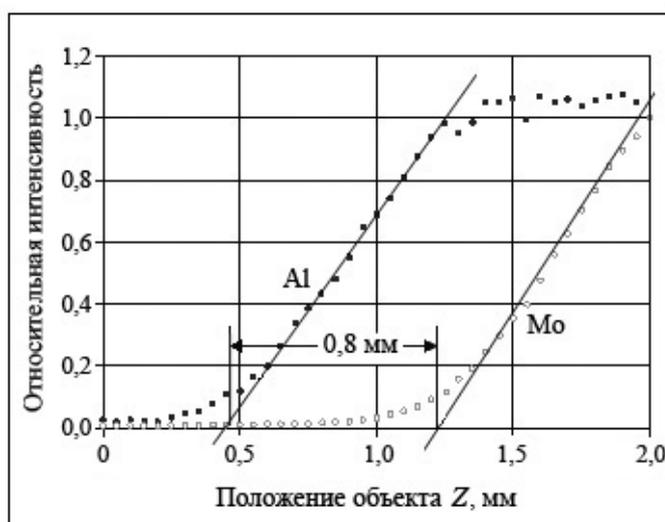


Рис. 4. Зависимость относительных интенсивностей линий Al и Mo, возбуждаемых в тест-объекте № 1, от его положения в пространстве (ноль по шкале абсцисс соответствует наибольшему удалению объекта от анализатора).

По мере придвижения объекта к прибору первичный пучок излучения касается сначала покрытия и возбуждает его элементы. В процессе дальнейшего перемещения объекта нарастают оба сигнала, что даёт возможность построить кривые зависимости интенсивностей линий двух элементов от положения объекта, как на рис. 4, где показаны кривые относительных интенсивностей, то есть по отношению к примерно максимальной зарегистрированной интенсивности по каждому элементу.

Как видно из рисунка, две кривые имеют различный наклон, и можно определить точки пересечения касательных к этим кривым с осью абсцисс. Очевидно, что абсолютная толщина верхнего слоя  $d$  равна разности отсчётов между этими двумя точками.

Особенно привлекательно то, что в предложенном методе нет привязки к плотностям слоев. В данном случае это означает, что если бы, например, верхний слой алюминия был напылённым и, следовательно, имел плотность меньше плотности стандартного металла, полученное значение  $d$  в мм (или в мкм) все равно было бы правильным. В то же время с применением метода стандартных образцов на основе алюминиевых фольг различной толщины оно получилось бы неверным. То есть

предложенный метод определяет не «эффективную» толщину верхнего слоя в  $\text{г/см}^2$ , а положение границы между верхним и нижним слоями в мм или мкм.

Для проверки предложенного метода измерений было выполнено несколько тест-объектов того же типа: 400 и 800 мкм чистого Al на подложках Ti, Cu и Mo. Показано, что метод работает с типичной ошибкой не хуже 5 %, если время измерения для каждого положения объекта составляет 60 с или более.

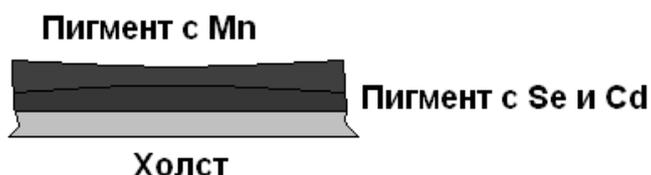


Рис. 5. Состав и геометрия тест-объекта № 2.

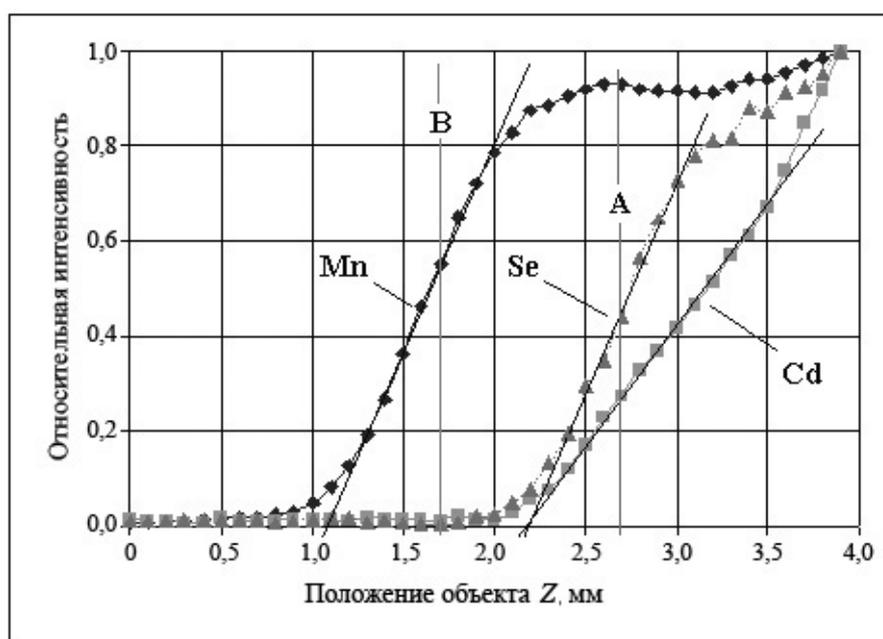


Рис. 6. Зависимость относительных интенсивностей линий Mn, Se и Cd, возбуждаемых в тест-объекте № 2, от его положения в пространстве (ноль по шкале абсцисс соответствует наибольшему удалению объекта от анализатора).

Тест-объект № 2 на холсте выполнен из двух пигментов: верхний (фиолетовый) – на основе Mn, а нижний (красный) – на основе Se и Cd (рис. 5). Толщины слоёв определяли методом точного взвешивания пигментов известной плотности, нанесённых на заданную площадь в  $2 \text{ см}^2$ .

На рис. 6 показаны результаты измерения интенсивностей трёх аналитических линий в зависимости от положения тест-объекта № 2 относительно анализатора, а на рис. 7 демонстрируются зарегистрированные спектры, соответствующие двум конкретным положениям объекта A и B в пространстве, обозначенным вертикальными линиями на рис. 6.

В соответствии с изложенными выше соображениями о методе РФА-томографии касательные к кривым относительных интенсивностей селена и кадмия при-

ходят на оси абсцисс в одну точку. Это однозначно определяет принадлежность двух данных элементов второму слою.

Точность механических микроподвижек, передвигающих образец или прибор, безусловно, весьма важна при проведении подобных экспериментов. Кроме того, для автоматизации процесса желательно, чтобы микроподвижка работала в заданном временном режиме, а регистрируемые спектры обрабатывались параллельно с измерениями.

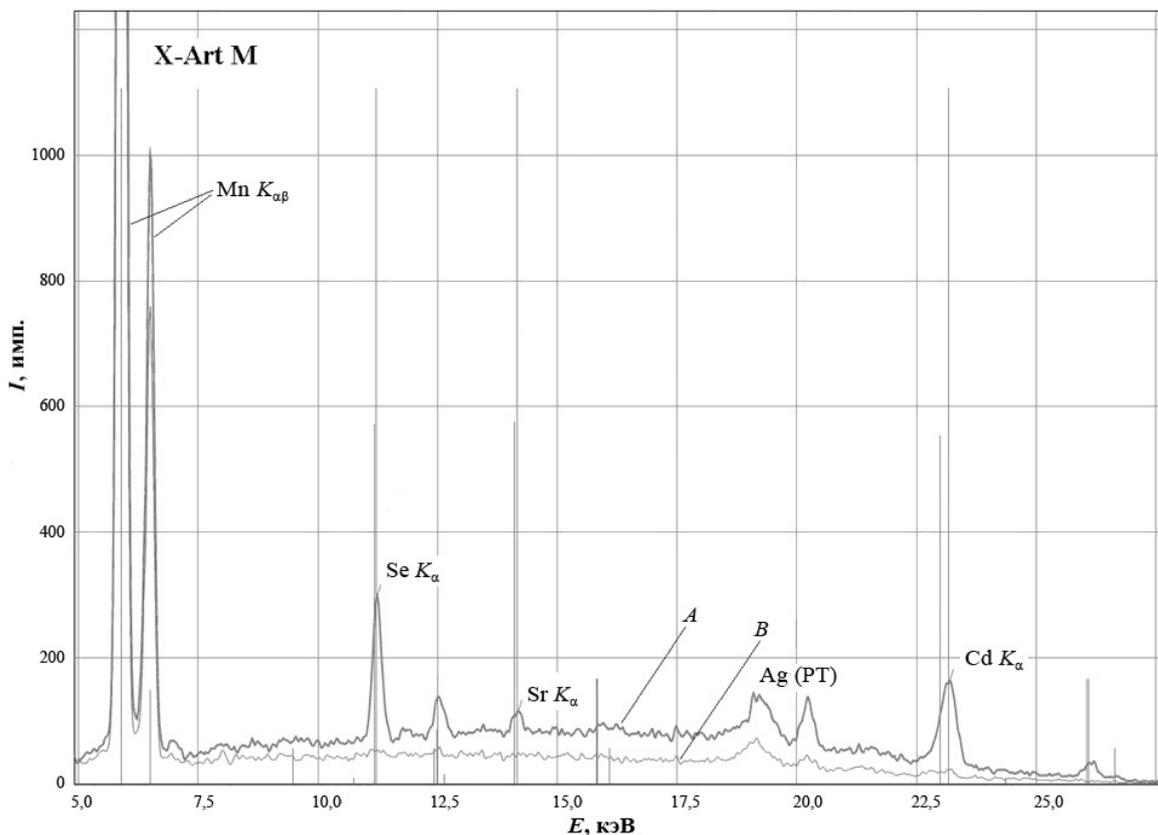


Рис. 7. Спектры тест-объекта № 2 на двух удалениях *A* и *B* от анализатора. Кроме аналитических линий Mn, Se, Sr и Cd видны пики когерентного и некогерентного рассеяния серебра (материал анода PT) на образце.

Все предварительные измерения с тест-объектами, показывающие возможности метода РФА-томографии, были сделаны с использованием простых ручных подвижек с погрешностью не лучше 5 мкм, при этом двигался непосредственно образец измерений. Однако в настоящее время на основе прецизионного механизма разработан управляемый от компьютера модуль микроподвижки аналитического блока аппарата X-Арт М, показанный на рис. 8.

Это более выгодная схема, так как объект измерений не всегда можно двигать, тем более с малой погрешностью. Планируется, что «под заказ» анализатор X-Арт М в будущем может быть исполнен с прецизионной микроподвижкой на основе системы фирмы Haydon Switch & Instruments Inc., показанной на рис. 8, с целью РФА-томографии различных объектов измерений по глубине. Гарантируется, что погрешность измеренного и реального положения аналитического блока вдоль рабочей оси *Z* будет не хуже 2 мкм.

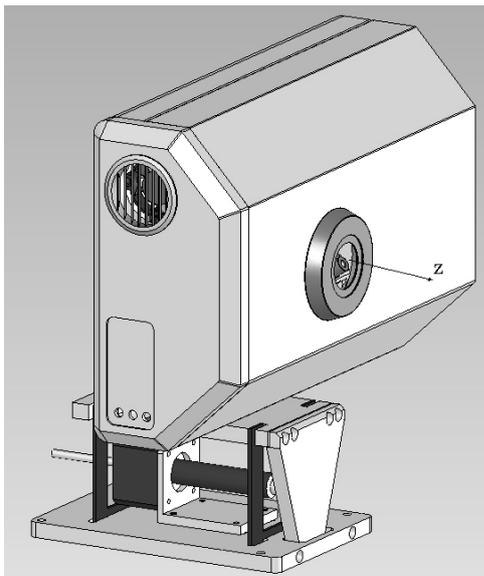


Рис. 8. Прецизионная механическая микро-подвижка анализатора X-Арт М вдоль рабочей координаты Z.

прецизионно передвигался в направлении X, а затем в направлении Y. При этом он постоянно находился в плоскости, где пересекаются оси конусов первичного пучка излучения и видимости детектора.

Для этого эксперимента на первичном пучке использовалась вольфрамовая диафрагма толщиной 1 мм и с диаметром отверстия 20 мкм. В принципе возможно использование диафрагм и с отверстиями меньшего диаметра (порядка 3–5 мкм), но в этом случае трудно набрать хорошую статистику в эксперименте за 100, 200 и даже за 600 с. Кроме того, тогда в регистрируемых спектрах будут видны линии вольфрама, так как доля первичного излучения, взаимодействовавшего со стенками канала диафрагмы, становится сравнима с долей излучения, прошедшего канал без взаимодействий.

Результаты сканирования проволокой по указанным осям представлены на рис. 9, где суммарная интенсивность трёх основных зарегистрированных детектором линий L-серии золота показана как функция координат X и Y.

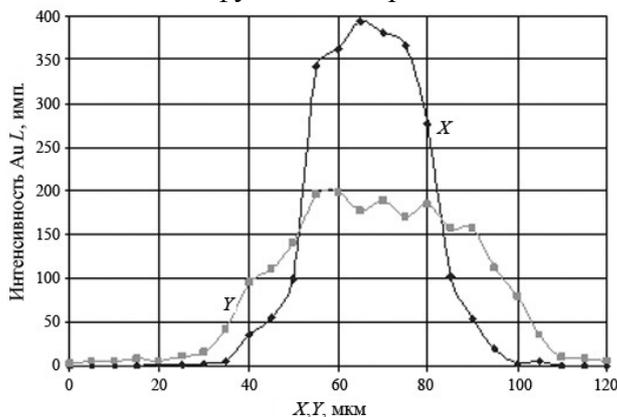


Рис. 9. Зависимость суммарной интенсивности линий Au L от координат расположения оси золотой проволоки диаметром 40 мкм относительно рентгенооптического фокуса анализатора. Диаметр отверстия диафрагмы первичного пучка 20 мкм.

Из рисунка видно, что пространственное разрешение по оси  $X$  не хуже 30–40 мкм, а по оси  $Y$  – около 60 мкм, если измерять его на половине высоты представленных здесь распределений. Следует отметить, что картирование элементов по поверхности объекта измерений в прямом смысле слова невозможно. Каждый аналитический элемент имеет свою характерную глубину выхода из заданного объекта, и при этом для лёгких и тяжёлых элементов эти величины могут отличаться более чем на порядок.

Для повышения скорости измерений вместо вольфрамовой диафрагмы можно воспользоваться капиллярными линзами рентгеновских лучей, которые широко используются в анализаторах европейского производства. Однако при этом надо иметь в виду, что в отличие от обычной диафрагмы такая линза не фокусирует первичные лучи в некоторой фокальной плоскости. Напротив, лучи, приходящие на объект измерений из разных капилляров линзы, фокусируются на различных удалениях вдоль оси  $Z$  по обе стороны от фокальной плоскости.

В 2009 г. в отделе радиэкологии и аналитических исследований Радиевого института была поставлена задача определения содержания Sr, Cs, и U в образцах грунта и водных растворов методом РФА. Для этого прибор X-Арт М был видоизменен. С учётом специфики предприятий ГК «Росатом» для возбуждения характеристического излучения в образцах было предложено применение изотопных источников, например  $^{109}\text{Cd}$ ,  $^{241}\text{Am}$  и  $^{57}\text{Co}$ , вместо рентгеновской трубки (РТ).

Конечные цели сформулированы следующим образом: решение задач по обнаружению указанных элементов в объектах окружающей среды и определение химических выходов соответствующих изотопов в процессе обогащения проб воды и грунта.

Согласно выводам работы [17], стронций и цезий могут быть зарегистрированы по линиям  $K$ -серий флуоресценции с применением источников на основе  $^{109}\text{Cd}$  и  $^{241}\text{Am}$  соответственно. Уран в водных растворах можно регистрировать по  $L$ -серии характеристического излучения с применением изотопного источника на основе  $^{109}\text{Cd}$ . Однако в образцах грунта линии  $K$ -серии природного стронция будут накладываться на линии  $L$ -серии урана. В результате проанализировать содержание малых концентраций урана в таких образцах будет практически невозможно. Поэтому, несмотря на плохую эффективность кремниевого детектора для высоких энергий, необходимо стараться зарегистрировать линии  $K$ -серии урана (в районе 100 кэВ), что возможно [17] с применением источника на основе  $^{57}\text{Co}$ .

Расчётная эффективность  $\epsilon$  прямого фотопоглощения в кремниевом детекторе (при нормальном падении пучка излучения на окно) для энергии 100 кэВ представлена ниже в табл. 1.

Таблица 1. Эффективность Si(Li) детектора для фотонов с энергией 100 кэВ

Толщина кристалла детектора $d$ , мм	Эффективность $\epsilon$ по фотопику, %
3,5	2,1
5,0	3,0

Реально экспериментальная вероятность полного поглощения несколько больше за счёт падения регистрируемого излучения на кристалл детектора под различными углами, а не только нормально, и за счёт того, что акт поглощения фотона в чувствительном объёме кристалла детектора может состояться после предвари-

тельного когерентного или некогерентного рассеяния фотона в нём же. Полная вероятность поглощения в кристалле толщиной 5 мм должна быть не менее 4–5 %. При необходимости она может быть строго рассчитана с применением моделирования траекторий фотонов методом Монте-Карло по программе, аналогичной описанной в работе [18].

Геометрия измерений задаётся размерами изотопного источника и защиты блока детектирования, выполненной из свинца. Результаты анализа с помощью макета прибора ниже обсуждаются на примере образцов с ураном.

Растворы урана приготовлены в пластиковых кюветах малого размера (ёмкость – 1,5 см<sup>3</sup>). Характерный объём жидкости – 0,6 мл. Среда – 1 моль/л азотная кислота. Исходная проба – CRM NBL 112 А (природный уран) с концентрацией 9,018 мг/г или 0,0135 %.

На рис. 10 представлены три спектра образцов водных растворов урана. Эти спектры получены на серийном аппарате X-Арт М с РТ в качестве источника возбуждения. Напряжение на аноде РТ (Ag) – 30 кВ, анодный ток – 20 мкА, образец в кювете находится в фокусе рабочего окна анализатора, время измерений одного спектра – 100 с.

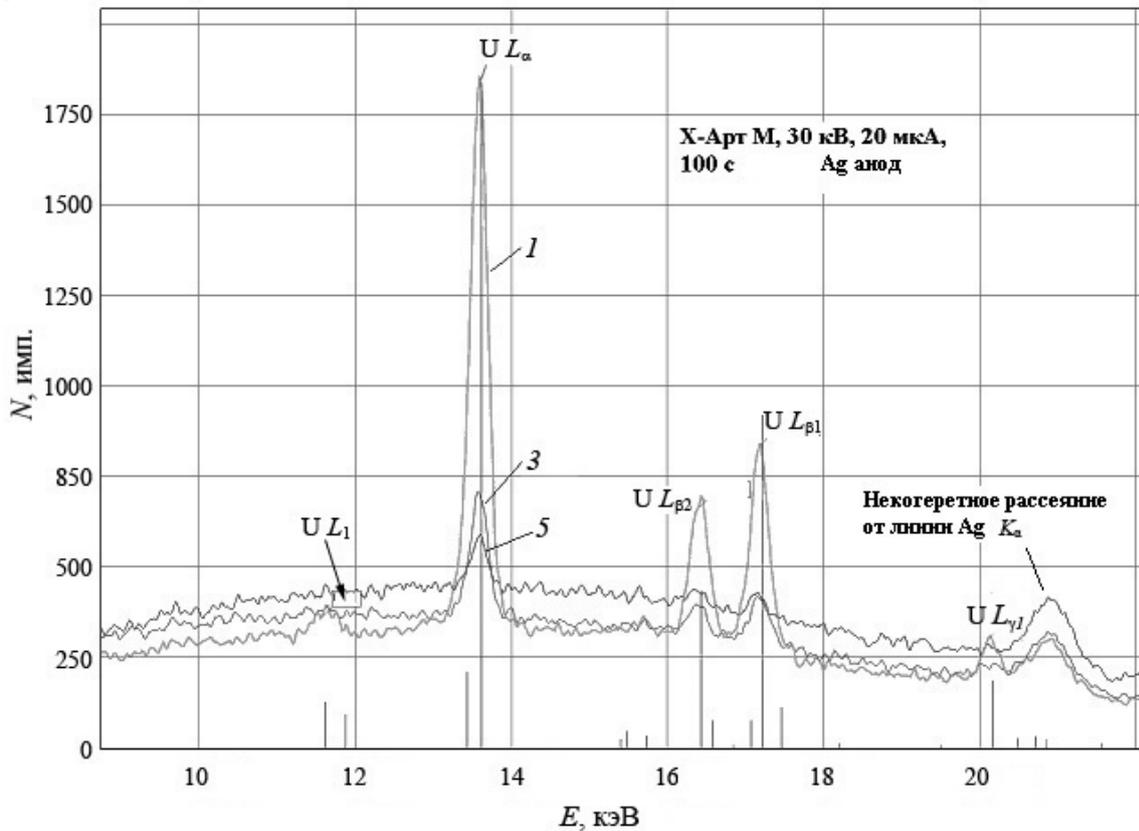


Рис. 10. Спектры растворов урана, полученные на анализаторе X-Арт М при напряжении на аноде РТ 30 кВ; концентрации урана, мг/г: 1 – 9; 3 – 4,7; 5 – 0,6.

Из рисунка видно, что все линии L-серии урана, включая линию  $L_I$  (11,62 кэВ) и линию  $L_\gamma$  (20,16 кэВ), хорошо прописаны при высокой концентрации элемента в растворе.

На рис. 11 показана калибровочная зависимость интенсивности линии  $U L_\alpha$  от концентрации элемента в растворе, которая аппроксимируется линейной функцией.

При увеличении времени измерения до 300 с этим способом вполне возможно снизить порог обнаружения урана до 50 м.д. Аналогичный порог обнаружения по урану безусловно достижим и с изотопным источником на основе  $^{109}\text{Cd}$  при условии, что в образце нет элементов, линии которых мешают регистрации линии  $U L_{\alpha}$ .

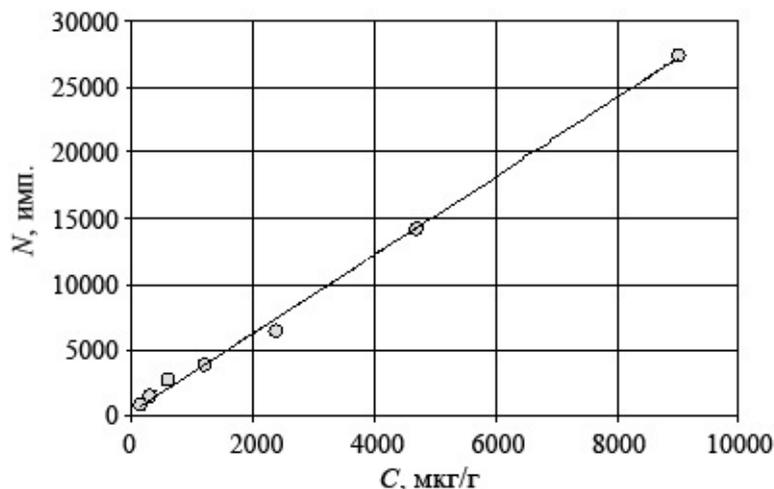


Рис. 11. Интенсивность линии  $L_{\alpha}$  урана в растворе в зависимости от концентрации  $C$ , полученная на анализаторе X-Арт М с РТ.

Показанный на рис. 12 спектр образца получен с использованием изотопного источника  $^{109}\text{Cd}$  для возбуждения флуоресценции. При этом детектор регистрировал рассеянное образцом излучение под углами, близкими к  $180^{\circ}$ .

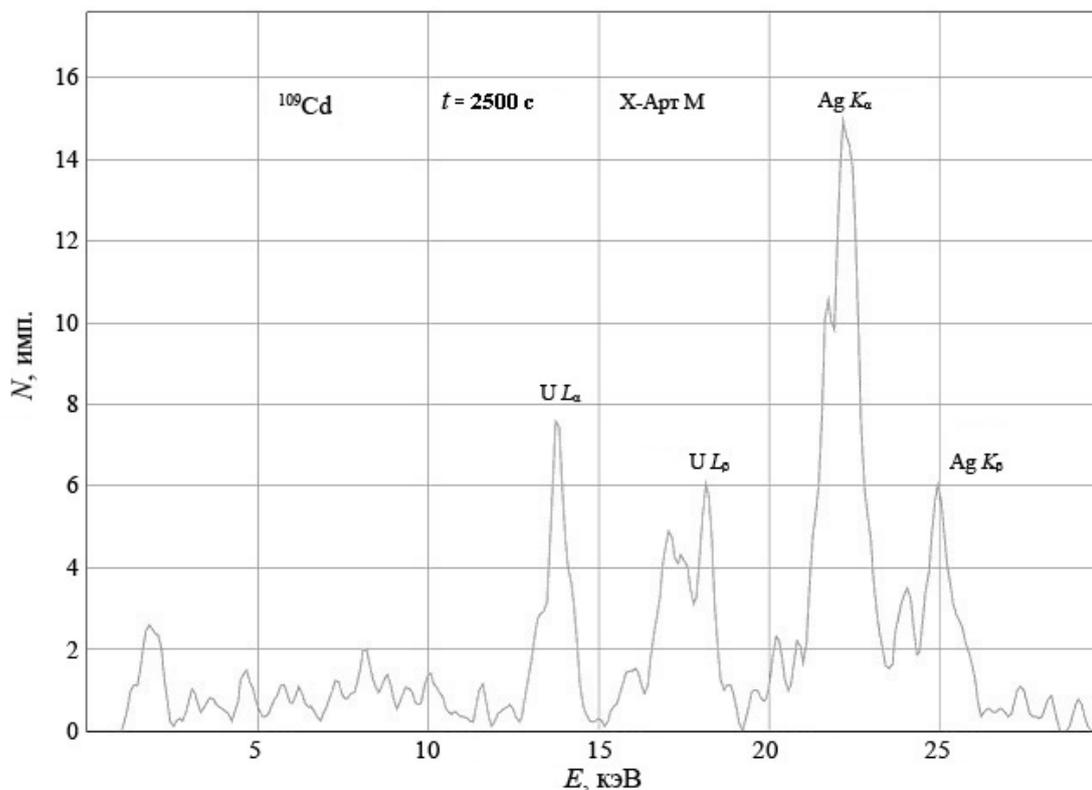


Рис. 12. Спектр образца с ураном, полученный при использовании источника малой интенсивности на основе изотопа  $^{109}\text{Cd}$ .

К сожалению, на момент измерений в распоряжении имелся только источник крайне низкой активности, поэтому время измерения очень велико (около 2500 с), а статистика в спектре очень скудна, несмотря на высокую концентрацию урана в образце.

Однако всё же из рисунка понятно соотношение амплитуд рассеянного на образце излучения линий серебра (22,1 и 25,0 кэВ) и возбуждённых линий  $L$ -серии урана. Для сравнения можно увидеть на рис. 10 пик некогерентного рассеяния излучения линии  $Ag K_{\alpha}$  от анода РТ (в районе 21 кэВ), но в этом случае угол рассеяния близок к  $90^{\circ}$ , и поэтому амплитуды рассеяния меньше. С другой стороны, при использовании РТ в спектре имеется значительный фон (он хорошо виден на рис. 10), обусловленный наличием протяжённого спектра тормозного излучения трубки. По этой причине измерения с источником на основе изотопа  $^{109}Cd$  могут в целом оказаться выгоднее измерений с РТ.

С учетом того, что энергии линий  $K$ -серии стронция равны 14,14 и 15,85 кэВ, очевидно, что для определения стронция в образцах источник на основе  $^{109}Cd$  также применим и весьма выгоден. Однако, как уже указывалось, одновременное наличие в образце стронция и урана может помешать их определению.

В связи с этим была предпринята попытка измерения интенсивности линий  $K$ -серии урана с использованием изотопа  $^{57}Co$  в качестве источника для возбуждения флуоресценции.

В этом случае образец урана в порошке представлял собой окись  $U_3O_8$  в количестве 227 мг, что в пересчёте на чистый уран дает абсолютную массу в 187 мг. Этот образец помещали в стандартную кювету с плоским дном из майларовой пленки внутренним диаметром 20 мм. Кювета размещалась на расстоянии около 3 см от окна блока детектирования.

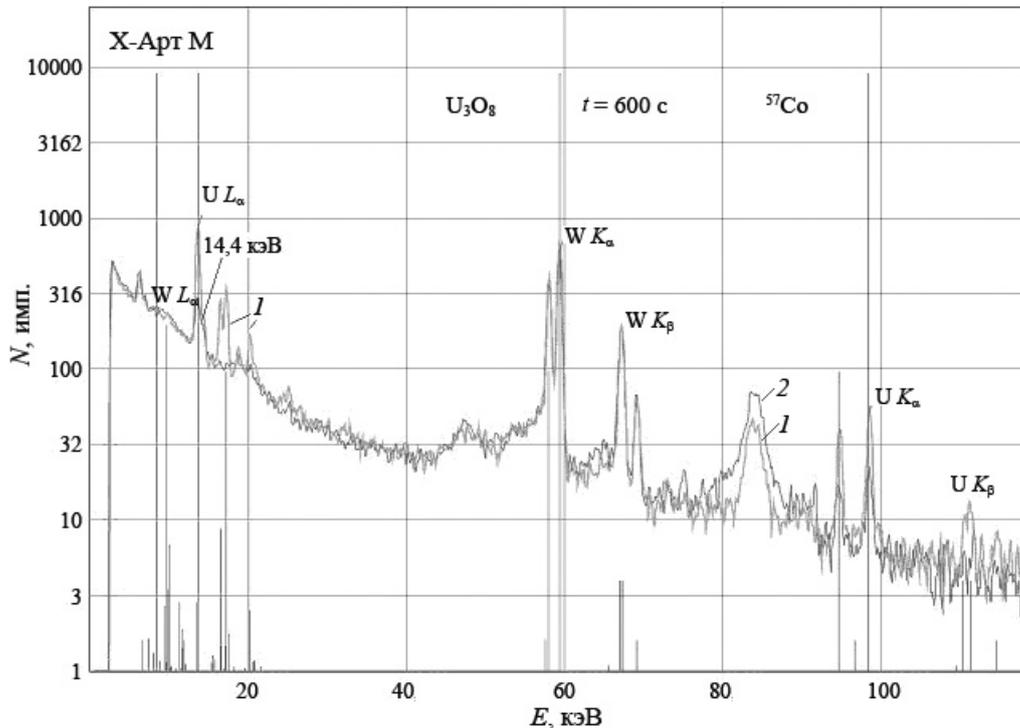


Рис. 13. Спектры образца  $U_3O_8$  при облучении источником на основе  $^{57}Co$  на воздухе (кривая 1) и за пластиной из дюралюминия толщиной 3,9 мм (кривая 2).

Измерения с источником на основе  $^{57}\text{Co}$  активностью 16 мКи проводили на воздухе, а также – для имитации образца грунта – за преградой из дюралюминия толщиной 3,9 мм. Время каждого измерения – около 600 с. Из рис. 13, на котором показаны спектры, видно, что на воздухе детектор регистрирует линии *L*-серии урана, а сигнал по линиям *K*-серии урана сохраняется и за указанной преградой из дюралюминия. Также видны широкие пики некогерентного рассеяния линии 122 кэВ (в районе 85 кэВ) и линии вольфрама, которые принадлежат окружающим (коллимационным) конструкциям.

Учитывая конкретную навеску порошка  $\text{U}_3\text{O}_8$ , понятно, что в грунте порог обнаружения этого элемента может быть порядка 0,2 %. Эта цифра получена из соображений, связанных с оценкой относительной массы навески урана в случае её расположения за слоем дюралюминия, и с учётом того, что в грунте уран распределён по глубине практически равномерно.

Ясно, что для набора хорошей статистики в пиках  $\text{U } K_\alpha$  необходимо большое время измерения и желателен источник более высокой активности, но соотношение пик/фон в области расположения линий *K*-серии урана наилучшее. В принципе для решения подобных задач анализатор X-Арт М может быть оснащён более эффективным детектором на основе материалов HP Ge или CdTe.

На предприятиях Росатома в ряде случаев представляет интерес определение содержания химических элементов в радиоактивных образцах или в полях жёсткого излучения высокой мощности методом РФА.

При наличии  $\alpha$ -,  $\beta$ - и  $\gamma$ -излучателей в образце или в окружающих конструкциях стандартный подход к измерению элементного состава методом РФА сильно затруднён ввиду того, что детектор регистрирует как рассеянное ядерное излучение, так и вторичное излучение, возбуждаемое в веществе, и на этом фоне полезная информация о характеристических линиях анализируемых химических элементов либо недоступна, либо может быть получена с большой погрешностью. Радиационный фон обусловлен, главным образом, накоплением многократно рассеянного излучения как раз в той области регистрируемого спектра, где сосредоточен полезный сигнал, отвечающий *K*- и *L*-сериям флуоресцентного излучения образца.

С целью подавления радиационного фона ранее использовались сборки из пиролитического графита цилиндрического типа, разработанные в Радиевом институте в 70-е и 80-е гг. [19, 20]. Аппаратура, изготовленная совместно с РНИИРП, нашла свое применение на предприятиях радиохимического производства, однако достижимый коэффициент подавления фона был невелик (менее одного порядка).

Нами совместно с фирмой BSI предложена другая, более выгодная схема измерений, основанная на применении капиллярной структуры, выполненной из лабораторного стекла и являющейся проводником рентгеновского излучения [21]. В соответствии с этой схемой предполагается, что детектор, защищённый пассивной защитой от  $\gamma$ -излучения и заряженных частиц высокой энергии, снабжён подобной структурой достаточной длины. Эта капиллярная структура проходит через слои защиты таким образом, что один её конец направлен на пробу, а второй находится в непосредственной близости от окна детектора и ориентирован нормально к нему.

Благодаря эффекту полного внешнего отражения (ПВО) на стенках капилляров [22] рентгеновское излучение, включая характеристическое излучение элементов, возбуждённое в образце собственным излучением или источником на основе рентгеновской трубки, проходит по каналам сборки в детектор. В то же время жёст-

кие фотоны и заряженные частицы, двигаясь по прямым лучам, попадают в стенки каналов и поглощаются в материале стенок.

Длина капиллярной сборки, степень её изгиба и диаметры каналов могут быть подобраны так, чтобы обеспечить максимальное подавление фона (в  $10^2$ – $10^3$  раз) при наибольшей скорости счёта полезного сигнала в детекторе.

Схема ПВО может быть также весьма полезна при анализе водных растворов радионуклидов с низким порогом обнаружения порядка  $10^{-9}$  г/г.

В этом случае анализатор основан на использовании идеи полного внешнего отражения рентгеновского излучения на плоских поверхностях полированного кварцевого стекла. Схема анализатора согласно [21] показана на рис. 14. Микрофокусный источник излучения на основе РТ расположен таким образом, что направленный поток рентгеновских фотонов входит в щель между двумя кварцевыми пластинами, отполированными по 15–17 классу точности.



Рис. 14. Схема анализатора с ПВО.

Диаметр каждой пластины 70 мм. Расстояние между двумя сложенными пластинами  $h$  при такой полировке автоматически составляет всегда примерно 10 мкм. Положение оси пучка излучения относительно щели может меняться с помощью юстировки положения РТ. Нижняя пластина имеет отверстие диаметром 10 мм, через которое на верхнюю пластину «смотрит» кремниевый детектор. Верхняя пластина съёмная. Она принимает на себя (в центр) мерную каплю исследуемого водного раствора, и эта капля высушивается на ней при невысокой температуре (до  $80\text{ }^{\circ}\text{C}$ ).

Первичные фотоны РТ после 30–40 отражений от стенок (пластин) достигают окрестности капли, которая после высушивания обычно принимает форму кольца за счёт сил поверхностного натяжения, распределяющих минеральный остаток по краям капли. Коэффициент ПВО близок к единице, поэтому, несмотря на многократные отражения, до пробы добирается более 80 % первичных фотонов.

Далее судьба первичного фотона может быть двойкой: либо он вновь отразится от верхней пластины и пройдёт вдоль щели в прежнем направлении, либо даст флуоресценцию в веществе пробы. В последнем случае она может быть зафиксирована детектором, а регистрируемые спектры при этом почти не содержат фона. Для того чтобы представить масштабы измеряемых концентраций, приводим таблицу из работы [23], где даны относительные и абсолютные значения масс девяти элементов в 30 мкл обычной водопроводной воды, высушенной на подложке (10-й элемент – Ga – служил внутренним стандартом).

Таблица 2. Измерения в водном растворе с использованием метода ПВО

Элемент	C, мг/л или м.д.	$\delta C$ , %	M, нг
S	1,51	4	45,3
Cl	5,88	1	176
K	1,36	3	40,8
Ca	6,59	1	198
Fe	$53 \cdot 10^{-3}$	3	1,59
Cu	$15 \cdot 10^{-3}$	7	0,45
Zn	$12 \cdot 10^{-3}$	12	0,36
Ga	1,0	1	30
Sr	$2,9 \cdot 10^{-3}$	15	0,087
Y	$2,8 \cdot 10^{-3}$	16	0,084

Таким образом, за счёт резкого концентрирования элементов при высушивании пробы и за счёт ПВО, то есть за счёт уменьшения фона рассеянного излучения, порог обнаружения элементов в водном растворе может быть снижен примерно на три порядка. Это весьма существенно при анализе высокорadioактивных образцов, так как сама начальная навеска крайне мала, и, следовательно, её активность невысока.

При необходимости сделать анализ более представительным можно повторить отбор нескольких капель из большого объема раствора.

Во время измерений требуется выдержать одинаковые условия для анализа всех образцов. Это обеспечивается, с одной стороны, применением специальных устройств пробоотбора, а с другой стороны – выравниванием скоростей счёта в детекторе путём настройки системы каждый раз на максимально возможную скорость счёта с помощью юстировки положения РТ.

Очевидно, что часть первичного пучка не попадает в зазор между пластинами, поэтому нужно подбирать мощность и фокус РТ, исходя из условий коллимации и возможных скоростей счёта для данного детектора.

Данный проект поддержан ФМБА РФ в связи с необходимостью экспрессного анализа биосубстратов человека на уровне единиц и долей млрд. д. В настоящее время определены условия разработки нового анализатора с условным наименованием X-АРО (анализатор растворенных образцов), который должен быть создан в течение 2011–2014 гг. Количественный анализ в этом случае всегда основан на введении в раствор внутреннего стандарта и поэтому надежен и относительно прост.

В процессе разработки, в которой участвуют ЗАО «Комита», ОАО ЦНИИ «Электрон» и ОАО «Концерн “ЦНИИ ‘Электроприбор’”», предлагается использовать РТ на новом принципе, защищённом патентом [24]. Идея нового подхода состоит в том, что вместо традиционного катода накального типа в РТ используется катод на базе внешнего светодиода и встроенного фотоэлектронного умножителя. В настоящее время опытная партия этих РТ, которые имеют более высокую стабильность тока и больший ресурс работы по сравнению с предлагаемыми на мировом рынке изделиями, подготавливается к выпуску.

Теоретическая составляющая работы с анализатором X-Арт М основана на применении метода Монте-Карло, имитационные программы по моделированию переноса рентгеновского излучения в геометрии реальных спектрометров изложены в работе [25]. В отличие от других подходов, реализующих метод фундаментальных параметров, метод Монте-Карло позволяет легко учитывать каскадные процессы подвозбуждения одних элементов пробы другими и – при необходимости – учесть неоднородности в структуре материала образцов.

В настоящее время исходный спектр РТ с помощью диафрагм малого диаметра измеряется на собственном спектрометре с Si(Li) детектором и корректируется с учётом функции отклика детектора. Созданные моделирующие программы используют наиболее современную физическую модель, описанную в главе 6 монографии [26], и тестируются на обширной базе современных опубликованных экспериментальных данных.

Результатом работы моделирующих программ являются расчётные спектры, соответствующие конкретным образцам измерений. Далее концентрации элементов в образце могут подбираться с помощью итеративного метода на основе их вариаций до практически полного совпадения расчётного и экспериментального спектра. Вариации концентраций при этом должны осуществляться целенаправленно, с использованием метода наискорейшего спуска.

Отличие созданных моделирующих программ от многих других, известных из литературы, заключается в обязательном применении методов существенной выборки для ускорения счёта с целью приблизить время моделирования спектров к реальному времени их набора в эксперименте при той же статистике отсчетов в спектре. Существенная выборка включает введение физических и геометрических статистических весов для моделируемых историй фотонов.

### Список литературы

1. Koudryashov V. I., Serebryakov A. S., Smirnov V. V. Investigation of Possibility to Detect the Detonators of the Explosive Devices by Means of ED XRF Approach // Detection and Disposal of Improvised Explosives / Eds H. Schubert, A. Kuznetsov, Netherlands: Springer, 2006. P. 223–226.
2. Серебряков А. С., Кудряшов В. И., Чирков Г. Г., Римская-Корсакова С. В. и др. Исследование возможности решения задач определения состава пигментов в произведениях искусства с применением рентгеновского спектрометра «X-Art»: Науч.-тех. отчет ГРМ и НПО РИ. СПб, 1999. 38 с.
3. Serebryakov A. S., Demchenko E. L., Koudryashov V. I. Sokolov A. D. Energy Dispersive X-ray Fluorescent (ED XRF) Analyzer X-Art for Investigation of Artworks // Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. 2004. Vol. 213B. P. 699–702.
4. Доценко Д. О., Соколов А. Д. Отчет по измерению состава образцов руд Ковдорского комбината, Рига: BSI. 2006. 7 с.
5. Свидетельство об аттестации методики выполнения измерений № 242/37-09. Федеральное агентство по техническому регулированию и метрологии, ФГУП «ВНИИМ им. Д.И.Менделеева», 2009.
6. Кудряшов В. И. Анализ элементного состава ледников Тянь-Шаня, Памира и Алтая // Экологическая химия. 2004. Т. 13, вып. 3. С. 153–166.
7. Ивлев Л. С., Кудряшов В. И., Ариас Вильянуэва Э. М. Вариации концентрации и химического состава аэрозолей приземного слоя атмосферы в западных штатах

- Мексики // 3-я Междунар. конф. «Естественные и антропогенные аэрозоли» (24.09-27.09.2001): Сб. тр. СПб.: Изд-во НИИХ СПбГУ, 2003. С. 54–71.
8. Бордовский Г. А., Марченко А. В., Серегин П. П. и др. Определение состава бинарных халькогенидных стекол методом рентгенофлуоресцентного анализа // ФТП. 2010. Т. 44, вып. 1. С. 26–29.
  9. Бордовский Г. А., Гладких П. В., Еремин И. В. и др. Рентгенофлуоресцентный анализ халькогенидных стекол As–Ge–Se // Письма в ЖТФ. 2011. Т. 37, вып. 6. С. 15–20.
  10. Липенгольц А. А., Федотов Ю. А., Зайцев К.Н. и др. Определение дозсаплиментарных препаратов в биологических тканях // Матер. IV Всерос. конгресса лучевых диагностов и терапевтов «Радиология-2010». М., 25–27 мая 2010 г. С. 262–263.
  11. Интернет-журнал «Оружие России». 2009. [www.arms-expo.ru/site.xp/-049051124054057056056.html](http://www.arms-expo.ru/site.xp/-049051124054057056056.html).
  12. Кудряшов В. И., Мороз А. П., Серебряков А. С. Оценка содержания продуктов изнашивания в моторных маслах методом ЭД РФА без отбора проб на фильтры // «Трибология и надежность»: Сб. науч. тр. IX Междунар. конф. СПб., 8–10 окт. 2009 г. СПб.: Изд-во Петербургского гос. ун-та путей сообщения, 2009. С. 157–158.
  13. Кудряшов В. И., Парфенов В. А., Серебряков А. С. Применение рентгенофлуоресцентного анализатора для контроля лазерной очистки в реставрации // Оптический журнал. 2010. Т. 77, № 8. С. 8–12.
  14. Сирро С. В., Римская-Корсакова С. В., Серебряков А. С., Кудряшов В. И. Незаменимый музейный эксперт // Атомная стратегия. 2006. № 7(21). С. 31.
  15. Serebryakov A. S., Koudryashov V. I., Toropov V. Yu., et al. Absolute Measurement of the Coating Thickness with the Use of ED XRF Spectrometer // Art2008, 9<sup>th</sup> Int. Conf. “Non-destructive Investigations and Microanalysis for the Diagnostics and Conservation of Cultural and Environmental Heritage”. Jerusalem, Israel, May 25-30, 2008. Program and Abstracts. P. 148. ([www.ndt.net/article/art2008/papers/-096Serebryakov.pdf](http://www.ndt.net/article/art2008/papers/-096Serebryakov.pdf))
  16. Серебряков А. С. Новый подход к исследованию многослойной структуры художественных работ // Реликвия. 2008. № 18. С. 26–27.
  17. Faddeev S. L., Fedorov V. V., Shchukin G. E. Low-energy Radionuclide Photon Source for X-Ray Fluorescence Analysis // Appl. Radiat. Isot. 1990. Vol. 41. N 10/11, P. 1153–1158.
  18. Gogolev A. V., Grebenshikov V. V., Damaskinsky E. A., et al. Monte Carlo Model of NaI(Tl) Detector Unit for Investigation of X-ray Spectra in the Energy Range from 3 to 150 keV / Тез. докл. VIII Междунар. конф. “Проблемы прикладной спектроскопии и радиометрии ППСР-2004”. Рига, 4–8 окт. 2004 г.
  19. Бердигов В. В., Иохин Б. С. Высокочувствительный рентгенофлуоресцентный метод определения концентрации тяжёлых элементов в растворах // Радиохимия. 1982. Т. 24, вып. 4. С. 525–528.
  20. Гальцев П. А. Иохин Б. С. Энергодисперсионный рентгенофлуоресцентный анализатор повышенной чувствительности // Завод. лаборатория, 1991. № 6. С. 21–24.
  21. Blyakher E. V., Serebryakov A. S., Shirokobrod O. E. Method and Apparatus for Detecting Trace Elements in Substance through X-Ray Fluorescence. US Patent 5,537,451. July 16, 1996.

22. Serebryakov A. S., Chirkov G. G., Volotskoy M. P. et al. Capillary Device as an X-ray Source Brilliance Amplifier // SPIE Proc. 2002. Vol. 4765. P. 167–169.
23. Кондуров И. А., Коротких Е. М., Сушков П. А., Тюкавина Т. М. Определение концентрации тяжёлых металлов в воде на рентгенофлюоресцентном спектрометре с полным отражением возбуждающего пучка // Матер. X Междунар. семинара по точным измерениям в ядерной спектроскопии (ТИЯС X), Валдай, 15–17 июня 1994 г. СПб.: Изд-во ПИЯФ, 1994. С. 75–77.
24. Serebryakov A. S., Saifutdinov V. M., Fedkov E. A. et al. Nepartrauktas Darbibas Rentgenlampā (Рентгеновская трубка непрерывного действия). Patent No: LV 14047 B, publikācijas datums: 20.01.2010. Rīga, Latvia.
25. Лебедев А. Г., Серебряков А. С., Федьков Е. А. Возможность решения уравнений связи рентгенорадиометрического анализа методом Монте-Карло // Аппаратура и методы рентгеновского анализа: Сб. статей ЛНПО «Буревестник». Вып. 30. Л.: Машиностроение, Ленингр. отд., 1983. С. 84–87.
26. Tsuji K., Injuk J., Van Grieken R. X-Ray Spectrometry: Recent Technological Advances. England: Wiley. 2004. 603 p.

### **Capabilities of ED XRF Analysis for Solving Typical Problems Arising in SC Rosatom and Other Federal Agencies**

A. S. Serebryakov, V. I. Kudryashov

The capabilities of the energy dispersive X-ray fluorescence approach for solving typical problems of chemical element analysis arising in SC Rosatom and other federal agencies are discussed. The X-Art M analyzer developed under JSC “Comita” support and guidance is briefly described, and the applications of this instrument in various fields within the past decade are presented.

## Содержание радионуклидов $^{85}\text{Kr}$ и $\text{Xe}$ в атмосферном воздухе Северо-Западного региона России в 2006–2008 гг.

Ю. В. Дубасов, Н. С. Окунев

В результате двухлетнего периода наблюдения в Северо-Западном регионе РФ установлены пределы изменения концентрации радионуклидов  $\text{Xe}$  и  $^{85}\text{Kr}$  в Санкт-Петербурге и г. Череповец Вологодской области. Среднее значение концентрации  $^{85}\text{Kr}$  в г. Череповец составило за период 2006–2008 гг.  $1,55 \pm 0,12$  Бк/м<sup>3</sup>. Это значение согласуется с данными для Западной Европы и Японии. Разработана высокочувствительная методика определения  $^{133}\text{Xe}$ , минимальная детектируемая концентрация равна 0,008 мБк/м<sup>3</sup>. Разработана методика выделения  $\text{Kr}$  и  $\text{Xe}$  из жидкого кислорода для определения концентрации радионуклидов благородных газов в атмосферном воздухе. Методика применена для их мониторинга. Концентрация  $^{133}\text{Xe}$  в воздухе г. Череповец менялась от 0,09 до 2,5 мБк/м<sup>3</sup>, средняя величина равнялась  $0,79 \pm 0,46$  мБк/м<sup>3</sup>. Концентрация  $^{133}\text{Xe}$  в Санкт-Петербурге менялась от 0,2 до 180 мБк/м<sup>3</sup>, среднее значение –  $\sim 12$  мБк/м<sup>3</sup>, медиана – 1,9 мБк/м<sup>3</sup>. В ряде случаев в пробах регистрировались  $^{133}\text{Xe}$  и  $^{135}\text{Xe}$ , их отношение варьировалось в широких пределах. Показано, что выбросы радионуклидов  $\text{Xe}$  и  $^{85}\text{Kr}$  могут фиксироваться на значительных удалениях от источника истечения. Наличие в пробе воздуха двух радионуклидов  $^{133}\text{Xe}$  и  $^{135}\text{Xe}$  позволяет оценить расстояние от источника выброса до точки пробоотбора. Предлагается использовать пробы криптонксеноновой смеси, а также пробы жидкого кислорода для целей мониторинга. Измерение  $\text{Kr}$  и  $\text{Xe}$ , выделенных из проб жидкого кислорода, позволяет получать данные о содержании радионуклидов в небольшом временном интервале.

### Введение

Источниками радионуклидов  $\text{Kr}$  и  $\text{Xe}$  в атмосферном воздухе являются объекты атомной энергетики и промышленности, ядерные взрывы, а также предприятия, производящие радиофармацевтические препараты. Повышение концентрации радионуклидов ксенона в атмосфере может свидетельствовать о нарушении режимов газоочистки на атомных электростанциях или выбросе с других объектов.

В СССР–России мониторинг  $^{85}\text{Kr}$  проводился в течении 1977–1993 гг. сотрудниками Института экспериментальной метеорологии – НПО «Тайфун» [1, 2]. Вообще же в мире мониторинг  $^{85}\text{Kr}$  проводился с конца 50-х годов XX столетия. Концентрация  $^{85}\text{Kr}$  за этот период неуклонно возрастала.

Сотрудники НПО «Тайфун» ежемесячно отбирали на некоторых заводах фракцию криптона для последующего определения объёмной активности  $^{85}\text{Kr}$ . В табл. 1 приведены данные по средней концентрации  $^{85}\text{Kr}$  в последние годы мониторинга.

Вскоре после распада СССР работы по мониторингу  $^{85}\text{Kr}$  в РФ прекратились.

В конце 80-х – начале 90-х годов прошлого столетия сотрудники Радиевого института под руководством профессора А. С. Кривохатского проводили мониторинг радионуклидов благородных газов как в СССР, так и в нейтральных водах Атлантического океана [3, 4]. В те годы объёмная активность  $^{85}\text{Kr}$  в среднем составляла около 0,9 Бк/м<sup>3</sup>.

Таблица 1. Средняя концентрация  $^{85}\text{Kr}$  в приземной атмосфере городов Череповец, Новомосковск и Мариуполь, Бк/м<sup>3</sup> [1–2]

Годы	Череповец	Новомосковск	Мариуполь
1989	0,96±0,037	0,87±0,018	–
1990	0,93±0,018	0,98±0,018	–
1991	0,95±0,063	–	1,01±0,041
1992	0,92±0,045	–	–

### Экспериментальная часть

В рамках проекта МНТЦ № 2133 «Разработка методических основ и мобильной аппаратуры для мониторинга радионуклидов Хе и Кг в Северо-Западном регионе России» в 2006 г. в Радиевом институте им. В. Г. Хлопина был возобновлен мониторинг  $^{85}\text{Kr}$  как вдали от объектов ядерной энергетики, так и в районе Ленинградской АЭС [5].

Для этого на одном из заводов по производству кислорода в г. Череповец Вологодской области отбирали пробы криптон-ксеноновой фракции. Контрольный пункт в Череповце был выбран на основе имеющегося в Радиевом институте экспериментального опыта использования криптон-ксеноновой смеси для определения искусственной радиоактивности воздуха. Соотношение Кг/Хе в смеси варьирует в небольших пределах, а доля ксенона составляет около 8–10 %.

Разделение криптона и ксенона проводили методом низкотемпературной сорбции на активированном угле СКТ-3 с последующим их концентрированием в виде спектрометрических препаратов.

В качестве измерительных средств  $^{85}\text{Kr}$  использовали  $\gamma$ -спектрометры с Ge детектором.

Ввиду того, что выход  $\gamma$ -квантов при  $\beta$ -распаде  $^{85}\text{Kr}$  составляет лишь 0,435 % [6], его измерение методом  $\gamma$ -спектрометрии представляет серьезные трудности. Поэтому для измерения  $^{85}\text{Kr}$  использовали пробу криптона, полученную от переработки пробы атмосферного воздуха большого объема. Фракцию криптона, полученную от переработки пробы воздуха объемом 600–1200 м<sup>3</sup>, сорбировали на активированный уголь в герметичном тонкостенном алюминиевом измерительном контейнере. В такой контейнер вмещается до 1400 см<sup>3</sup> чистого криптона. Контейнер с пробой криптона помещали на Ge детектор, длительность измерения составляла не менее 2 ч, каждую пробу измеряли от 3 до 5 раз. Гамма-спектрометр был откалиброван с помощью приготовленного стандартного образца в таком же контейнере.

Была разработана также методика измерения  $^{85}\text{Kr}$  в HPGe детекторе с колодцем, объем стабильного Кг, вводимого в ампулу и сорбированного на активированном угле, достигал 40 см<sup>3</sup>. Сравнение результатов измерения на этих спектрометрах показало, что расхождение между ними составляет не более 10 %. Ввиду того, что время измерения на описанном выше детекторе меньше, то в большинстве случаев проводили измерения на таком детекторе. В отдельных случаях проводили сличение измерений на коаксиальном детекторе и детекторе с колодцем.

Для определения радионуклидов  $\text{Kr}$  и  $\text{Xe}$  в атмосферном воздухе Санкт-Петербурга была также разработана методика выделения ксенона и криптона из жидкого кислорода. Эта методика основывается на переработке проб технического кислорода объёмом  $\sim 5$  л, что эквивалентно переработке  $20\text{--}23$  м<sup>3</sup> атмосферного воздуха. В техническом кислороде содержатся повышенные концентрации  $\text{Kr}$  и  $\text{Xe}$  (в сумме около  $5 \cdot 10^{-4}$  %) по сравнению с атмосферным воздухом, так как при получении жидкий кислород обогащается этими газами. В результате получали спектрометрические препараты, эквивалентные переработке пробы воздуха до  $100$  м<sup>3</sup>. Пробы кислорода отбирали на заводе, расположенном на северной окраине Санкт-Петербурга вблизи площадки Радиевого института. Пробу кислорода доводили путём естественного испарения в газификаторе до объёма  $1$  л и затем перерабатывали на пробоподготовительной установке, состоящей из газификатора и сорбера с цеолитом  $\text{NaX}$ . В процессе газификации кислорода криптон и ксенон сорбировались в цеолитовом сорбере. В процессе дальнейшей пробоподготовки, когда газовая фаза десорбировалась с сорбера в спектрометрическую ампулу с активированным углем, была применена ловушка радона, содержащая активированный уголь. Коэффициент очистки от  $\text{Rn}$  достигал примерно  $5 \cdot 10^5$ . Полученные результаты представлены ниже.

### Результаты и их обсуждение

#### Мониторинг $^{85}\text{Kr}$ в Череповце

При возобновлении мониторинга  $^{85}\text{Kr}$  была надежда, что после прекращения ядерных испытаний и производства оружейного плутония как в СССР, так и в США концентрация  $^{85}\text{Kr}$  в приземной атмосфере стабилизируется или даже пойдет на убыль.

Первые результаты измерений, полученные в октябре–ноябре 2006 г., показали, что объёмная активность  $^{85}\text{Kr}$  на станции наблюдения в Череповце составляет  $\sim 1,5$  Бк/м<sup>3</sup>, то есть существенно возросла по сравнению с началом 90-х годов. Имеющиеся литературные данные показывают, что в период с 1993 по 2004 гг. происходило заметное повышение концентрации  $^{85}\text{Kr}$  как в атмосфере западной Европы, так и в Японии до  $1,5\text{--}1,6$  Бк/м<sup>3</sup>, что связывают с переработкой облучённого топлива в некоторых странах и сбросом  $^{85}\text{Kr}$  в атмосферу [7–9].

Объёмную активность  $^{85}\text{Kr}$  в воздухе рассчитывали с учётом того, что объёмная концентрация стабильного криптона в атмосферном воздухе составляет  $1,14 \cdot 10^{-4}$  %. В табл. 2 представлены результаты мониторинга в Череповце в 2006–2008 гг.

Таблица 2. Объёмная активность  $^{85}\text{Kr}$  в атмосферном воздухе г. Череповец, Бк/м<sup>3</sup>

Дата отбора	Объём измеряемого криптона, см <sup>3</sup>	Объём воздуха, из которого выделен $\text{Kr}$ , м <sup>3</sup>	Активность $^{85}\text{Kr}$ в измеряемом образце, Бк	Объёмная активность $^{85}\text{Kr}$ на дату измерения, Бк/м <sup>3</sup>
1	2	3	4	5
27.09.06	925	811	1208±90	1,49±0,20
23.10.06	1440	1263	1667±245	1,32±0,20
31.10.06	948	832	1181±92	1,42±0,15
06.11.06	764	670	958±100	1,43±0,15
24.11.06	425	373	537±82	1,44±0,22
27.11.06	832	730	956±150	1,31±0,20

Продолжение табл. 2

1	2	3	4	5
30.11.06	862	756	1164±68	1,54±0,16
05.12.06	868	761	1180±69	1,55±0,16
28.12.06	35,7	31,3	46,8±0,3	1,49±0,01*
12.01.07	531	466	754±36	1,62±0,17
01.02.07	868	761	1235±31	1,62±0,17
02.02.07	830	728	1140±50	1,56±0,16
09.02.07	851	747	1366±58	1,59±0,16
20.02.07	858	752	1087±60	1,45±0,15
22.02.07	972	853	1253±70	1,47±0,15
18.03.07	900	789	1157±80	1,47±0,15
25.03.07.	991	870	1357±85	1,56±0,16
27.03.07	961	843	1331±70	1,58±0,16
14.04.07	977	857	1159±116	1,35±0,14
17.04.07	1145	1005	1495±150	1,49±0,15
11.05.07	1379	1209	1630±80	1,35±0,17
14.05.07	967	848	1510±80	1,55±0,16
26.05.07	725	636	992±100	1,56±0,16
27.05.07	509	447	800±90	1,79±0,27
05.06.07	698	612	1045±90	1,71±0,17
15.06.07	1081	948	1523±80	1,40±0,14
08.07.07	681	597	957±60	1,60±0,16
23.08.07	847	743	1153±70	1,55±0,16
18.09.07	954	837	1220±90	1,46±0,15
23.09.07	970	850	1290±80	1,75±0,18
17.10.07	875	768	1175±110	1,53±0,15
20.10.07	860	754	1148±80	1,52±0,15
16.11.07	845	741	1300±90	1,52±0,15
06.12.07	731	641	1140±90**	1,64±0,16*
17.12.07	1024	898	1400±60**	1,63±0,16*
19.12.07	599	525	957±40**	1,76±0,18*
16.01.08	941	825	1220±90**	1,76±0,20*
18.01.08	694	608	905±50**	1,56±0,15*
08.02.08	616	540	880±45**	1,75±0,17*
10.02.08	596	523	930±50**	1,72±0,18*
08.05.08	1114	977	1446±70	1,49±0,15
20.05.08	1136	997	1480±70	1,47±0,15
17.07.08	627	550	948±50	1,73±0,17
20.07.08	707	620	992±50	1,60±0,16
25.07.08	644	565	870±40	1,54±0,15
28.07.08	753	660	1200±60	1,58±0,16
Среднее ± СКО (1 σ, n = 45 проб)				1,55±0,12

Примечания:

\* Результат является средним значением измерений на коаксиальном детекторе и детекторе с колодцем.

\*\* Дана активность  $^{85}\text{Kг}$  в большом препарате, измеренном на коаксиальном детекторе.

Объёмная активность  $^{85}\text{Kr}$  в указанный период менялась от 1,31 до 1,79  $\text{Бк}/\text{м}^3$ , среднее значение равнялось  $1,55 \pm 0,12 \text{ Бк}/\text{м}^3$ , мера изменчивости (СКО/среднее значение) составляет 8 %, значение медианы совпадает с величиной среднего значения и равняется  $1,55 \text{ Бк}/\text{м}^3$ . В течение месяца проводили от двух до четырёх измерений, в среднем анализировали по две пробы в месяц и выполнили 45 анализов. График изменения концентрации  $^{85}\text{Kr}$  в атмосферном воздухе Череповца показан на рис. 1.

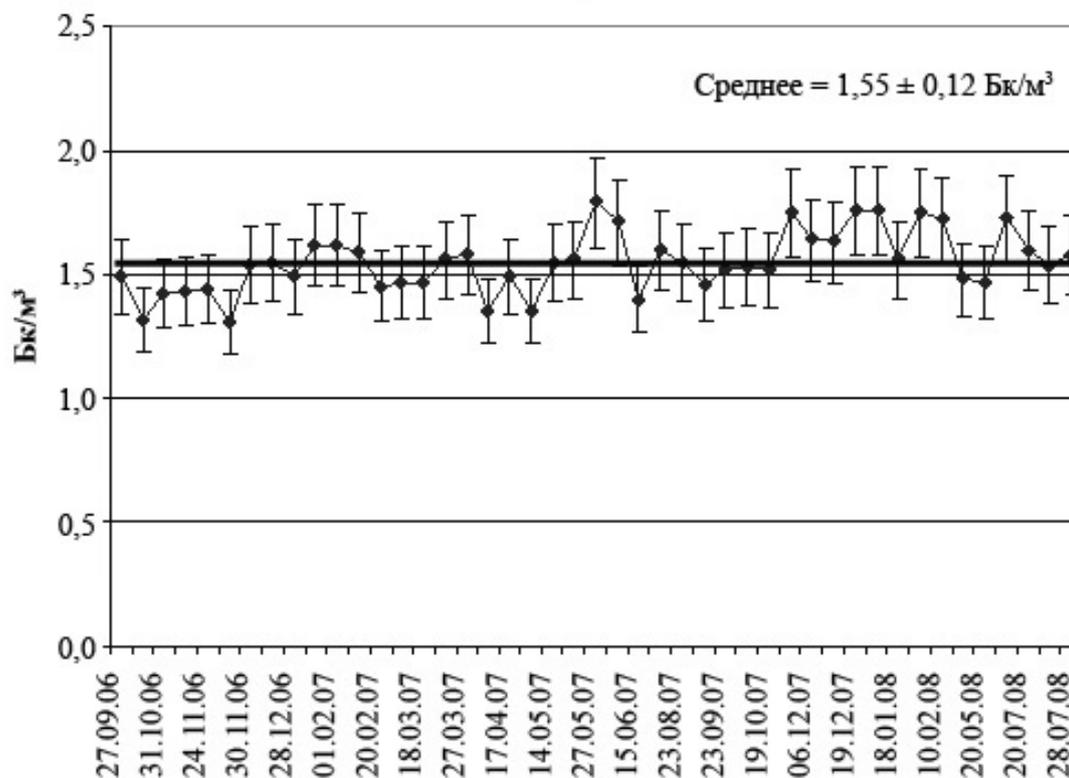


Рис. 1. Концентрация  $^{85}\text{Kr}$  в атмосферном воздухе г. Череповец в период сентябрь 2006–июль 2008 гг., чёрной линией обозначено среднее значение.

В рамках выполнения проекта МНТЦ-2133 проводилась взаимная калибровка аппаратуры и методик по измерению радионуклидов  $\text{Xe}$  и  $^{85}\text{Kr}$  с участием коллег-раторов д-ра К. Шлоссера (Институт атмосферной физики, Фрайбург, Германия) и д-ра А. Рингбома (Агентство оборонных исследований, Стокгольм, Швеция). Полученные результаты совпадали в пределах 2 %.

#### Мониторинг $^{85}\text{Kr}$ в Санкт-Петербурге

В 80 км на запад от Санкт-Петербурга находится Ленинградская АЭС. Отбор проб жидкого кислорода проводили два раза в неделю, и всего было проанализировано 115 проб. Фракции  $\text{Kr}$  извлекали, как описано выше, из проб жидкого технического кислорода с последующим измерением в спектрометре с HPGe-детектором с коллоидом. Результаты анализа представлены в табл. 3 и на рис. 2.

Таблица 3. Объемная активность  $^{85}\text{Kг}$  в атмосферном воздухе Санкт-Петербурга

Дата отбора	Объем измеряемого криптона, см <sup>3</sup>	Объем воздуха, из которого выделен Кг, м <sup>3</sup>	Активность $^{85}\text{Kг}$ в измеряемом образце, Бк	Объемная активность $^{85}\text{Kг}$ на дату отбора пробы, Бк/м <sup>3</sup>
1	2	3	4	5
13.03.07	9,4	8,2	9,9±1,7	1,21±0,36
15.03.07	14,6	12,8	15,2±1,1	1,19±0,36
19.03.07	11,5	10,1	14,0±1,9	1,39±0,42
22.03.07	14,0	12,3	17,1±1,3	1,39±0,42
02.04.07	15,0	13,2	22,7 ±1,8	1,72±0,52
05.04.07	20,7	18,2	23,3±1,2	1,28±0,38
09.04.07	11,0	9,7	16,0±1,7	1,65±0,50
12.04.07	14,0	12,3	26,4±2,1	2,15±0,63
16.04.07	15,2	13,3	30,6±1,2	2,3±0,69
18.04.07	27,0	23,7	33,7±2,1	1,42±0,53
23.04.07	14,2	12,5	21,3±2,0	1,70±0,51
25.04.07	17,0	14,9	28,3±2,3	1,90±0,57
14.05.07	17,5	15,4	20,0±2,0	1,30±0,39
16.05.07	15,0	13,2	26,4±0,3	2,00±0,60
21.05.07	13,2	11,6	18,2±2,4	1,57±0,47
23.05.07	12,8	11,2	18,4±2,3	1,64±0,49
28.05.07	11,0	9,6	17,0±1,9	1,77±0,55
07.06.07	12,9	11,3	17,2±2,2	1,52±0,46
13.06.07	16,5	14,5	20,3±2,0	1,40±0,42
18.06.07	5,3	4,7	14,9±3,3	3,18±0,95
20.06.07	7,3	6,4	16,1±2,0	2,52±0,76
27.06.07	12,1	10,6	50,9±3,4	4,80±1,44
04.07.07	14,0	12,3	27,2±4,6	2,2±0,66
05.07.07	4,4	3,9	10,4±1,6	2,67±0,80
12.07.07	4,1	3,6	13,9±1,2	3,86±1,15
17.07.07	6,0	5,3	12,6±2,5	2,37±0,71
19.07.07	4,8	4,2	11,5±2,8	2,74±0,82
23.07.07	4,8	4,2	10,6±1,7	2,52±0,76
25.07.07	5,6	4,9	17,1±2,1	3,48±1,04
30.07.07	7,2	6,3	18,6±2,3	2,96±0,89
01.08.07	5,9	5,2	15,8±1,6	3,04±0,91
06.08.07	4,9	4,3	12,7±2,1	3,0±0,89
08.08.07	3,5	3,1	9,9±2,5	3,19±0,96
13.08.07	5,1	4,5	9,3±2,3	2,07±0,62
28.08.07	3,7	3,2	7,1±2,0	2,22±0,67
30.08.07	2,7	2,4	10,0±2,0	4,15±1,24
03.09.07	4,4	3,9	10,1±1,9	2,59±0,78
05.09.07	3,5	3,1	4,7±2,3	1,50±0,91
10.09.07	11,3	9,9	22,1±1,8	2,23±0,67
12.09.07	8,5	7,5	16,2±1,9	2,16±0,65
19.09.07	4,5	3,9	4,2±2,2	1,08±0,54
24.09.07	7,5	6,6	8,2±2,7	1,24±0,50
26.09.07	4,9	4,3	9,0±2,9	2,10±0,84
08.10.07	11,5	10,1	26,1±4,3	2,58±0,78

Продолжение табл. 3

1	2	3	4	5
10.10.07	8,4	7,4	19,5±3,1	2,63±0,79
15.10.07	11,0	9,7	25,9±4,1	2,67±0,80
22.10.07	11,3	9,9	23,5±1,9	2,37±0,71
24.10.07	11,4	10,0	20,6±2,0	2,06±0,63
29.10.07	8,6	7,5	16,5±1,8	2,20±0,66
31.10.07	12,4	10,9	29,6±3,5	2,72±0,81
12.11.07	11,3	9,9	26,1±2,2	2,64±0,79
14.11.07	13,5	11,8	25,5±2,0	2,16±0,65
19.11.07	12,0	10,5	29,1±4,5	2,77±0,83
21.11.07	9,4	8,3	17,4±2,1	2,10±0,63
29.11.07	12,4	10,9	37,5±2,2	3,44±1,03
03.12.07	12,0	10,5	23,1 ±1,9	2,20±0,66
05.12.07	19,4	17,0	34,8 ±3,9	2,05±0,61
11.12.07	12,6	11,1	23,5 ±1,9	2,12±0,64
13.12.07	18,4	16,1	32,5 ±2,1	2,02±0,61
17.12.07	17,6	15,4	37,5 ±4,2	2,44±0,73
19.12.07	8,8	7,7	17,7±2,2	2,30±0,69
24.12.07	11,1	9,7	27,3±2,1	2,81±0,84
26.12.07	13,4	11,8	29,2±2,0	2,47±0,74
10.01.08	11,4	10,0	28,0±1,4	2,80±0,84
14.01.08	15,5	13,6	34,4±3,1	2,53±0,76
16.01.08	11,7	10,3	34,4±2,2	3,34±1,00
23.01.08	17,9	15,7	28,1±2,7	1,79±0,54
28.01.08	8,6	7,6	14,1±2,2	1,85±0,56
30.01.08	12,6	11,1	24,5±1,8	2,21±0,66
04.02.08	15,2	13,3	28,8±1,8	2,17±0,65
06.02.08	14,7	12,9	29,5±2,3	2,29±0,69
11.02.08	11,5	10,1	29,2±2,1	2,89±0,87
13.02.08	18,9	16,6	43,4±3,1	2,61±0,78
20.02.08	19,5	17,1	28,6±2,3	1,67±0,50
21.02.08	11,5	10,1	23,5±2,2	2,33±0,70
26.02.08	25,7	22,6	41,3±2,4	1,83±0,55
03.03.08	19,6	17,2	33,4±2,3	1,94±0,58
05.03.08	30,0	26,3	44,2±2,2	1,67±0,50
13.03.08	9,0	7,9	12,1±2,9	1,53±0,46
17.03.08	25,2	22,1	45,4±3,0	2,06±0,62
19.03.08	16,0	14,0	32,0±2,3	2,29±0,69
24.03.08	17,3	15,2	31,8±2,5	2,09±0,63
26.03.08	15,0	13,2	39,5±2,8	2,99±0,90
31.03.08	9,0	7,9	15,5±2,3	1,96±0,59
02.04.08	12,8	11,2	27,0±2,3	2,41±0,72
08.04.08	15,9	13,9	31,4±2,3	2,26±0,68
10.04.08	17,7	15,5	35,6±2,3	2,30±0,69
14.04.08	23,8	20,9	50,4±2,3	2,41±0,72
16.04.08	19,1	16,8	35,0±2,6	2,08±0,62
21.04.08	17,7	15,5	40,7±2,1	2,63±0,79
23.04.08	19,5	17,1	28,4±2,4	1,66±0,50
28.04.08	22,0	19,3	34,4±2,2	1,78±0,53

Продолжение табл. 3

1	2	3	4	5
12.05.08	30,3	26,6	45,8±2,4	1,72±0,52
14.05.08	26,3	23,1	21,3±1,1	0,92±0,28
19.05.08	18,0	15,8	27,3±2,3	1,73±0,52
21.05.08	31,5	27,6	41,1±2,2	1,49±0,45
26.05.08	28,8	25,3	38,5±2,5	1,52±0,46
28.05.08	19,1	16,8	28,6±2,4	1,70±0,51
02.06.08	23,6	20,7	30,8±3,7	1,49±0,45
04.06.08	27,0	23,7	38,9±4,0	1,64±0,49
09.06.08	20,4	17,9	25,9±3,3	1,45±0,44
11.06.08	16,0	14,0	32,2±3,3	2,30±0,69
16.06.08	21,2	18,6	27,8±2,1	1,49±0,45
23.06.08	22,3	19,6	26,5±2,4	1,35±0,41
25.06.08	13,2	11,6	17,4±1,8	1,50±0,45
30.06.08	28,9	25,4	27,3±2,3	1,07±0,32
02.07.08	19,2	16,8	28,7±2,6	1,71±0,51
07.07.08	18,6	16,3	25,3±1,6	1,55±0,47
09.07.08	16,8	14,7	22,7±2,0	1,54±0,46
14.07.08	9,7	8,5	14,6±1,9	1,72±0,52
16.07.08	15,9	13,9	24,6±2,4	1,77±0,53
21.07.08	17,4	15,3	24,7±2,3	1,61±0,48
23.07.08	23,9	21,0	30,6±1,9	1,46±0,44
28.07.08	4,4	3,9	6,0±2,7	1,54±0,46
30.07.08	14,8	13,0	2,0±2,1	1,54±0,46
Среднее ± СКО (1 σ, n = 116 проб)				2,11±0,66

Из представленных данных видно, что концентрация  $^{85}\text{Kr}$  в атмосферном воздухе менялась в широких пределах, а именно от 0,92 до 4,80 Бк/м<sup>3</sup>, среднее значение равняется 2,11 Бк/м<sup>3</sup>, а мера изменчивости – 31 %, медиана близка к величине среднего и составляет 2,09 Бк/м<sup>3</sup>. Здесь мы видим, что средняя концентрация  $^{85}\text{Kr}$  в атмосферном воздухе Санкт-Петербурга на 37 % выше, чем в Череповце. Для Санкт-Петербурга характерно то, что в ряде случаев были получены низкие значения концентрации  $^{85}\text{Kr}$ , такие как 0,92, 1,08, 1,07 Бк/м<sup>3</sup>, а также достаточно высокие значения, чего не наблюдалось в Череповце. Надо сказать, что это обстоятельство весьма интересное, и по всей вероятности, связанное с переносом воздушных масс. Если пробу воздуха, взятую в Череповце, отбирали в течение времени от 24 до 72 ч, то в Санкт-Петербурге пробу отбирали в течение 1–2 ч, то есть в Череповце отбирали интегральную пробу, а в Санкт-Петербурге – дискретную, поэтому разрешающая способность последнего метода существенно выше, что для ряда задач является большим преимуществом. Колебание концентрации  $^{85}\text{Kr}$  в атмосфере Санкт-Петербурга, как видно из графика на рис. 2, превышает погрешность отдельного измерения, поэтому будет очень важным найти источник выброса  $^{85}\text{Kr}$ , что можно сделать, привлекая данные о переносе атмосферных масс. Следует отметить, что корреляцию между концентрациями  $^{85}\text{Kr}$  и  $^{133}\text{Xe}$  найти не удалось, что указывает на стравливание (выпуск) долгоживущих и короткоживущих радионуклидов, разнесенное по времени. Насколько нам известно, на атомных электростанциях система очистки газов состоит из нескольких линий, например двух или трёх. На одной линии идет сорбция благородных газов, а на других происходит их выдержка с целью распада короткожи-

вущих радионуклидов. Затем проводится регенерация сорбентов,  $^{85}\text{Kr}$  ( $T_{1/2} = 10,2$  г.) десорбируется из системы и, вероятнее всего, поступает в атмосферу. Кратковременность отбора пробы в Санкт-Петербурге позволила зафиксировать пробы воздуха, обогащённые  $^{85}\text{Kr}$  по сравнению со средними значениями. В качестве примерного состава сбрасываемых газов атомными электростанциями в табл. 4 показан состав сбрасываемых газов Смоленской АЭС в 1995 и 1996 гг. [10]. Как видно, доля активности, приходящаяся на  $^{85}\text{Kr}$ , составляет около 10 %. Наибольшая доля приходится на  $^{133}\text{Xe}$  и  $^{41}\text{Ar}$ .

Таблица 4. Состав радиоактивных газов, сбрасывавшихся Смоленской АЭС в 1995 и 1996 гг.

Радионуклид	$T_{1/2}$	1995 г., доля активности, %	1996 г., доля активности, %
$^{133}\text{Xe}$	5,23 сут	36,5	43,3
$^{135}\text{Xe}$	9,14 ч	1,34	5,6
$^{133\text{m}}\text{Xe}$	2,19 сут	1,29	1,15
$^{138}\text{Xe}$	14,1 мин	2,93	1,31
$^{85}\text{Kr}$	10,2 г.	9,90	11,7
$^{88}\text{Kr}$	2,83 ч	7,9	7,9
$^{87}\text{Kr}$	76,3 мин	1,6	0,70
$^{41}\text{Ar}$	1,82 ч	38,5	27,7

По данным мониторинга  $^{85}\text{Kr}$ , в Германии [9], Ирландии [8] и Японии [7] также фиксировались повышенные до значительных величин (5–8 Бк/м<sup>3</sup>) концентрации, обусловленные выбросами с перерабатывающих облучённое ядерное топливо предприятий.

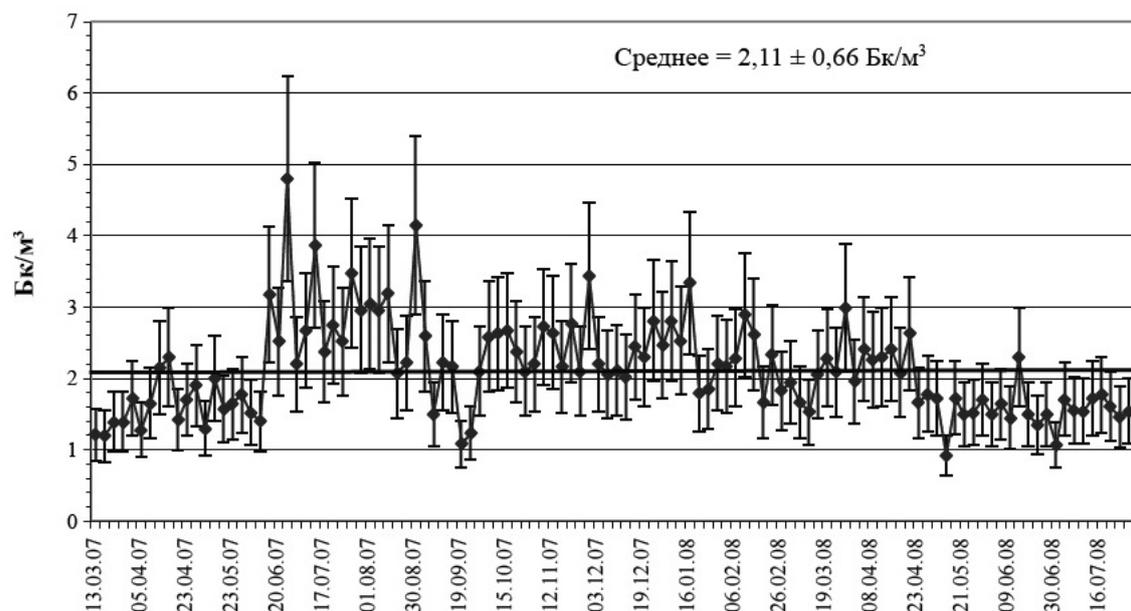


Рис. 2. Концентрация  $^{85}\text{Kr}$  в атмосферном воздухе Санкт-Петербурга в период 2007–2008 гг., чёрной линией указано среднее значение.

*Мониторинг радионуклидов Хе в г. Череповец*

Повышение концентраций короткоживущих радионуклидов ксенона ( $^{131m}\text{Xe}$ ,  $^{133m}\text{Xe}$ ,  $^{133}\text{Xe}$ ,  $^{135}\text{Xe}$ ) в атмосферном воздухе может свидетельствовать о нарушении штатного режима эксплуатации системы спецгазоочистки АЭС, либо о сбросах радионуклидов ксенона медицинскими учреждениями, а также от ядерных взрывов. Основными радионуклидами ксенона, образующимися в результате реакции ядерного деления, являются  $^{133}\text{Xe}$  ( $T_{1/2} = 5,245$  сут),  $^{135}\text{Xe}$  ( $T_{1/2} = 9,1$  ч),  $^{133m}\text{Xe}$  ( $T_{1/2} = 2,19$  сут) и  $^{131m}\text{Xe}$  ( $T_{1/2} = 11,9$  сут). Наиболее часто встречающимся из этого семейства изотопов является  $^{133}\text{Xe}$ , так как он имеет наиболее высокий выход при делении и сравнительно большой период полураспада, что позволяет фиксировать этот радионуклид на значительных расстояниях от места его инъекции.

Для мониторинга радионуклидов ксенона была специально разработана методика с высокой чувствительностью. Выделенную из криптон-ксеноновой смеси фракцию ксенона сорбировали на угле СКТ-3 в ампуле небольшого размера, которую измеряли в колодце Ge-детектора. Спектрометр был откалиброван с помощью стандартного образца такой же геометрии и плотности, с радионуклидами, перекрывающими диапазон энергий  $\gamma$ -квантов, испускаемых радионуклидами ксенона. Для учёта самопоглощения Хе в измерительной ампуле экспериментально была найдена поправка, достигавшая 30 % при объёме ксенона в ампуле около 110 см<sup>3</sup>. Объём ксенона в ампуле, так же как и криптона, определяли весовым методом на аналитических весах. Минимально детектируемая спектрометром активность  $^{133}\text{Xe}$  составляла 9 мБк при измерении в течение 24 ч.

Разработанная методика позволяет сконцентрировать в измерительной ампуле фракцию ксенона, полученную от переработки пробы воздуха объёмом до 1800 м<sup>3</sup>. Таким образом, данная методика на настоящий момент имеет рекордную чувствительность, и минимально детектируемая концентрация (МДК)  $^{133}\text{Xe}$  достигла сверхнизкой величины – 0,008 мБк/м<sup>3</sup> при доверительной вероятности 95 %.

Город Череповец (59° 07' 59" с.ш и 37° 55' 26" в.д.) Вологодской области отстоит от ближайшей Калининской АЭС на 220 км на северо-восток, а от Ленинградской АЭС – на 550 км на восток. Измерение полученных проб ксенона выполняли через два и более дней после отбора проб. Значительный интервал времени между пробоотбором и измерением, по всей вероятности, был одной из причин отсутствия в спектрах фракций ксенона пика  $^{135}\text{Xe}$  ( $T_{1/2} = 9,14$  ч). Результаты мониторинга радионуклидов ксенона в атмосферном воздухе Череповца представлены в табл. 5 и на рис. 3.

Полученные за два года мониторинга результаты показывают, что минимальная концентрация  $^{133}\text{Xe}$  в атмосферном воздухе г. Череповец составляла 0,09 мБк/м<sup>3</sup> и фиксировалась всего лишь один раз, то есть эту величину можно считать фоновой (исходной) для данной местности. Средняя концентрация  $^{133}\text{Xe}$  составила 0,79±0,46 мБк/м<sup>3</sup>. Медиана = 0,69 мБк/м<sup>3</sup> и близка к средней величине. Десятикратное превышение фона отмечалось в 21 пробе из 62 (30 %). Максимальное значение ~2,5 мБк/ м<sup>3</sup> было зафиксировано 27 сентября 2006 г., двукратное превышение среднего значения отмечалось четыре раза.

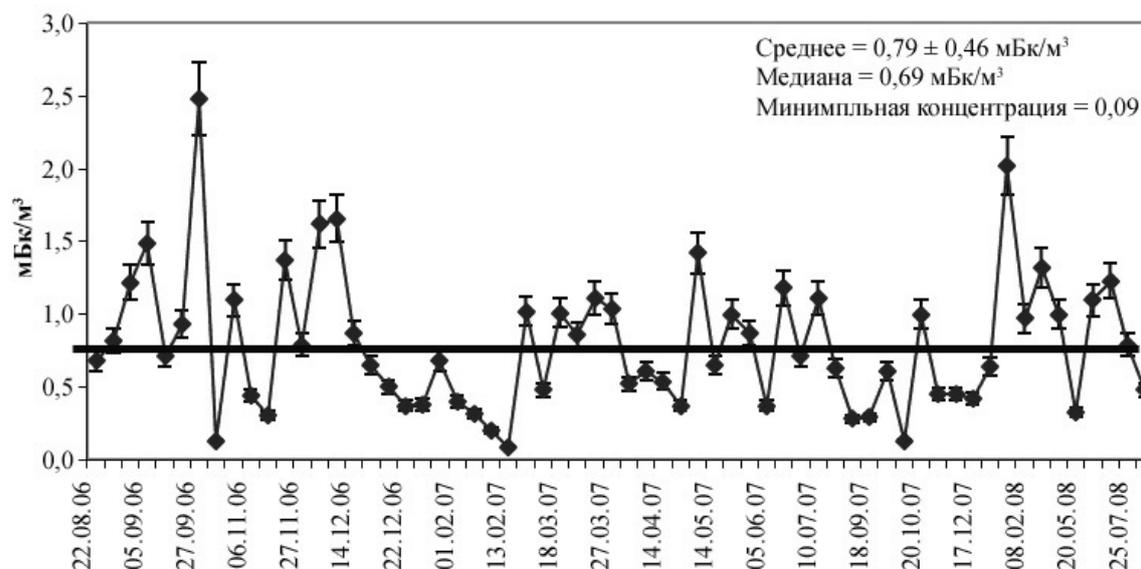


Рис. 3. Концентрация  $^{133}\text{Xe}$  в атмосферном воздухе г. Череповец в период 2006–2008 гг., чёрной линией обозначена средняя концентрация  $^{133}\text{Xe}$ .

Таблица 5. Объёмная активность  $^{133}\text{Xe}$  в атмосферном воздухе г. Череповец в 2006–2008 гг.

Дата отбора* (продолжительность пробоотбора ~ 72 ч)	Объём Xe в спектрометрической ампуле, см <sup>3</sup>	Активность $^{133}\text{Xe}$ в спектрометрической ампуле на дату отбора пробы, мБк	Объём пробы воздуха, из которого выделен Xe, м <sup>3</sup>	Объёмная активность $^{133}\text{Xe}$ в атмосферном воздухе на дату отбора пробы, мБк/м <sup>3</sup>
1	2	3	4	5
01.08.06	16,0	$\leq 24,1$	184	$\leq 0,14$
02.08.06	2,0	$\leq 28,0$	23	$\leq 1,36$
14.08.06	10,0	$\leq 14,1$	115	$\leq 0,13$
22.08.06	30,0	$153 \pm 6,4$	345	$0,68 \pm 0,08$
29.08.06	30,0	$184,0 \pm 12,6$	345	$0,82 \pm 0,10$
02.09.06	85,0	$771 \pm 24,0$	977	$1,22 \pm 0,14$
05.09.06	85,0	$613 \pm 14,1$	977	$1,49 \pm 0,13$
12.09.06	85,0	$368 \pm 12,5$	977	$0,71 \pm 0,08$
19.09.06	81,0	$467 \pm 14,0$	931	$0,93 \pm 0,10$
27.09.06	82,6	$1270 \pm 58,0$	949	$2,47 \pm 0,26$
23.10.06	132,8	$96,2 \pm 12,7$	1526	$0,13 \pm 0,02$
31.10.06	132,8	$797 \pm 70,0$	1526	$1,10 \pm 0,11$
06.11.06	128,7	$310 \pm 20$	1479	$0,44 \pm 0,04$
08.11.06	125,4	$260 \pm 20$	1441	$0,31 \pm 0,04$
24.11.06	96,6	$790 \pm 13$	1110	$1,37 \pm 0,14$
27.11.06	135,6	$574 \pm 32$	1559	$0,79 \pm 0,09$
30.11.06	103	$991 \pm 24$	1186	$1,62 \pm 0,16$
05.12.06	129	$1170 \pm 41$	1483	$1,66 \pm 0,17$
14.12.06	126	$780 \pm 67$	1448	$0,87 \pm 0,09$
15.12.06	141	$640 \pm 20$	1625	$0,65 \pm 0,07$

Продолжение табл. 5

1	2	3	4	5
21.12.06	106	409±19	1220	0,50±0,06
22.12.06	131,7	368±13	1514	0,37±0,06
28.12.06	140	387±59	1609	0,38±0,05
12.01.07	122	630±29	1402	0,68±0,07
01.02.07	144,5	419±21	1661	0,40±0,08
02.02.07	143,2	325±21	1646	0,32±0,03
09.02.07	158	220±15	1816	0,20±0,03
13.02.07	121,2	87±13	1393	0,09±0,03
20.02.07	154,1	1410±51	1771	1,02±0,03
22.02.07	136,7	609±21	1571	0,48±0,05
18.03.07	135,8	1300±30	1561	1,01±0,10
19.03.07	151,3	1177±13	1739	0,86±0,09
25.03.07	117,7	1281±31	1353	1,11±0,11
27.03.07	150,7	1413±27	1732	1,04±0,10
04.04.07	122,4	623±55	1407	0,52±0,06
06.04.07	120,5	716±30	1385	0,61±0,07
14.04.07	142,0	714±32	1632	0,54±0,07
17.04.07	121,3	438±16	1394	0,37±0,04
11.05.07	144,9	1880±160	1665	1,42±0,12
14.05.07	121,5	763±31	1397	0,65±0,07
26.05.07	132	1240±130	1517	0,99±0,11
27.05.07	124	1040±110	1425	0,87±0,10
05.06.07	132,9	480±167	1528	0,37±0,13
15.06.07	117,9	342±64	1355	1,18±0,04
08.07.07	120	820±23	1379	0,71±0,08
10.07.07	110,4	1224±35	1269	1,11±0,12
23.08.07	108,5	681±62	1247	0,63±0,07
05.09.07	107,3	333±17	1233	0,27±0,04
18.09.07	113,8	385±39	1308	0,29±0,03
23.09.07	67,4	476±24	775	0,62±0,07
17.10.07	59,9	90±27	688	0,13±0,04
20.10.07	103,4	1243±62	1188	1,05±0,11
16.11.07	79	414±304	913	0,45±0,33
06.12.07	40,6	210±26	467	0,45±0,06
17.12.07	104,8	508±40	1205	0,42±0,05
19.12.07	67,4	495±41	775	0,64±0,05
16.01.08	137,4	3158±158	1580	2,00±0,20
18.01.08	160,2	1066±28	1841	0,58±0,06
08.02.08	76,5	854±35	879	0,97±0,04
10.02.08	106,3	1610±34	1222	1,32±0,03
08.05.08	73	842±108	839	1,00±0,13
20.05.08	98,8	373±60	1136	0,33±0,04
17.07.08	65,7	829±35	755	1,10±0,11
20.07.08	120,8	1710±80	1389	1,23±0,12
25.07.08	132,3	1200±50	1520	0,79±0,08
28.07.08	146	804±30	1677	0,48±0,05
Среднее ± СКО (1 σ, n = 62 пробы)				0,79±0,46

\*Дата приведена на середину пробоотбора.

*Мониторинг радионуклидов ксенона в Санкт-Петербурге*

Для проведения мониторинга использовали пробы технического жидкого кислорода, из которых выделяли фракцию смеси ксенона и криптона, как описано выше. Измерения проб ксенона и криптона проводили на спектрометре с HPGe-детектором с колодцем. Пробы отбирали два раза в неделю. Полученные результаты приведены в табл. 6 и на рис. 4.

Таблица 6. Результаты мониторинга радионуклидов  $\text{Xe}$  в Санкт-Петербурге с января 2007 г. по июль 2008 г.

Дата отбора (12:00 ч по московскому времени)	Объём $\text{Xe}$ в спектромет- рической ампуле, $\text{см}^3$	Активность $^{133}\text{Xe}$ в спек- трометриче- ской ампуле на дату отбо- ра пробы, мБк	Объём про- бы воздуха, из которого выделен $\text{Xe}$ , $\text{м}^3$	Объёмная активность в воз- духе на дату отбора пробы, мБк/ $\text{м}^3$	
				$^{133}\text{Xe}$	$^{135}\text{Xe}$
1	2	3	4	5	6
17.01.07	0,6	$\leq 16$	6,9	$\leq 2,0$	
23.01.07	0,3	$28,1 \pm 6$	3,4	$8,3 \pm 2$	
30.01.07	0,3	$\leq 19$	3,4	$\leq 6$	
06.02.07	0,1	$\leq 9$	1,1	$\leq 8$	
13.02.07	0,1	$\leq 9$	1,1	$\leq 8$	
20.02.07	0,9	$14 \pm 6$	10,3	$1,4 \pm 0,6$	
06.03.07	3,75	$7934 \pm 194$	43,1	$185 \pm 20$	$66 \pm 7$
13.03.07	2,1	$154 \pm 10$	24,6	$6,3 \pm 0,7$	
15.03.07	3,4	$29 \pm 6$	39,4	$0,74 \pm 0,15$	
19.03.07	3,3	$81 \pm 9$	38,3	$2,1 \pm 0,3$	
22.03.07	3,25	$116 \pm 17$	37,4	$3,1 \pm 0,5$	
26.03.07	2,65	$41,4 \pm 9$	30,5	$1,4 \pm 0,3$	
29.03.07	4,1	$1830 \pm 102$	47,1	$39 \pm 3,9$	
02.04.07	3,1	$1345 \pm 24$	35,6	$38 \pm 3,8$	
05.04.07	3,45	$\leq 9$	39,7	$\leq 0,2$	
09.04.07	2,2	$1970 \pm 59$	25,3	$78 \pm 8,0$	
12.04.07	2,7	$\leq 14$	31,0	$\leq 0,45$	
16.04.07	3,5	$1450 \pm 47$	39,8	$36,4 \pm 3,7$	$3,4 \pm 1,6$
18.04.07	6,0	$10500 \pm 250$	69,0	$152 \pm 16$	$23,9 \pm 1,0$
23.04.07	2,4	$\leq 14$	27,6	$\leq 0,5$	
25.04.07	2,5	$903 \pm 20$	28,8	$31,4 \pm 3,2$	$1,3 \pm 0,6$
14.05.07	2,7	$191 \pm 10$	31,0	$6,2 \pm 0,7$	
16.05.07	2,3	$82 \pm 11$	26,4	$3,1 \pm 0,4$	
21.05.07	3,9	$3650 \pm 52$	44,8	$81,5 \pm 8,2$	$4,4 \pm 0,5$
23.05.07	2,6	$241 \pm 13$	29,9	$8,1 \pm 0,8$	$4,2 \pm 0,5$
28.05.07	2,5	$52 \pm 10$	28,7	$1,8 \pm 0,3$	
30.05.07	2,8	$39 \pm 11$	32,2	$1,2 \pm 0,3$	
06.06.07	2,4	$48 \pm 10$	27,6	$1,7 \pm 0,3$	
07.06.07	2,3	$74 \pm 11$	26,4	$2,8 \pm 0,3$	

Продолжение табл. 6

1	2	3	4	5	6
13.06.07	3,5	6300±112	40,2	157±16	10,8±1,1
18.06.07	1,65	34±9	19,0	1,8±0,2	
20.06.07	2,0	27,7±9	23,0	1,2±0,3	
27.06.07	4,5	447±18	51,7	8,6±0,9	0,8±0,1
04.07.07	0,1	≤33	1,1	≤30	
05.07.07	0,9	15,9±5	10,3	1,5±0,15	
12.07.07	1,1	1200±34	12,9	93±10	
17.07.07	1,3	260±12	14,9	17,5±1,8	
19.07.07	1,0	630±25	11,5	55±6	1,8±0,6
23.07.07	0,9	24±8	10,3	2,4±0,8	
25.07.07	1,2	36±4	13,8	2,6±0,3	
30.07.07	0,9	29±3	10,3	27,8±2,8	
01.08.07	1,2	≤16	13,8	≤1,2	
06.08.07	1,2	≤16	13,8	≤1,2	
08.08.07	1,4	≤22	16,1	≤1,3	
13.08.07	2,8	133±12	32,2	4,1±0,4	
15.08.07	2,0	990±10	23,0	43,1±0,9	7,4±2,1
20.08.07	1,6	113±17	18,4	6,1±1,0	
22.08.07	0,7	26±10	8,0	3,3±1,3	
28.08.07	2,3	10±5	26,4	0,4±0,2	
30.08.07	2,5	18±9	28,7	0,6±0,3	
03.09.07	3,0	23,8±22	34,5	0,7±0,2	
05.09.07	4,3	735±26	49,4	14,9±0,6	5,0±0,5
10.09.07	3,5	≤18	40,2	≤0,5	
12.09.07	7,0	150±10	80,5	1,9±0,2	
17.09.07	5,2	77±10	57,5	1,3±0,2	
19.09.07	3,8	125±11	43,7	2,9±0,3	
24.09.07	3,6	44±6	41,4	1,1±0,2	
26.09.07	6,0	190±12	69	2,8±0,2	
08.10.07	2,5	173±10	28,7	6,0±0,5	
10.10.07	3,6	≤11	41,4	≤0,3	
15.10.07	1,1	26±10	16,4	1,6±0,6	
17.10.07	3,7	262±12	42,5	6,2±0,6	
22.10.07	3,8	23±10	43,7	0,5±0,3	
24.10.07	4,4	≤11	50,6	≤0,2	
29.10.07	4,2	444±14	48,3	9,2±0,9	
31.10.07	5,7	338±35	65,5	5,2±0,6	
12.11.07	3,2	25±8	36,8	0,7±0,2	
14.11.07	4,3	≤12	49,4	≤0,2	
19.11.07	3,4	57±23	39,1	1,5±0,6	
21.11.07	4,0	26±3	46,0	0,6±0,1	
29.11.07	7,4	28±14	85,0	0,3±0,2	
03.12.07	2,8	130±13	32,2	4,0±0,4	
05.12.07	7,8	447±27	89,7	5,0±0,4	1,9±0,6
11.12.07	1,5	150±18	17,2	8,7±1,0	

Продолжение табл. 6

1	2	3	4	5	6
13.12.07	4,6	24,1±8,0	52,9	0,5±0,2	
17.12.07	0,6	≤ 11	6,9	≤ 1,6	
19.12.07	3,5	261±12	40,2	6,5±0,5	
24.12.07	6,0	≤ 12	69,0	≤ 0,2	
26.12.07	2,6	240±10	29,9	8,0±0,6	
10.01.08	6,0	250±13	69	3,6±0,3	
14.01.08	3,2	283±35	36,8	7,7±1,2	6,1±0,9
16.01.08	7,1	526±19	81,6	6,4±0,5	22,7±1,0
21.01.08	3,0	≤ 12	34,5	≤ 0,3	
23.01.08	4,0	52±18	46,0	1,1±0,4	
28.01.08	1,6	≤ 12	18,4	≤ 0,6	
30.01.08	4,4	≤ 11	50,6	≤ 0,2	
04.02.08	4,9	31±7	56,3	0,6±0,1	
06.02.08	3,3	1010±22	37,9	26,6±2,7	93±10
06.02.08*	6,2*	376±40	71	5,3±0,5	52,0±5
11.02.08	8,8	443±16	101,1	4,4±0,4	
13.02.08	6,5	1218±47	74,7	16,3±1,6	
18.02.08	2,5	≤ 12	28,7	≤ 0,4	
20.02.08	3,6	19±9	41,4	0,5±0,3	
21.02.08	3,8	838±28	43,7	19,2±2,0	63±6,0
26.02.08	5,8	25±6	66,7	0,4±0,1	
03.03.08	4,1	32±8	47,1	0,7±0,1	
05.03.08	15,1	58±7	173,6	0,3±0,1	
13.03.08	3,7	31±6	42,5	0,7±0,2	
17.03.08	7,6	105±10	87,4	1,2±0,1	
19.03.08	2,7	21±7	31,0	0,7±0,2	
24.03.08	4,5	131±15	51,7	2,5±0,3	
26.03.08	3,6	24±8	41,7	0,6±0,2	
31.03.08	1,6	84±8	18,4	4,6±0,5	
02.04.08	0,9	≤ 11	10,3	≤ 1,1	
08.04.08	4,4	169±17	50,6	3,3±0,3	
10.04.08	5,2	113±11	59,8	1,9±0,2	3,7±0,3
14.04.08	8,1	57±13	93,1	0,6±0,1	
16.04.08	8,4	33±8	96,6	0,3±0,1	
21.04.08	4,2	≤ 11	48,3	≤ 0,3	
23.04.08	5,0	≤ 11	57,5	≤ 0,3	
28.04.08	3,8	4730±156	43,7	108±11	25,0±3,0
12.05.08	4,2	125±14	48,3	2,6±0,3	2,2±0,3
14.05.08	3,4	≤ 11	39,1	≤ 0,3	
19.05.08	3,0	30±11	34,5	0,9±0,1	
21.05.08	4,1	400±15	47,1	8,5±0,9	
26.05.08	7,2	12±10	82,8	0,1±0,1	
28.05.08	3,8	31±9	43,7	0,7±0,1	
02.06.08	4,9	313±24	56,3	5,6±0,6	
04.06.08	5,3	≤ 12	60,9	≤ 0,2	

Продолжение табл. 6

1	2	3	4	5	6
09.06.08	5,9	891±35	67,8	13±2	
11.06.08	5,0	526±47	57,5	9,1±0,9	
16.06.08	4,4	234±18	50,6	4,6±0,5	
23.06.08	2,5	152±11	28,7	5,3±0,4	
25.06.08	1,8	≤ 11	20,7	≤0,5	
30.06.08	2,8	129±9	32,2	4,0±0,4	
02.07.08	3,0	154±10	34,5	4,5±0,5	
07.07.08	2,9	26±8	33,3	0,8±0,2	
09.07.08	2,3	630±17	26,4	24±2	2,5±0,4
14.07.08	2,2	131±7	25,3	5,2±0,5	
16.07.08	3,6	67±11	41,4	1,6±0,2	
21.07.08	4,2	28,9±9	48,3	0,6±0,2	
23.07.08	9,0	504±13	103	4,9±0,5	
28.07.08	3,2	18±7	36,8	0,5±0,2	
30.07.08	4,9	< 12	56,3	<0,2	
Среднее ± СКО(1 σ, n =126 проб)				11,7±30	

\* Проба отобрана с помощью мобильной установки на площадке Радиового института (Санкт-Петербург) в период с 11:00 до 16:00.

При рассмотрении данных табл. 6 и рис. 4, видно, что за период мониторинга концентрация  $^{133}\text{Xe}$  менялась от фоновых значений (0,2–0,5 мБк/м<sup>3</sup>) до 185 мБк/м<sup>3</sup>. Среднее значение концентрации  $^{133}\text{Xe}$  в этот период наблюдений составило 11,7 мБк/м<sup>3</sup> ( $n = 126$ ), а величина СКО велика и равняется 30 мБк/м<sup>3</sup>, указывая тем самым на значительные колебания величины концентрации. Медиана для данного ряда наблюдений равна 1,9 мБк/м<sup>3</sup>. В этот же период было получено несколько проб (16 %), когда в них присутствовал еще и  $^{135}\text{Xe}$  ( $T_{1/2} = 9,14$  ч). Причем отношение активностей  $^{135}\text{Xe}/^{133}\text{Xe}$  менялось от 0,033 до 3,5. Корреляции между концентрациями радионуклидов ксенона не обнаружено; ясно лишь, что  $^{135}\text{Xe}$  присутствовал в пробе, когда концентрация  $^{133}\text{Xe}$  была больше, чем 30 мБк/м<sup>3</sup>, но это условие не обязательное. Например, 29 марта, 2 и 9 апреля 2007 г. концентрация  $^{133}\text{Xe}$  была более 30 мБк/м<sup>3</sup>, однако  $^{135}\text{Xe}$  в пробах воздуха не был обнаружен. Анализ метеорологической информации по расчёту обратных траекторий показывает, что в те дни, когда в пробах воздуха был обнаружен  $^{135}\text{Xe}$ , перенос воздушных масс был с западных направлений. Подробнее этот вопрос будет рассмотрен ниже.

На рис. 5 показаны отношения активностей  $^{135}\text{Xe}/^{133}\text{Xe}$  в зависимости от концентрации  $^{133}\text{Xe}$  в пробах воздуха. Согласно работам Бойера [11] и Финкельштейна [12], отношение активностей  $^{135}\text{Xe}/^{133}\text{Xe}$  при наступлении равновесия в реакторной зоне достигает 0,24–0,33. Сравнение полученных экспериментальных отношений с равновесными позволит рассчитать методом радионуклидной хронометрии время, прошедшее между выходом изотопов ксенона из реактора и моментом его измерения в отобранной пробе воздуха.

Рассматривая данные, представленные на рис. 5, можно видеть, что примерно в половине отобранных проб отношение активностей  $^{135}\text{Xe}/^{133}\text{Xe}$  меньше равновесного, то есть можно полагать, что в этом случае перенос воздушных масс происходил продолжительное время. Более подробно этот вопрос будет рассмотрен ниже.

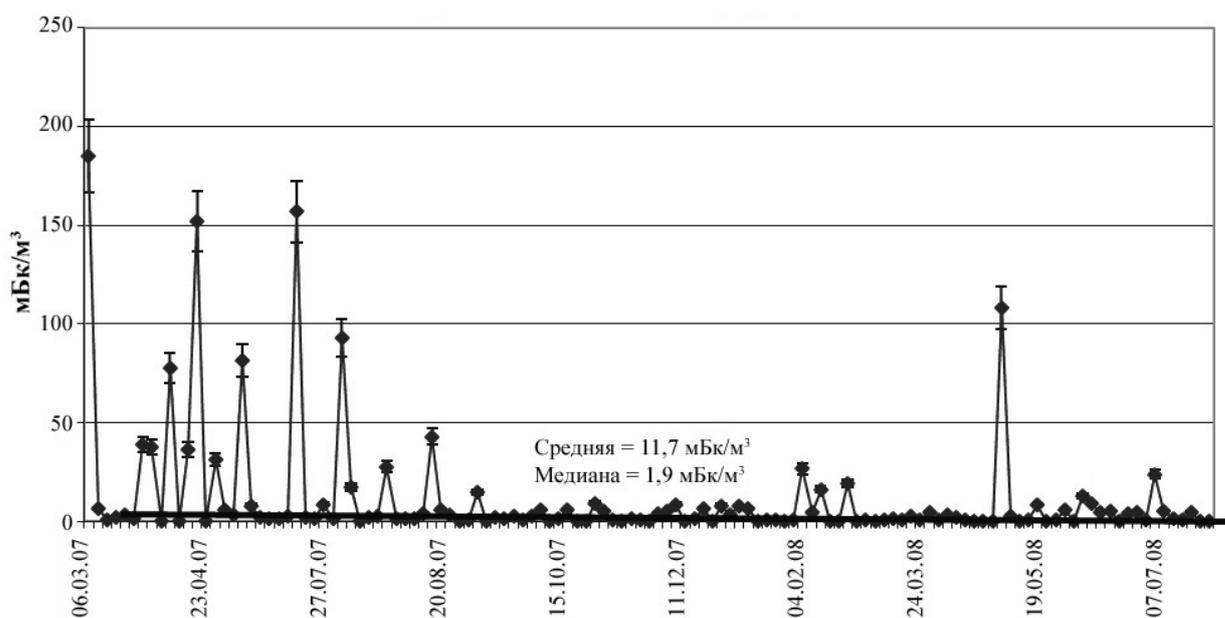


Рис. 4. Концентрация  $^{133}\text{Xe}$  в атмосферном воздухе Санкт-Петербурга в течение января 2007–июля 2008 г., чёрной линией обозначена средняя концентрация  $^{133}\text{Xe}$ .

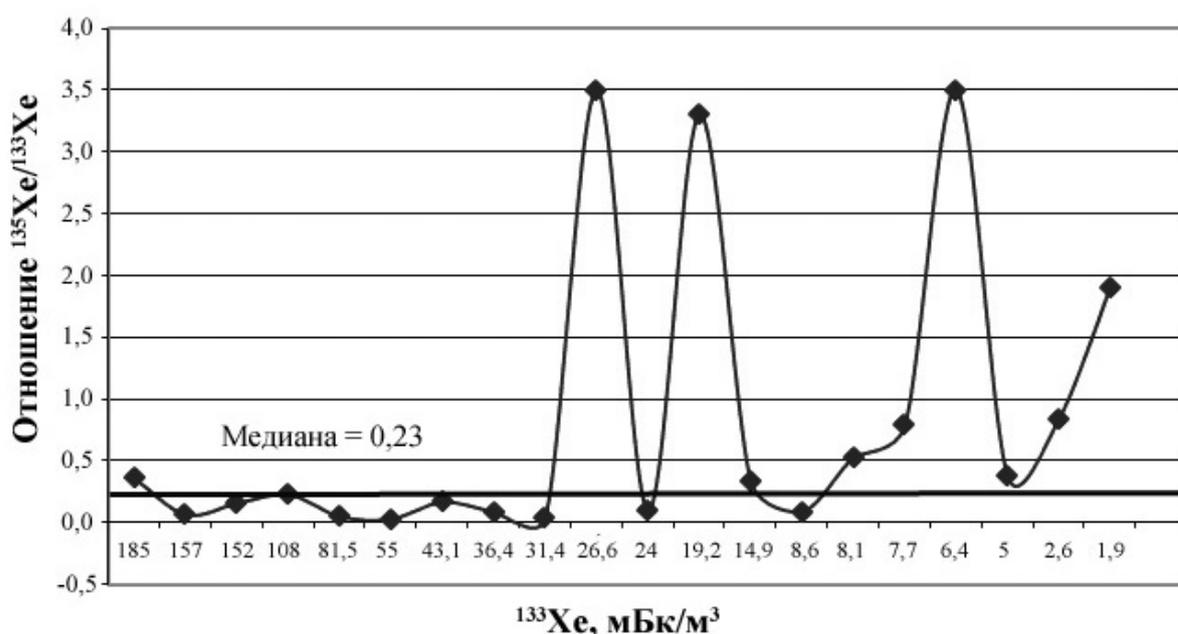


Рис. 5. Изменение отношения активностей  $^{135}\text{Xe}/^{133}\text{Xe}$  в пробах атмосферного воздуха Санкт-Петербурга, медиана обозначена чёрной жирной линией.

При сравнении данных мониторинга ксенона в Санкт-Петербурге и в Череповце можно констатировать, что в Санкт-Петербурге средняя концентрация по  $^{133}\text{Xe}$  почти в 15 раз выше, чем в Череповце, в то время как минимальная концентрация превышает таковую в Череповце не более, чем в 2 раза. Можно полагать, что, по всей вероятности, это обусловлено тем, что на западе от Санкт-Петербурга помимо Ленинградской АЭС располагается еще ряд финских и шведских АЭС. В большинстве случаев повышение концентраций наблюдалось при западном и юго-западном переносах воздушных масс. На рис. 6 представлены данные по концентрациям  $^{85}\text{Kr}$  и  $^{133}\text{Xe}$ .

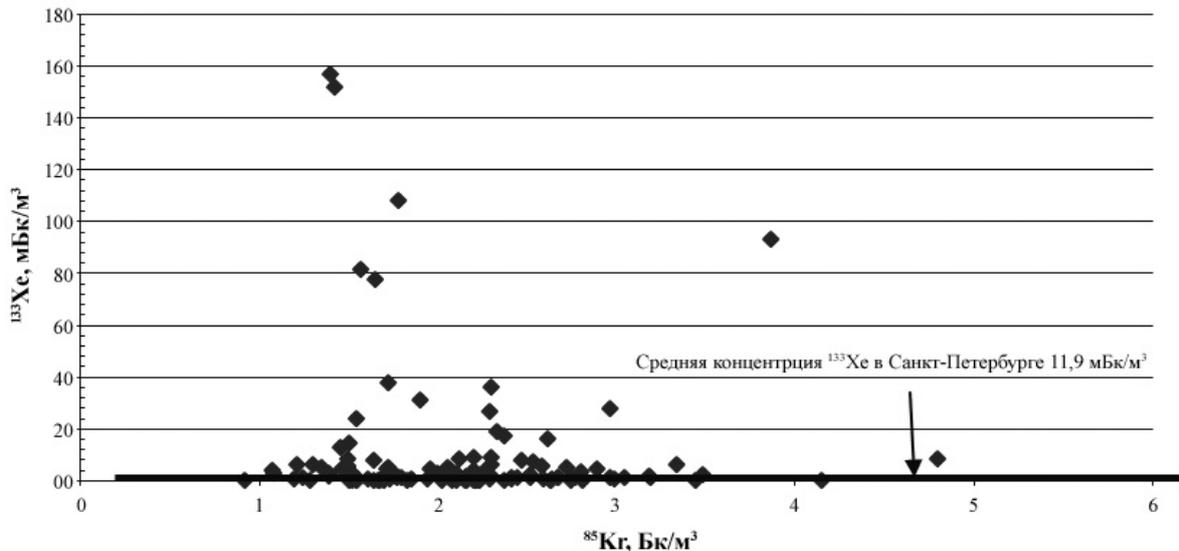


Рис. 6. Результаты мониторинга радионуклидов  $^{133}\text{Xe}$  и  $^{85}\text{Kr}$  в Санкт-Петербурге.

Как видно, концентрации  $^{133}\text{Xe}$  и  $^{85}\text{Kr}$  между собой в целом не коррелируют, и можно утверждать, что выход радионуклидов ксенона и  $^{85}\text{Kr}$  происходил раздельно и в различных точках.

#### Определение возможных источников истечения радионуклидов Xe и $^{85}\text{Kr}$

Для каждого случая отбора проб воздуха в Санкт-Петербурге и на станции в Череповце рассчитывали обратные траектории переноса атмосферных масс по дисперсионной транспортной модели HYSPLIT, разработанной лабораторией ARL (<http://www.arl.noaa.gov/ready.html>).

На рис. 7 представлена схема расположения АЭС в зоне проводившегося мониторинга. Здесь помимо российских АЭС, расположенных в Северо-Западном регионе, показаны основные АЭС северной Европы. Эти станции могут являться источниками радионуклидов благородных газов, выбрасываемых в обычном режиме в атмосферу и переносимых в различных направлениях.

Рассматривая результаты мониторинга радионуклидов ксенона и криптона в Санкт-Петербурге, остановим свое внимание в первую очередь на результатах с высокими концентрациями и наличием двух радионуклидов Xe в пробе. В табл. 7 дается подборка таких данных. Как видим, основным направлением переноса атмосферных масс в эти периоды был сектор от южного до северо-северо-западного направлений, с восточных направлений переноса не было.

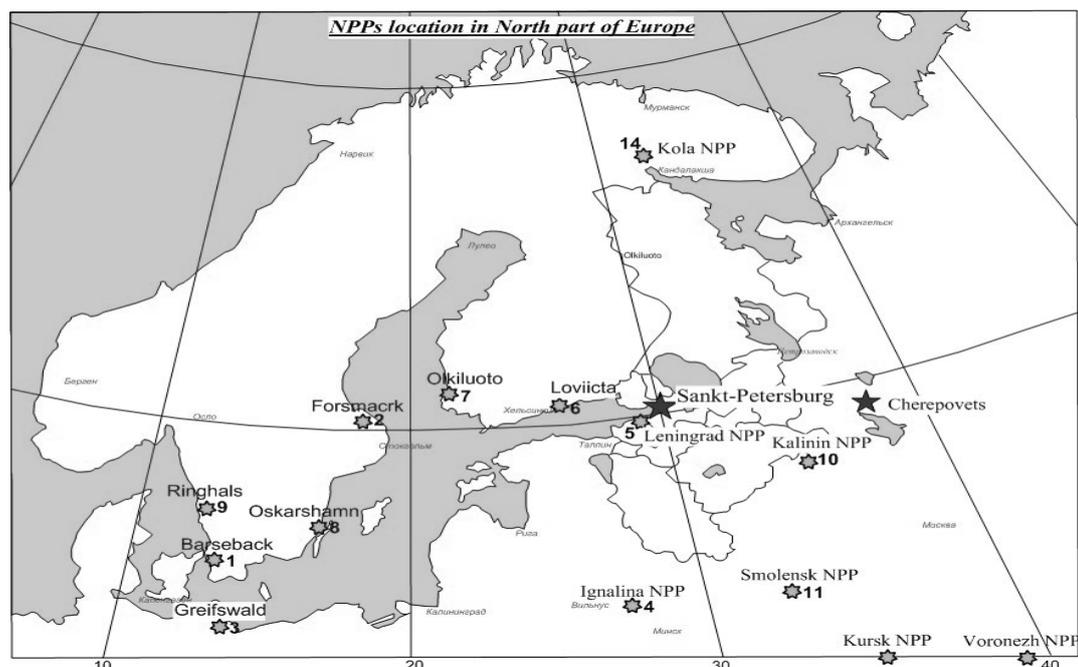


Рис. 7. Схема расположения пунктов мониторинга и АЭС, находящихся в северной Европе и на европейской части России.

Таблица 7. Объёмная активность  $^{133}\text{Xe}$  и  $^{135}\text{Xe}$  в атмосферном воздухе Санкт-Петербурга в период сентябрь 2007 – июль 2008 г. и направление переноса частиц

Дата отбора (10–11 ч по московскому (МСК) времени)	Объёмная активность в воздухе на дату отбора пробы, мБк/м <sup>3</sup>		Отноше- ние актив- ностей $^{135}\text{Xe}/^{133}\text{Xe}$	Направ- ление переноса частиц	Предполагаемый источник
	$^{133}\text{Xe}$	$^{135}\text{Xe}$			
05.09.07	14,9±0,6	5,0±0,5	0,34	ССЗ, З	Форсмарк, Олкилоуто
14.01.08	7,7±1,2	6,1±0,9	0,79	З	Форсмарк, ЛАЭС
16.01.08	6,4±0,5	22,7±1,0	3,5	ЮЗ, Ю	Игналинская АЭС
06.02.08	26,6±2,7	93±10	3,5	ЮЗ	Игналинская АЭС
06.02.08*	5,3±0,5	52,0±5	9,8	ЮЗ	Игналинская АЭС
21.02.08	19,2±2,0	63±6,0	3,3	З	ЛАЭС
10.04.08	1,9±0,2	3,7±0,3	1,9	ЮЗ, Ю	Барзбек Оскархамн
28.04.08	108±11	25,0±3,0	0,23	ЮЗ, З	ЛАЭС
09.07.08	24±2	2,5±0,4	0,10	ССЗ	Кольская АЭС

\*Примечание: отбор пробы мобильной установкой начат после 12:00.

Представленные на рис. 8 расчётные траектории на Санкт-Петербург 5 сентября 2007 г. показывают, что воздушные массы пришли из районов шведской АЭС Форсмарк (60,40° с.ш., 18,25° в.д.) и финской АЭС Олкилоуто (61,5° с.ш., 21,5° в.д.).

На рис. 9 показана схема траекторий переноса за период с 11 ч 15 января по 11 ч 16 января. Траектория проходила над г. Игналина (Литва) 15 января приблизительно в 19 ч МСК на уровне около 400 м. Воздушная масса, пришедшая в Санкт-Петербург, была обогащена  $^{135}\text{Xe}$  настолько, что отношение  $^{135}\text{Xe}/^{133}\text{Xe}$  равнялось 3,5. Длительность переноса составила около 12 ч, поэтому в момент выхода в районе Игналинской АЭС это отношение должно было быть почти в 2 раза выше.

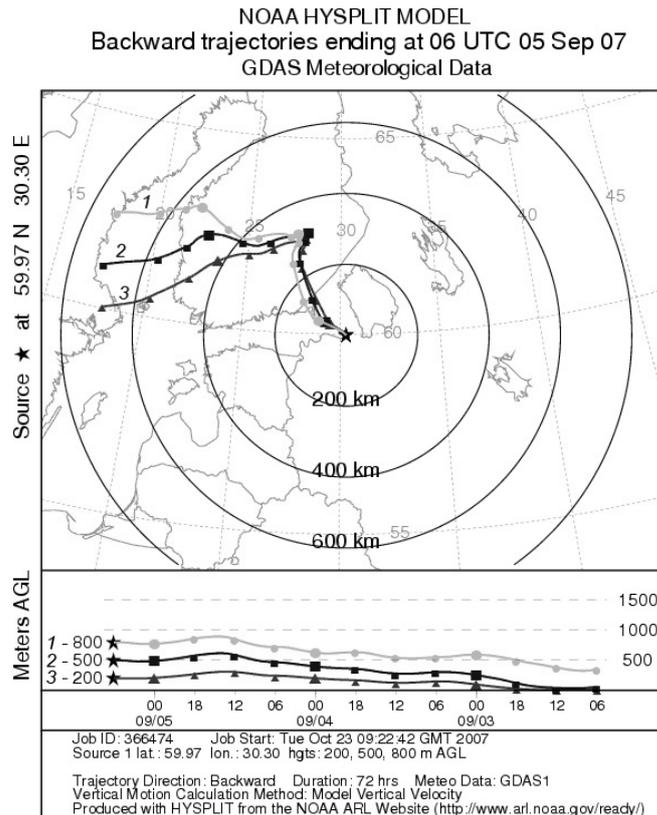


Рис. 8. Трёхсуточные обратные траектории на Санкт-Петербург, 06 ч СГВ (среднее время по Гринвичу) 5 сентября 2007 г.

6 февраля 2008 г. воздушные массы, переносимые в Санкт-Петербург с 11:00 до 17:00 (МСК), были обогащены  $^{135}\text{Xe}$ , причем отношение  $^{135}\text{Xe}/^{133}\text{Xe}$  возросло с 3,5 до 9,8 по данным измерения двумя различными методами и установками. На рис. 10 показаны двухсуточные обратные траектории на конец пробоотбора (14 ч СГВ 06 февраля 2008 г.). Исходя из данных расчёта траекторий, показанных на рис. 10, можно предположить, что воздушные массы находились непосредственно над г. Игналина на высоте около 300 м, то есть в течение всего шестичасового периода наблюдался перенос воздушных масс в Санкт-Петербург из района Игналины на относительно небольшой высоте. Продолжительность перемещения массы от Игналины до Санкт-Петербурга составляет около 18 ч.

28 апреля 2008 г. концентрация  $^{133}\text{Xe}$  в Санкт-Петербурге значительно возросла до величины 108 мБк/м<sup>3</sup>, отношение  $^{135}\text{Xe}/^{133}\text{Xe}$  равнялось 0,23. Из анализа обратных траекторий (рис. 11) видно, что в течение 5 сут воздушная масса на высоте 400 м проходила в непосредственной близости от южного побережья Швеции в районе АЭС Барзбек. Можно предположить, что источниками радионуклидов ксенона были АЭС Барзбек, расположенная на юге Швеции, или Ленинградская АЭС в г. Сосновый Бор. Если эти массы пришли из южной Швеции, то за 84 ч их переноса прошло девять периодов полураспада  $^{135}\text{Xe}$ , и в момент выброса это отношение  $^{135}\text{Xe}/^{133}\text{Xe}$  должно было бы равняться примерно 70, что для АЭС, а также предприятий по изготовлению радиофармпрепаратов, например Флерус (Бельгия), неоправданно велико. Поэтому наиболее вероятно, что воздушные массы с таким высоким содержанием радионуклидов ксенона и указанным отношением были принесены из района Ленинградской АЭС.

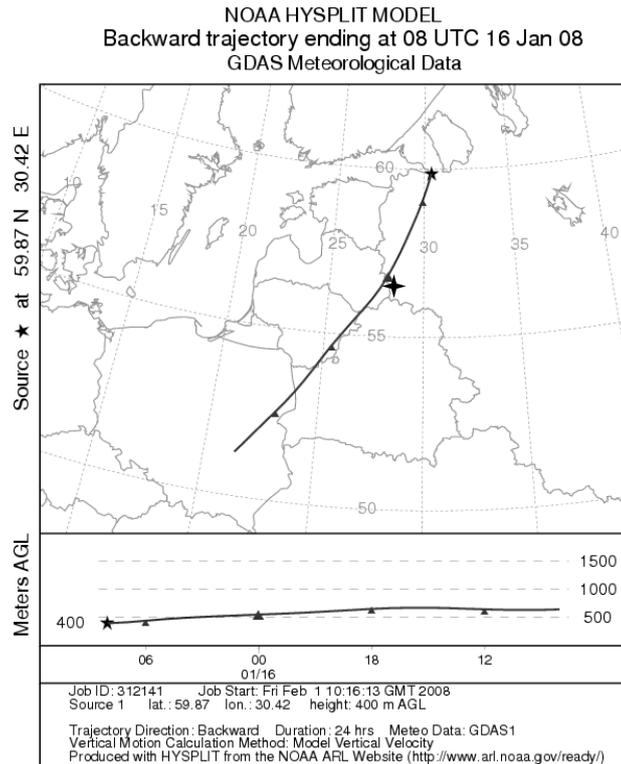


Рис. 9. Суточная обратная траектория на уровне 400 м на С.-Петербург, 11 ч МСК 16.01.2008 г. Чёрным крестиком отмечено местоположение Игналинской АЭС.

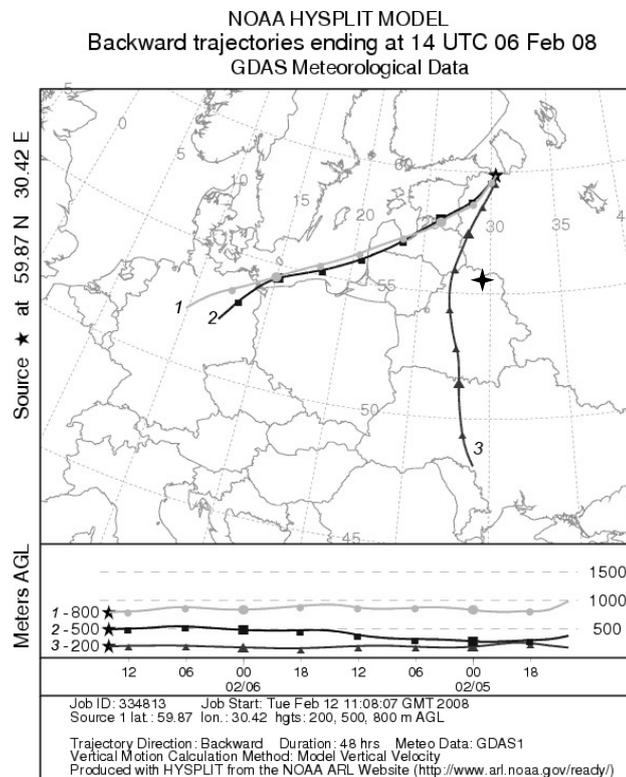


Рис. 10. Двухсуточные обратные траектории на С.-Петербург, 14 ч СГВ 06.02.2008 г. Чёрный крестик указывает примерное местоположение Игналинской АЭС (55,5°с.ш., 26,0° в.д.).

Из данных табл. 7. видно, что 9 июля 2008 г. отношение активностей радионуклидов  $^{135}\text{Xe}/^{133}\text{Xe}$  было  $\sim 0,1$ , а активность  $^{133}\text{Xe}$  почти в 80 раз превышала фоновое значение. Трёхсуточные обратные траектории на всех высотах близки между собой, берут начало у южной оконечности Новой Земли и через акваторию Баренцева моря, Кольский полуостров, Финляндию и Карелию приходят в Санкт-Петербург. Около 0 часов 7 июля траектория воздушной частицы проходила в непосредственной близости от г. Полярные Зори (Кольская АЭС). За 2 сут движения воздушных масс прошло почти пять периодов полураспада  $^{133}\text{Xe}$  и тогда в момент выброса порции газов соотношение радионуклидов должно было быть примерно 2,8. Есть основания предполагать, что смесь радионуклидов была транспортирована из района г. Полярные Зори (Кольская АЭС).

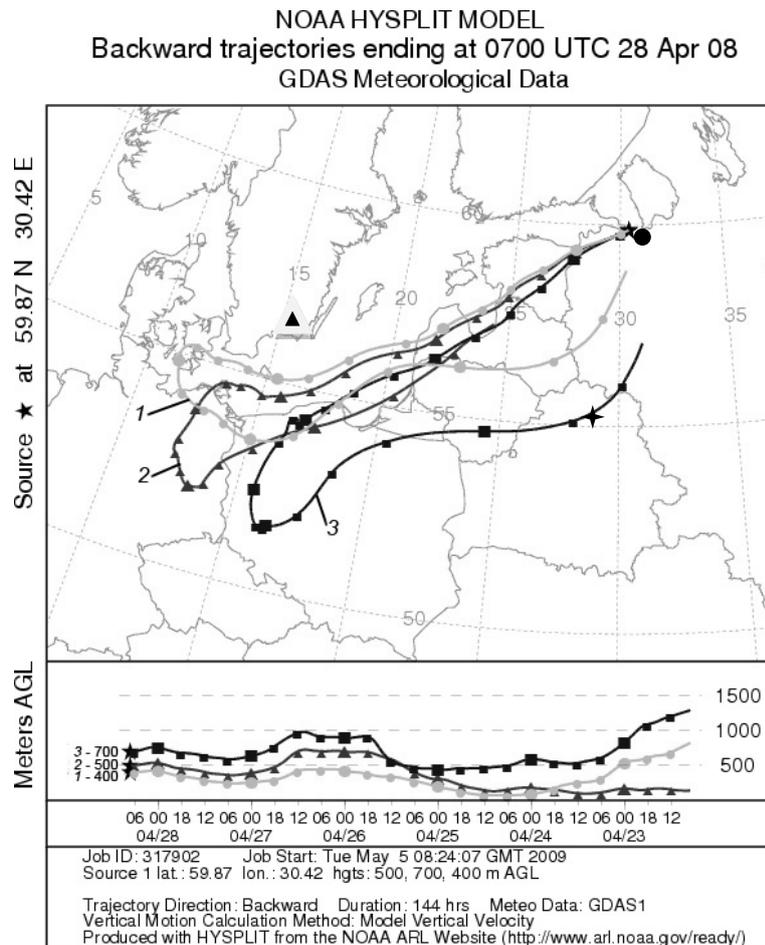


Рис. 11. 144-часовые обратные траектории на высотах 400 (1), 500 (2) и 700 (3) м. Санкт-Петербург. 07 СГВ 28.04.2008 г. (окончание пробоотбора). Местоположение АЭС Барзбек ( $55,75^\circ$  с.ш.,  $13,00^\circ$  в.д.) указано треугольником, Игналинской АЭС ( $55,5^\circ$  с.ш.,  $26,0^\circ$  в.д.) – крестиком и Ленинградской АЭС ( $59^\circ 51'$  с.ш.,  $29^\circ 04'$  в.д.) – кружочком.

13, 24 декабря 2007 г., 21, 28 и 30 января, 18, 20 и 26 февраля 2008 г. концентрация  $^{133}\text{Xe}$  в воздухе Санкт-Петербурга была либо минимальной, либо на уровне чувствительности методики и не превышала в эти дни  $0,2\text{--}0,5$  мБк/м<sup>3</sup>. Анализ обратных траекторий переноса в течение 1–3 сут до момента пробоотбора показал, что воздушные частицы в слое 200–1000 м смешались на Санкт-Петербург из централь-

ных районов Баренцева моря и северных районов Скандинавского полуострова (13 декабря); был устойчивый западный-юго-западный перенос, траектория прошла на 15 км южнее Ленинградской АЭС (24 декабря); перенос был из юго-восточного района Швеции (21 января 2008 г.); суточная траектория проходила над северными районами Финляндии и Карелии, смещаясь к Санкт-Петербургу с севера на юг (28 января); траектории переноса воздушной частицы берут начало над Северным морем и проходят на уровне 200 м через Швецию, Ботнический залив, южную оконечность Финляндии и восточную часть Финского залива; на уровнях 500 и 800 м траектории проходят севернее, через центральные районы Скандинавии и Финляндии (30 января); имел место устойчивый северо-западный перенос, начинавшийся на севере Финляндии (уровни 500 и 800 м) и на уровне 200 м на севере Швеции (18 февраля 2008 г.), пришедшая в Петербург (с 12 ч 30 мин до 13 ч 30 мин 20 февраля) воздушная масса проходила около АЭС Ловийса; траектории (26 февраля) на уровнях 200 и 500 м проходят поблизости от АЭС Ловийса, Олкилуото и Ленинградской.

Таким образом, проведенный анализ метеорологических ситуаций показывает, что минимальные (фоновые) концентрации  $^{133}\text{Xe}$  в Санкт-Петербурге наблюдались, как правило, при воздушном переносе, минуемом регионы расположения АЭС, либо в те периоды, когда истечения вентилируемых газов на АЭС были минимальны.

Поведение радионуклидов  $\text{Xe}$  и  $\text{Kr}$  в атмосфере должно быть практически одинаковым, однако уровень регионального фона этих радионуклидов существенно различается как по величине, так и по флуктуации значений. Концентрация радионуклидов  $\text{Xe}$  варьирует в очень широких пределах, концентрация же  $^{85}\text{Kr}$  в мире примерно одинакова и составляет в среднем около  $1,5 \text{ Бк/м}^3$ . Для атмосферного воздуха в районе Череповца она примерно такая же, но варьировала от 1,3 до  $1,8 \text{ Бк/м}^3$ . Для Санкт-Петербурга изменение величины концентрации  $^{85}\text{Kr}$  составляло более 30 %.

В настоящее время основными источниками поступления  $^{85}\text{Kr}$  в атмосферу могут быть атомные энергетические установки и предприятия по переработке облученного или отработавшего топлива. Диаграмма распределения концентрации  $^{85}\text{Kr}$  в течение 2007–2008 гг. в атмосферном воздухе Санкт-Петербурга была представлена выше на рис. 2.

Анализ расчётных обратных траекторий переноса воздушных масс показал, что в большинстве случаев кратковременные периоды повышения концентрации  $^{85}\text{Kr}$  в атмосферном воздухе Санкт-Петербурга могут быть связаны с поступлением воздушных масс из районов расположения АЭС. В четырёх случаях воздушные массы поступали в основном из района расположения Игналинской АЭС, по два случая – из районов Калининской и Кольской АЭС. Так как  $^{85}\text{Kr}$  не утилизируется и не захоранивается, то существует вероятность того, что АЭС периодически сбрасывают в атмосферу накопившийся  $^{85}\text{Kr}$ . Значительное повышение концентрации  $^{85}\text{Kr}$  (в 10–20 раз) в течение суток отмечалось в предыдущие годы в Ирландии [8] и в Японии в недельных пробах [7].

Средняя величина концентрации  $^{133}\text{Xe}$  в атмосферном воздухе Череповца за период данного мониторинга составила 0,79, а минимальная –  $0,09 \text{ мБк/м}^3$ . При рассмотрении данных табл. 3 и рис. 5, можно увидеть, что только в четырёх случаях отмечалось двукратное превышение средней концентрации, а именно 27.09.06, 30.11.06, 11.05.07 и 10.02.08.

Так, 27 сентября 2006 г., когда в атмосферном воздухе в районе Череповца была зафиксирована повышенная концентрация  $^{133}\text{Xe}$  ( $2,5 \text{ мБк/м}^3$ ), г. Череповец находился вблизи центра антициклона несколько к северу от него. Перенос за двое суток происходил с севера Финляндии и Карелии, Кольского полуострова (Россия), где находится Кольская АЭС ( $67^\circ 28' \text{ с.ш.}, 32^\circ 28' \text{ в.д.}$ ), за трое суток – с акватории Баренцева моря к западу от Шпицбергена.

30 ноября 2006 г. концентрация  $^{133}\text{Xe}$  в атмосферном воздухе Череповца равнялась  $1,62 \text{ мБк/м}^3$ . Расчёт обратной траектории переноса частиц показал, что за три дня до этого воздушные массы были около г. Моль, где имеется производство радиофармпрепаратов (Бельгия,  $51,2^\circ \text{ с.ш.}, 5,2^\circ \text{ в.д.}$ ), прошли через Данию, север Германии, юг Швеции, затем через Латвию и Эстонию и 30 ноября пришли в Череповец.

5 декабря 2006 г. концентрация  $^{133}\text{Xe}$  в атмосферном воздухе Череповца достигла величины  $1,66 \text{ мБк/м}^3$ . Согласно расчёту обратных траекторий воздушные массы в течение 72 ч переносились из Франции и Германии, через Польшу и Белоруссию, а затем над районом расположения Смоленской АЭС ( $54^\circ 10' \text{ с.ш.}, 33^\circ 14' \text{ в.д.}$ ) по направлению на северо-восток Вологодской области.

Повышенные концентрации  $^{133}\text{Xe}$  были зарегистрированы на станции в Череповце также 16 января и 10 февраля 2008 г. Отбор проб в Череповце выполняли в течение 43 ч в период с 12 ч 15.01.08 по 07 ч 17.01.08 по среднему гринвичскому времени.

Из анализа обратных траекторий следовало, что 15 и 16 января в 12 ч (СГВ) в Череповец на высоте 800 м поступали воздушные массы, которые около 15 ч назад находились вблизи Игналинской АЭС ( $55^\circ 36' 17'' \text{ с.ш.}, 26^\circ 33' 45'' \text{ в.д.}$ ). При более детальном анализе 12-часовых траекторий можно было предположить, что в 12–15 ч (СГВ) 15 января в Череповец на высоте 800 м мог поступать  $^{133}\text{Xe}$  с воздушным потоком, который проходил над Игналинской АЭС, а в 18–24 ч (СГВ) 16 января 2008 г. – с потоком, который проходил над районом Калининской АЭС ( $57^\circ 54' \text{ с.ш.}, 35^\circ 02' \text{ в.д.}$ ). На высоту 500, 300 и 100 метров смесь радионуклидов  $^{133}\text{Xe}$  ( $2,02 \text{ мБк/м}^3$ ) и  $^{85}\text{Kr}$  ( $1,76 \text{ Бк/м}^3$ ) могла поступить только из района г. Удомля (Калининская АЭС) в течение 15 и 16 января 2008 г.

Средняя за 3 сут концентрация  $^{133}\text{Xe}$ , рассчитанная на середину пробоотбора, то есть 10 февраля 2008 г., составила  $1,32 \text{ мБк/м}^3$ . Суточные обратные траектории на момент времени 01 ч (СГВ) 10 февраля на уровне 800 м прошли в непосредственной близости от атомной станции Ловийса при слабых восходящих движениях.

В первой половине дня 10 февраля 2008 г. изменилось направление потока, воздушная масса перемещалась к Череповцу с юго-запада. Траектория прошла над Калининской АЭС со снижением с высоты 1000 до 500 м.

Из всего сказанного можно сделать вывод, что на уровнях выше 500 м влияние на воздушную массу, пришедшую в район Череповца 9–11 февраля, могли оказывать атомные станции Ловийса, Ленинградская и Калининская.

Таким образом, период с декабря 2007 г. по февраль 2008 г. характеризовался повышенными концентрациями  $^{133}\text{Xe}$  в атмосфере Череповца, до 22 раз превышавшими минимальную концентрацию. Анализ синоптических ситуаций в этот период показывает, что основным сектором переноса частиц был сектор западных и южных направлений, обусловленный в основном циклонами.

Средняя величина концентрации  $^{85}\text{Kr}$  в Череповце за период мониторинга 2006–2008 гг. составила  $1,55 \pm 0,12 \text{ Бк/м}^3$ , минимальная – 1,31, а максимальная –  $1,79 \text{ Бк/м}^3$ . При рассмотрении данных табл. 2 и рис. 1, можно видеть, что превыше-

ние над средней концентрацией отмечалось 27.05.07, 19.12.07, 16.01.08, 08.02.08, 10.02.08 и 17.07.08.

За сутки до 27 мая 2007 г (объёмная активность  $^{85}\text{Kr}$  1,79 Бк/м<sup>3</sup>) воздушная масса в средней части пограничного слоя атмосферы смещалась на Череповец из восточных районов Белоруссии. Но за 2 сут до 27 мая 2007 г. воздушная масса пришла на уровне 200 м с приграничной территории северной Украины и России, а на уровнях 500 и 800 м – из северных районов Украины и, войдя в пространство над Россией, двигалась в районе Смоленской АЭС.

Полученные результаты моделирования позволяют предположить, что воздушные массы с повышенным содержанием  $^{85}\text{Kr}$  (1,76 Бк/м<sup>3</sup>) могли быть транспортированы в Череповец к моменту начала пробоотбора 19 декабря 2007 г. воздушными потоками на высотах 200–300 м из района Кольской АЭС (г. Полярные Зори), а в середине и конце периода пробоотбора из районов АЭС Ловийса и Соснового Бора (Ленинградская АЭС) на высотах 200–400 и 700–800 м.

Как отмечалось выше, 16 января 2008 г. воздушные массы пришли в Череповец из районов Игналинской и Калининской АЭС и принесли повышенные концентрации  $^{133}\text{Xe}$ , 10 февраля возможным источником повышенной концентрации  $^{85}\text{Kr}$  (1,76 Бк/м<sup>3</sup>) могли быть АЭС Ловийса, Ленинградская и Калининская АЭС.

Из анализа траекторий следует, что воздушная масса за двое суток до пробоотбора 08 февраля 2008 г. смещалась в район Череповца (концентрация  $^{85}\text{Kr}$  1,75 Бк/м<sup>3</sup>) из южных районов России, с территории Украины и Белоруссии, из восточных и центральных районов Европы и Прибалтики. При этом на всех трёх уровнях воздушная масса проходила практически над всеми АЭС, расположенными в зоне мониторинга. В этот список не попали только Кольская и Нововоронежская АЭС (г. Нововоронеж).

Таким образом, воздушные массы с повышенным содержанием  $^{85}\text{Kr}$  переносились в район Череповца в основном с западных и юго-западных направлений, то есть из районов расположения большинства АЭС.

### Заключение

В результате двухлетнего периода наблюдения за концентрацией радиоактивных благородных газов в Северо-Западном регионе РФ удалось установить пределы вариации концентрации радионуклидов  $\text{Xe}$  и  $^{85}\text{Kr}$  в Санкт-Петербурге и в г. Череповец Вологодской области, с помощью метеорологического моделирования указать на возможные источники выброса этих радионуклидов. Благодаря применению разработанной высокочувствительной методики установлено, что минимальная концентрация  $^{133}\text{Xe}$  в воздухе г. Череповец равняется 0,09 мБк/м<sup>3</sup>, а наибольшее значение достигало 2,5 мБк/м<sup>3</sup>, средняя величина равняется 0,79±0,46 мБк/м<sup>3</sup>.

В Санкт-Петербурге, отстоящем от Ленинградской АЭС на 80 км, уровень концентраций  $^{133}\text{Xe}$  существенно выше и в среднем составил 12 мБк/м<sup>3</sup>, варьируя от 0,2 до 180 мБк/м<sup>3</sup>. В отличие от Череповца, здесь иногда регистрируются два радионуклида ксенона, то есть  $^{133}\text{Xe}$  и  $^{135}\text{Xe}$ , причем их отношение варьирует в широких пределах, указывая тем самым на влияние других, помимо Ленинградской АЭС, объектов. При западном переносе воздушных масс Санкт-Петербург оказывается под влиянием шведских и финских АЭС. И хотя концентрация радиоактивных благородных газов в атмосферном воздухе не нормируется и она существенно ниже концентрации радона, представляется необходимым продолжать такой мониторинг.

Это позволит подтверждать для общественности безопасность современной атомной энергетики, особенно с учётом ее дальнейшего развития в ближайшей перспективе.

Среднее значение концентрации радиоактивного криптона  $^{85}\text{Kr}$  в Северо-Западном регионе РФ составило за период 2006–2008 гг.  $1,55 \pm 0,12$  Бк/м<sup>3</sup> с вариациями от 1,32 до 1,79 Бк/м<sup>3</sup>. Среднее значение согласуется с данными для Западной Европы и Японии.

Выполненные исследования показали, что выбросы радионуклидов Хе и  $^{85}\text{Kr}$  могут фиксироваться на значительных удалениях от источника истечения. Наличие в пробе воздуха двух радионуклидов  $^{133}\text{Xe}$  и  $^{135}\text{Xe}$  позволяет оценить расстояние от источника выброса до точки пробоотбора; с помощью имеющихся моделей атмосферного переноса можно рассчитывать концентрацию радионуклидов в момент выброса.

Для целей мониторинга можно использовать пробы криптон-ксенонового концентрата, а также пробы жидкого кислорода. Измерение криптона и ксенона, выделенных из проб жидкого кислорода, позволяет получать данные о содержании радионуклидов в небольшом временном интервале.

Авторы искренне благодарят сотрудников Радиового института им. В. Г. Хлопина А. В. Малышенкова, В. В. Карасева, В. А. Князева, С. И. Малимонову, Е. И. Высторобскую, принимавших активное участие в выполнении данной работы, а также Ю. М. Либермана с сотрудниками Северо-западного управления по гидрометеорологии за проведение расчётов обратных траекторий переноса воздушных масс.

#### Список литературы

1. Радиационная обстановка на территории СССР в 1989 г.: Ежегодник / Под ред. К. П. Махонько. Обнинск: НПО «Тайфун», 1990.
2. Радиационная обстановка на территории России и сопредельных государств в 1991 г.: Ежегодник / Под ред. К. П. Махонько. Обнинск. НПО «Тайфун», 1992.
3. Пахомов С. А., Кривохатский А. С., Соколов И. А. и др. Метод определения содержания криптона-85 в атмосферном воздухе, основанный на использовании установки «Бета-2» // Радиохимия. 1990. Т. 32, вып. 6. С. 100–103.
4. Пахомов С. А., Соколов И.А., Кривохатский А. С. Опыт эксплуатации системы мониторинга криптона-85 на территории СССР // Радиохимия. 1991. Т. 33. вып. 6. С. 131–137.
5. Dubasov Yu. V., Okunev N. S. Krypton and Xenon Monitoring in the Northwest Region of Russia // Pure Appl. Geophys. 2010. Vol. 167. P. 487–498.
6. Справочник нуклидов-3 / Под ред. Т. В. Голашвили, В. П. Чечева, О. О. Патаркина и др. Пекин; М.: Изд-во по атомной энергии. 2004.
7. Hirota M., Nemoto K., Wada A. et al. Spatial and Temporal Variations of Atmospheric  $^{85}\text{Kr}$  Observed During 1995–2001 in Japan: Estimation of Atmospheric  $^{85}\text{Kr}$  Inventory in the Northern Hemisphere // J. Radiat. Res. 2004. Vol. 45. P. 405–414.
8. Smith K., Murray M., Wong J. et al. Krypton-85 and Other Radioactivity Measurements throughout Ireland // Radioprotection. Suppl. 1. 2005. Vol. 40, P. 457-463.
9. Winger K., Feichter J., Kalinovski M. B. et al. A New Compilation of the Atmospheric  $^{85}\text{Kr}$  Inventories from 1945 to 2000 and Its Evaluation in a Global Transport Model // J. Environ. Radioact. 2005. Vol. 80. P.183–215.
10. Радиационная обстановка на территории России и сопредельных государств в 1996 г.: Ежегодник / Под ред. К. П. Махонько. СПб.: Гидрометеиздат, 1998.

11. Bowyer T. et al. Xenon Radionuclides, Atmospheric, Monitoring // Encyclopedia of Environmental Analysis and Remediation / Ed. R. A. Meyers. Wiley, 1998.
12. Finkelstein Y. Fission Product Isotope Ratios as Event Characterization Tools – Part II: Radioxenon Isotopic Activity Ratios // Kerntechnik. 2001. Bd 66, Hf 5–6. S. 229–236.

### **$^{85}\text{Kr}$ и $\text{Xe}$ Radionuclide Concentration in Atmospheric Air of Northwest Region of Russian Federation During 2006–2008**

Yu. V. Dubasov, N. S. Okunev

As a result of 2-year monitoring in Northwest region of the Russian Federation, limits of the concentration of  $\text{Xe}$  and  $^{85}\text{Kr}$  radionuclides in St. Petersburg and Cherepovets (Vologda oblast) are established. The average concentration  $^{85}\text{Kr}$  in Cherepovets during 2006–2008 is  $1.55 \pm 0.12$  mBq/m<sup>3</sup>. This value correlates with data for Western Europe and Japan. The high-sensitivity technique of  $^{133}\text{Xe}$  determination in atmosphere is developed, the minimum detected concentration is 0,008 mBq/m<sup>3</sup>. The measurement technique involving extraction  $\text{Kr}$  and  $\text{Xe}$  from liquid oxygen samples was developed and applied to monitoring noble gas radionuclides in the atmosphere. The  $^{133}\text{Xe}$  concentration in air of Cherepovets varies from 0.09 to 2.5 mBq/m<sup>3</sup>, the average is  $0.79 \pm 0.46$  mBq/m<sup>3</sup>. The  $^{133}\text{Xe}$  concentration in St. Petersburg varied from 0.2 to 180 mBq/m<sup>3</sup>, average  $\sim 12$  mBq/m<sup>3</sup>, median 1.9 mBq/m<sup>3</sup>. In some cases  $^{133}\text{Xe}$  and  $^{135}\text{Xe}$  were detected in air samples. Their ratio varied over a wide range. It is shown that  $\text{Xe}$  and  $^{85}\text{Kr}$  release can be detected at a considerable distance from a release source. The presence in air samples of  $^{133}\text{Xe}$  and  $^{135}\text{Xe}$  allows estimation of the distance from the emission source to the sampling point. It is suggested to use a  $\text{Kr}$ – $\text{Xe}$  concentrate and also liquid oxygen samples for monitoring. Measurement of  $\text{Kr}$  and  $\text{Xe}$  extracted from liquid oxygen samples furnishes data on the radionuclide concentration in a short time period.

## РАЗНОЕ

### Расчёты рециклирования уран-плутониевого оксидного топлива в реакторе БН-1200

Н. П. Кочеров, А. А. Римский-Корсаков, Б. А. Бибичев, В. В. Кожарин

Приведены результаты расчётов нуклидного состава уран-плутониевого оксидного топлива при многократном использовании регенерированного топлива с необходимыми добавлениями обеднённого урана и коммерческого плутония после каждого цикла для компенсации выгорания и поддержания заданной реактивности. Рассмотрены варианты, когда малые актиноиды (МА) остаются в топливе и когда они удаляются в РАО после каждого цикла. Продукты деления удаляются после каждого цикла. Всего рассчитывалось по семь циклов: первый цикл со штатным МОХ-топливом и шесть циклов с регенерированным. Проведены также расчёты для вариантов, когда при переработке добавляется ОЯТ РБМК для снижения содержания делящихся изотопов ниже 3,5 %. При этом после переработки снова добавляется регенерированный плутоний до нужного значения содержания делящихся изотопов в топливе. Приводятся данные о расходе регенерированного плутония и обеднённого урана на каждый цикл и за весь срок службы реактора БН-1200.

#### 1. Выбор прототипа реакторов 4-го поколения на быстрых нейтронах

Стратегия развития атомной энергетики РФ предполагает широкое использование ядерных реакторов на быстрых нейтронах с расширенным воспроизводством вторичного ядерного топлива – плутония – и введением замкнутого топливного цикла.

Единственный действующий сейчас в мире энергетический реактор на быстрых нейтронах – это российский БН-600, работающий с 1980 г. в составе 3-го энергоблока Белоярской АЭС мощностью 600 МВт<sub>эл</sub>. Ведутся работы по продлению срока службы реактора до 45 лет и увеличению выгорания топлива свыше достигнутого 70 МВт·сут/кг.

Следующим этапом в развитии технологии реакторов на быстрых нейтронах является создание реактора БН-800, строительство которого ведется в настоящее время в составе 4-го энергоблока Белоярской АЭС мощностью 880 МВт<sub>эл</sub>.

В отличие от своего прототипа реактор БН-800 предназначен для работы на уран-плутониевом топливе. Это позволит решать на нем такие принципиальные для инновационной атомной энергетики задачи, как технологическое освоение замкнутого ядерного топливного цикла (ЗЯТЦ) с переработкой отработавшего топлива и рециклом актиноидов.

С целью дальнейшего развития технологии быстрых реакторов ведется проектирование усовершенствованного реактора БН-К (К – сокращение от слова коммерческий) для серийного коммерческого строительства. Проработки показали возможность существенного улучшения технико-экономических характеристик энергоблока с реактором БН-К за счёт повышения его единичной мощности и применения новых технических решений.

К настоящему времени выполнены проектные проработки энергоблока с реактором БН-К мощностью от 1200 до 1800 МВт<sub>эл</sub>. С учётом реальной возможности

выбора площадок для размещения АЭС в качестве базового для первой серии коммерческих энергоблоков с реакторами БН рекомендуется энергоблок мощностью 1200 МВт<sub>эл</sub>. Исходя из этих соображений, проект БН-1200 был выбран для проведения расчётов нуклидного состава отработавшего и регенерированного топлива при многократном рециклировании топлива в этом реакторе. Цель этих расчётов – оценка изменения изотопного состава урана, плутония и накопления малых актиноидов по мере рециклирования топлива в реакторе. Эти данные будут использоваться для:

- оценки потоков изотопов урана, плутония и малых актиноидов в ЗЯТЦ реакторов 4 поколения;
- разработки перспективной технологии переработки ОЯТ с высоким удельным содержанием плутония и делящихся нуклидов;
- разработки технологии изготовления регенерированного топлива.

## **2. Расчёт библиотеки эффективных интегральных сечений для спектра нейтронов реактора БН-1200**

Для того чтобы рассчитывать изменение состава топлива реактора в процессе кампании, необходимо знать так называемые эффективные интегральные сечения ядерных реакций, вызываемых нейтронами именно в данном типе реактора, поскольку спектр нейтронов в реакторах различного типа различен. Имея «библиотеку» таких эффективных сечений для спектра нейтронов реактора БН-1200, можно далее использовать хорошо зарекомендовавшие себя комплексы программ ORIGEN2 [1] или AFPA [2] для расчётов накопления продуктов реакций в ядерном топливе.

Для расчёта эффективных сечений, усреднённых по спектру нейтронов реактора БН-1200, использовался комплекс программ PREPRO 2007 [3], полученный из МАГАТЭ, и проектный спектр нейтронов в реакторе БН-1200. С помощью этого комплекса программ было вычислено 200 величин эффективных сечений для 50 изотопов актиноидов от протактиния до берклия. Полученные величины сечений введены в библиотеку сечений программы ORIGEN2 и программы AFPA для расчётов нуклидного состава отработавшего топлива реактора БН-1200.

## **3. Результаты расчёта нуклидного состава топлива при многократном рециклировании (U,Pu)- и (U,Pu,Am,Cm,Np)-топлива в реакторе БН-1200**

### ***3.1. Исходные данные, принятые для расчёта нуклидного состава отработавшего и регенерированного топлива реактора БН-1200***

В первоначальной загрузке в активную зону загружается штатное топливо, которое является исходным топливом при многократном рециклировании. Нуклидный состав топлива:

- штатное топливо состоит из регенерированного плутония, полученного из ОЯТ ВВЭР-1000, и обеднённого урана с обогащением 0,3 % (МОХ-топливо);
- изотопный состав регенерированного плутония:  $^{238}\text{Pu}$  – 2,6 %,  $^{239}\text{Pu}$  – 58,6 %,  $^{240}\text{Pu}$  – 26,4 %,  $^{241}\text{Pu}$  – 5,5 %,  $^{242}\text{Pu}$  – 6,9 %;
- удельное содержание плутония в штатном топливе – 167,21 кг/т тяжёлого металла (т.м.);

- удельное содержание делящихся нуклидов ( $^{235}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$ ) в штатном топливе – 109,38 кг/т т.м.;
- нуклидный состав штатного топлива приведён в табл. 1.

Кампания облучения штатного и регенерированного топлива:

- время облучения топлива в реакторе – 6 лет;
- выгорание топлива – 11 мас.% (110 кг/т исходных тяжёлых металлов);
- время выдержки ОЯТ до изготовления регенерированного топлива и повторной загрузки в реактор – 5 лет.

При последующих загрузках в активную зону загружается смесь (U,Pu)-регенерата (или (U,Pu,Am,Cm,Np)-регенерата), полученного при переработке ОЯТ БН-1200, с регенерированным плутонием и обеднённым ураном (РЕМИКС-топливо). Массы регенерированного плутония и обеднённого урана в регенерированном топливе выбираются из условия, чтобы удельное содержание делящихся нуклидов было таким же, как и в исходном штатном топливе. Предполагается, что в этом случае регенерированное топливо энергетически эквивалентно штатному (длительности кампаний топлива на проектной мощности одинаковые).

Для расчёта нуклидного состава смешанного регенерированного топлива в рамках программы AFPA создан специальный программный модуль, который рассчитывает нуклидный состав регенерированного топлива для двух вариантов переработки ОЯТ:

- в первом варианте при переработке ОЯТ после каждого рецикла извлекаются ПД, МА и в ОЯТ добавляется такая же масса регенерированного плутония и обеднённого урана;
- во втором варианте при переработке ОЯТ после каждого рецикла извлекаются только ПД и в ОЯТ добавляется столько регенерированного плутония и обеднённого урана, сколько извлекается ПД;
- массы добавляемого плутония и обеднённого урана выбираются из условия, чтобы удельное содержание делящихся нуклидов в регенерированном топливе было таким же, как и в исходном штатном (U,Pu)-топливе.

### 3.2. Результаты расчёта нуклидного состава топлива

Расчёты нуклидного состава отработавшего штатного топлива выполнены по программе ORIGEN2 и отработавшего регенерированного топлива по программе AFPA. В расчётах использовали один и тот же набор эффективных сечений. Результаты расчётов нуклидного состава регенерированного и отработавшего регенерированного (U,Pu)- и (U,Pu,Am,Cm,Np)-топлива для шести рециклов топлива в реакторе БН-1200 приведены в табл. 1.

В последней строке табл. 1 приведены значения коэффициента воспроизводства делящихся нуклидов (КВд) при загрузке активной зоны соответственно регенерированным (U,Pu)- и (U,Pu,Am,Cm,Np)-топливом. КВд определен как отношение удельного содержания делящихся нуклидов в выгружаемом и загружаемом топливе. В предпоследней строке этих же таблиц приведены значения коэффициента воспроизводства плутония (КВп).

Таблица 1. Нуклидный состав штатного, регенерированного топлива, отработавшего штатного и отработавшего регенерированного (U,Pu)-топлива при шестикратном рециклировании в реакторе БН-1200, кг/т топлива (при переработке ОЯТ МА удаляются в РАО)

Нуклид	Штатное (U,Pu)-топливо	Отработавшее штатное (U,Pu)-топливо	Регенерированное (U,Pu)-топливо перед 1 рециклом	Отработавшее регенерированное (U,Pu)-топливо после 1 рецикла	Регенерированное (U,Pu)-топливо перед 2 рециклом	Отработавшее регенерированное (U,Pu)-топливо после 2 рецикла	Регенерированное (U,Pu)-топливо перед 3 рециклом	Отработавшее регенерированное (U,Pu)-топливо после 3 рецикла	Регенерированное (U,Pu)-топливо перед 4 рециклом	Отработавшее регенерированное (U,Pu)-топливо после 4 рецикла	Регенерированное (U,Pu)-топливо перед 5 рециклом	Отработавшее регенерированное (U,Pu)-топливо после 5 рецикла	Регенерированное (U,Pu)-топливо перед 6 рециклом	Отработавшее регенерированное (U,Pu)-топливо после 6 рецикла
1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15
<sup>232</sup> U	0,0000	8,9106·10 <sup>-6</sup>	8,9106·10 <sup>-6</sup>	1,2952·10 <sup>-5</sup>	1,2952·10 <sup>-5</sup>	1,4331·10 <sup>-5</sup>	1,4331·10 <sup>-5</sup>	1,4677·10 <sup>-5</sup>	1,4677·10 <sup>-5</sup>	1,4665·10 <sup>-5</sup>	1,4665·10 <sup>-5</sup>	1,4552·10 <sup>-5</sup>	1,4552·10 <sup>-5</sup>	1,4430·10 <sup>-5</sup>
<sup>233</sup> U	0,0000	7,7558·10 <sup>-7</sup>	7,7558·10 <sup>-7</sup>	8,2567·10 <sup>-7</sup>	8,2567·10 <sup>-7</sup>	7,1081·10 <sup>-7</sup>	7,1081·10 <sup>-7</sup>	5,7812·10 <sup>-7</sup>	5,7812·10 <sup>-7</sup>	4,6256·10 <sup>-7</sup>	1,4665·10 <sup>-5</sup>	1,4552·10 <sup>-5</sup>	1,4552·10 <sup>-5</sup>	1,4430·10 <sup>-5</sup>
<sup>234</sup> U	1,9000·10 <sup>-2</sup>	1,5382·10 <sup>-2</sup>	1,5382·10 <sup>-2</sup>	1,2223·10 <sup>-2</sup>	1,2223·10 <sup>-2</sup>	9,6640·10 <sup>-3</sup>	9,6640·10 <sup>-3</sup>	7,6463·10 <sup>-3</sup>	7,6463·10 <sup>-3</sup>	6,0705·10 <sup>-3</sup>	6,0705·10 <sup>-3</sup>	4,8440·10 <sup>-3</sup>	4,8440·10 <sup>-3</sup>	3,8902·10 <sup>-3</sup>
<sup>235</sup> U	2,5000	8,3787·10 <sup>-1</sup>	1,1235	3,7916·10 <sup>-1</sup>	6,6700·10 <sup>-1</sup>	2,2656·10 <sup>-1</sup>	5,1546·10 <sup>-1</sup>	1,7597·10 <sup>-1</sup>	4,6538·10 <sup>-1</sup>	1,5944·10 <sup>-1</sup>	4,4915·10 <sup>-1</sup>	1,5427·10 <sup>-1</sup>	4,4418·10 <sup>-1</sup>	1,5282·10 <sup>-1</sup>
<sup>236</sup> U	0,0000	3,0493·10 <sup>-1</sup>	3,0493·10 <sup>-1</sup>	3,6850·10 <sup>-1</sup>	3,6850·10 <sup>-1</sup>	3,6154·10 <sup>-1</sup>	3,6154·10 <sup>-1</sup>	3,3808·10 <sup>-1</sup>	3,3808·10 <sup>-1</sup>	3,1429·10 <sup>-1</sup>	3,1429·10 <sup>-1</sup>	2,9428·10 <sup>-1</sup>	2,9428·10 <sup>-1</sup>	2,7846·10 <sup>-1</sup>
<sup>238</sup> U	8,2944·10 <sup>2</sup>	7,2753·10 <sup>2</sup>	8,2352·10 <sup>2</sup>	7,2294·10 <sup>2</sup>	8,1920·10 <sup>2</sup>	7,1971·10 <sup>2</sup>	8,1614·10 <sup>2</sup>	7,1745·10 <sup>2</sup>	8,1398·10 <sup>2</sup>	7,1586·10 <sup>2</sup>	8,1248·10 <sup>2</sup>	7,1475·10 <sup>2</sup>	8,1143·10 <sup>2</sup>	7,1398·10 <sup>2</sup>
∑U	8,3196·10 <sup>2</sup>	7,2869·10 <sup>2</sup>	8,2496·10 <sup>2</sup>	7,2370·10 <sup>2</sup>	8,2025·10 <sup>2</sup>	7,2031·10 <sup>2</sup>	8,1703·10 <sup>2</sup>	7,1797·10 <sup>2</sup>	8,1479·10 <sup>2</sup>	7,1634·10 <sup>2</sup>	8,1325·10 <sup>2</sup>	7,1520·10 <sup>2</sup>	8,1217·10 <sup>2</sup>	7,1442·10 <sup>2</sup>
<sup>236</sup> Pu	0,0000	2,3683·10 <sup>-6</sup>	2,3683·10 <sup>-6</sup>	2,5224·10 <sup>-6</sup>	2,5224·10 <sup>-6</sup>	2,5146·10 <sup>-6</sup>	2,5146·10 <sup>-6</sup>	2,4775·10 <sup>-6</sup>	2,4775·10 <sup>-6</sup>	2,4405·10 <sup>-6</sup>	2,4405·10 <sup>-6</sup>	2,4103·10 <sup>-6</sup>	2,4103·10 <sup>-6</sup>	2,3872·10 <sup>-6</sup>
<sup>238</sup> Pu	4,3690	2,5222	3,0548	1,7557	2,2605	1,4461	1,9458	1,3339	1,8328	1,3000	1,7991	1,2948	1,7943	1,2986
<sup>239</sup> Pu	9,8477·10 <sup>1</sup>	8,9531·10 <sup>1</sup>	1,0153·10 <sup>2</sup>	9,0329·10 <sup>1</sup>	1,0171·10 <sup>2</sup>	9,0180·10 <sup>1</sup>	1,0144·10 <sup>2</sup>	8,9937·10 <sup>1</sup>	1,0118·10 <sup>2</sup>	8,9739·10 <sup>1</sup>	1,0099·10 <sup>2</sup>	8,9597·10 <sup>1</sup>	1,0085·10 <sup>2</sup>	8,9497·10 <sup>1</sup>
<sup>240</sup> Pu	4,4365·10 <sup>1</sup>	4,7045·10 <sup>1</sup>	5,2453·10 <sup>1</sup>	5,2720·10 <sup>1</sup>	5,7845·10 <sup>1</sup>	5,6308·10 <sup>1</sup>	6,1382·10 <sup>1</sup>	5,8629·10 <sup>1</sup>	6,3695·10 <sup>1</sup>	6,0143·10 <sup>1</sup>	6,5211·10 <sup>1</sup>	6,1134·10 <sup>1</sup>	6,6206·10 <sup>1</sup>	6,1785·10 <sup>1</sup>
<sup>241</sup> Pu	8,4020	5,5941	6,7207	5,9385	7,0063	6,3654	7,4223	6,6769	7,7323	6,8858	7,9416	7,0233	8,0800	7,1137
<sup>242</sup> Pu	1,1595·10 <sup>1</sup>	9,8638	1,1277·10 <sup>1</sup>	9,5947	1,0934·10 <sup>1</sup>	9,4562	1,0782·10 <sup>1</sup>	9,4390	1,0763·10 <sup>1</sup>	9,4889	1,0813·10 <sup>1</sup>	9,5677	1,0893·10 <sup>1</sup>	9,6532
∑Pu	1,6721·10 <sup>2</sup>	1,5456·10 <sup>2</sup>	1,7504·10 <sup>2</sup>	1,6034·10 <sup>2</sup>	1,7976·10 <sup>2</sup>	1,6376·10 <sup>2</sup>	1,8297·10 <sup>2</sup>	1,6602·10 <sup>2</sup>	1,8520·10 <sup>2</sup>	1,6756·10 <sup>2</sup>	1,8675·10 <sup>2</sup>	1,6862·10 <sup>2</sup>	1,8782·10 <sup>2</sup>	1,6935·10 <sup>2</sup>
<sup>238</sup> Pu+ <sup>240</sup> Pu+ <sup>242</sup> Pu	6,0329·10 <sup>1</sup>	5,9431·10 <sup>1</sup>	6,6785·10 <sup>1</sup>	6,4070·10 <sup>1</sup>	7,1040·10 <sup>1</sup>	6,7210·10 <sup>1</sup>	7,4110·10 <sup>1</sup>	6,9402·10 <sup>1</sup>	7,6291·10 <sup>1</sup>	7,0932·10 <sup>1</sup>	7,7823·10 <sup>1</sup>	7,1997·10 <sup>1</sup>	7,8893·10 <sup>1</sup>	7,2737·10 <sup>1</sup>
<sup>239</sup> Pu+ <sup>241</sup> Pu	1,0688·10 <sup>2</sup>	9,5125·10 <sup>1</sup>	1,0825·10 <sup>2</sup>	9,6268·10 <sup>1</sup>	1,0872·10 <sup>2</sup>	9,6545·10 <sup>1</sup>	1,0886·10 <sup>2</sup>	9,6614·10 <sup>1</sup>	1,0891·10 <sup>2</sup>	9,6625·10 <sup>1</sup>	1,0893·10 <sup>2</sup>	9,6620·10 <sup>1</sup>	1,0893·10 <sup>2</sup>	9,6611·10 <sup>1</sup>
( <sup>239</sup> Pu+ <sup>241</sup> Pu)/ Pu,%	63,9	61,5	61,8	60,0	60,5	59,0	59,5	58,2	58,8	57,7	58,3	57,3	58,0	57,0

Продолжение табл. 1

1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15
<sup>235</sup> U+ <sup>239</sup> Pu+ <sup>241</sup> Pu	1,0938·10 <sup>2</sup>	9,5963·10 <sup>1</sup>	1,0937·10 <sup>2</sup>	9,6647·10 <sup>1</sup>	1,0938·10 <sup>2</sup>	9,6772·10 <sup>1</sup>	1,0938·10 <sup>2</sup>	9,6790·10 <sup>1</sup>	1,0938·10 <sup>2</sup>	9,6784·10 <sup>1</sup>	1,0938·10 <sup>2</sup>	9,6775·10 <sup>1</sup>	1,0937·10 <sup>2</sup>	9,6764·10 <sup>1</sup>
<sup>237</sup> Np	0,0000	3,7724·10 <sup>-1</sup>	0,0000	3,9264·10 <sup>-1</sup>	0,0000	3,9165·10 <sup>-1</sup>	0,0000	3,8688·10 <sup>-1</sup>	0,0000	3,8205·10 <sup>-1</sup>	0,0000	3,7805·10 <sup>-1</sup>	0,0000	3,7496·10 <sup>-1</sup>
<sup>241</sup> Am	8,4020·10 <sup>-1</sup>	3,1529	0,0000	2,9246	0,0000	3,1336	0,0000	3,2972	0,0000	3,4088	0,0000	3,4827	0,0000	3,5313
<sup>242m</sup> Am	0,0000	1,0075·10 <sup>-1</sup>	0,0000	6,4308·10 <sup>-2</sup>	0,0000	6,8365·10 <sup>-2</sup>	0,0000	7,2118·10 <sup>-2</sup>	0,0000	7,4745·10 <sup>-2</sup>	0,0000	7,6488·10 <sup>-2</sup>	0,0000	7,7634·10 <sup>-2</sup>
<sup>242g</sup> Am	0,0000	1,2090·10 <sup>-6</sup>	0,0000	7,7170·10 <sup>-7</sup>	0,0000	8,2039·10 <sup>-7</sup>	0,0000	8,6543·10 <sup>-7</sup>	0,0000	8,9695·10 <sup>-7</sup>	0,0000	9,1787·10 <sup>-7</sup>	0,0000	9,3162·10 <sup>-7</sup>
<sup>243</sup> Am	0,0000	1,7448	0,0000	1,6775	0,0000	1,6332	0,0000	1,6160	0,0000	1,6157	0,0000	1,6238	0,0000	1,6354
<sup>242</sup> Cm	0,0000	2,8962·10 <sup>-4</sup>	0,0000	1,9023·10 <sup>-4</sup>	0,0000	2,0226·10 <sup>-4</sup>	0,0000	2,1327·10 <sup>-4</sup>	0,0000	2,2095·10 <sup>-4</sup>	0,0000	2,2605·10 <sup>-4</sup>	0,0000	2,2940·10 <sup>-4</sup>
<sup>243</sup> Cm	0,0000	8,0666·10 <sup>-3</sup>	0,0000	4,8503·10 <sup>-3</sup>	0,0000	5,1206·10 <sup>-3</sup>	0,0000	5,3787·10 <sup>-3</sup>	0,0000	5,5580·10 <sup>-3</sup>	0,0000	5,6757·10 <sup>-3</sup>	0,0000	5,7525·10 <sup>-3</sup>
<sup>244</sup> Cm	0,0000	2,8137·10 <sup>-1</sup>	0,0000	2,6868·10 <sup>-1</sup>	0,0000	2,5939·10 <sup>-1</sup>	0,0000	2,5501·10 <sup>-1</sup>	0,0000	2,5385·10 <sup>-1</sup>	0,0000	2,5443·10 <sup>-1</sup>	0,0000	2,5579·10 <sup>-1</sup>
<sup>245</sup> Cm	0,0000	2,8965·10 <sup>-2</sup>	0,0000	2,7533·10 <sup>-2</sup>	0,0000	2,6415·10 <sup>-2</sup>	0,0000	2,5844·10 <sup>-2</sup>	0,0000	2,5642·10 <sup>-2</sup>	0,0000	2,5643·10 <sup>-2</sup>	0,0000	2,5744·10 <sup>-2</sup>
МА	8,4020·10 <sup>-1</sup>	5,6944	0,0000	5,3603	0,0000	5,5179	0,0000	5,6586	0,0000	5,7666	0,0000	5,8470	0,0000	5,9068
Актиноиды	1,0000·10 <sup>3</sup>	8,8894·10 <sup>2</sup>	1,0000·10 <sup>3</sup>	8,8940·10 <sup>2</sup>	1,0000·10 <sup>3</sup>	8,8958·10 <sup>2</sup>	1,0000·10 <sup>3</sup>	8,8965·10 <sup>2</sup>	1,0000·10 <sup>3</sup>	8,8966·10 <sup>2</sup>	1,0000·10 <sup>3</sup>	8,8967·10 <sup>2</sup>	1,0000·10 <sup>3</sup>	8,8967·10 <sup>2</sup>
ПД	–	1,1000·10 <sup>2</sup>	–	1,1000·10 <sup>2</sup>	–	1,1000·10 <sup>2</sup>	–	1,1000·10 <sup>2</sup>	–	1,1000·10 <sup>2</sup>	–	1,1000·10 <sup>2</sup>	–	1,1000·10 <sup>2</sup>
Масса добавленного U	–	–	95,210	–	95,946	–	96,300	–	96,470	–	96,570	–	96,635	–
Масса добавленного Pu	–	–	20,484	–	19,414	–	19,218	–	19,189	–	19,196	–	19,212	–
КВп	–	0,924	–	0,916	–	0,911	–	0,907	–	0,905	–	0,903	–	0,901
КВд	–	0,877	–	0,884	–	0,885	–	0,885	–	0,885	–	0,885	–	0,885

Из данных, приведённых в табл. 1, и расчётов для случая, когда МА остаются в топливе, можно сделать следующие выводы:

- содержание плутония в отработавшем регенерированном (U,Pu)-топливе возрастает с увеличением числа рециклов из-за увеличения содержания четных изотопов плутония (табл. 3 и рис. 1 и 2);
- содержание делящихся изотопов плутония в отработавшем регенерированном топливе почти постоянно (изменяется в пределах 96,3–96,6 кг/т топлива);
- качество плутония в ОЯТ (отношение содержания делящихся изотопов плутония к содержанию плутония) немного ухудшается с каждым рециклом топлива (с 60 % после первого рецикла до 57 % после шестого рецикла);
- суммарное содержание делящихся изотопов урана и плутония в отработавшем регенерированном топливе изменяется с 96,6 до 96,7 кг/т по мере рециклирования топлива;
- масса урана и плутония, добавляемая в (U,Pu)-регенерат при изготовлении регенерированного топлива для следующего рецикла, слабо изменяется от рецикла к рециклу и составляет в среднем соответственно 96,2 и 19,4 кг/т регенерированного топлива;
- КВп уменьшается от 0,924 (загрузка активной зоны штатным топливом) до 0,901 по мере рециклирования топлива и составляет в среднем 0,910;
- КВд почти постоянный с первого по шестой рецикл регенерированного топлива и составляет в среднем 0,88.

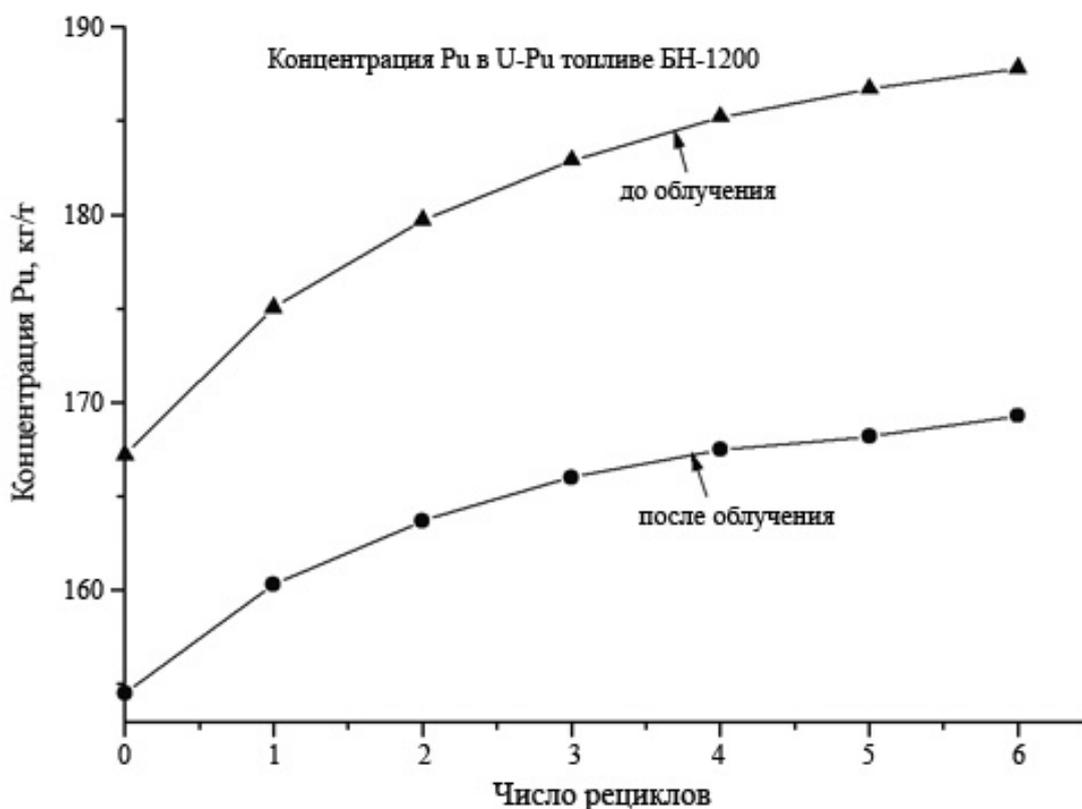


Рис. 1. Зависимость концентрации Pu в штатном и регенерированном топливе до и после облучения в реакторе БН-1200.

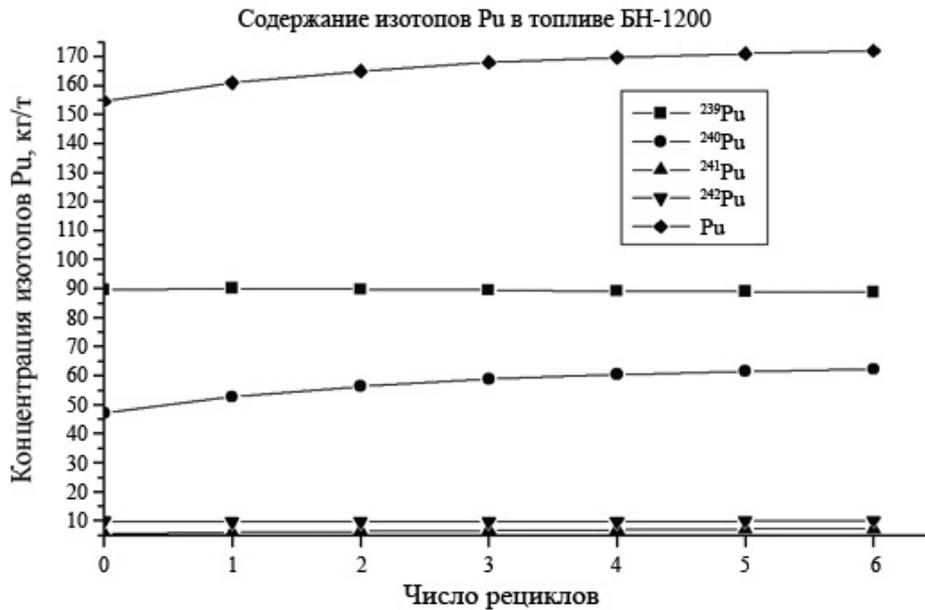


Рис. 2. Изменение количества изотопов плутония в топливе БН-1200 сразу после окончания рециклов.

Содержание изотопов урана и плутония в «свежем» регенерированном и отработавшем топливе с рециклом МА почти такое же, как и в топливе без рецикла МА. После шести рециклов регенерированного топлива содержание плутония в отработавшем топливе без рецикла МА составляет 169,3 кг/т топлива и с рециклом МА – 171,9 кг/т топлива, показатель качества плутония составляет соответственно 57,0 и 55,8 %, удельная масса делящихся нуклидов – 96,8 и 96,1 кг/т топлива, КВп – 0,907 и КВд – 0,885 и 0,878.

Средняя удельная масса МА в выгруженном за семь циклов облучения топливе (один цикл облучения штатного (U,Pu)-топлива и шесть рециклов регенерированного топлива) без рецикла МА составит 5,7 кг/т топлива, и МА направляться в РАО будут при переработке ОЯТ после каждого цикла облучения.

С рециклом МА удельная масса МА в топливе после седьмого рецикла составит 12,7 кг/т топлива, но МА направляться в РАО при переработке ОЯТ будут только один раз после седьмого цикла облучения топлива.

#### 4. Оценка наработки МА в реакторе БН-1200 и потребности в плутонии

Проектные параметры активной зоны БН-1200, использованные для оценки:

- полная загрузка активной зоны штатным и регенерированным (U,Pu)-топливом – 50,4 т;
- удельное содержание плутония в штатном топливе – 167,2 кг/т топлива;
- кампания активной зоны – 60 лет с полной перегрузкой топлива каждые шесть лет.

Рассмотренные варианты переработки ОЯТ заметно отличаются по количеству наработанных МА. В первом варианте, когда при переработке извлекаются нептуний, америций и кюрий, за один цикл облучения штатного (U,Pu)-топлива и шесть рециклов регенерированного (U,Pu)-топлива масса выгруженных МА составит 2 т, которые будут направлены в РАО. Всего за 60 лет работы реактора будет выгружено 504 т ОЯТ, при переработке которых будет направлено в РАО около 2,9 т МА.

Во втором варианте, когда при переработке ОЯТ нептуний, америций и кюрий остаются в топливе, за ту же кампанию топлива образуется МА 12,7 кг/т топлива. При переработке ОЯТ по второму варианту после шести рециклов топлива будет направлено в РАО 0,64 т МА, то есть в 3,1 раза меньше. Всего за 60 лет работы реактора с рециклированием МА будет выгружено около 1,2 т МА (при получении этой оценки предполагалось, что для загрузки активной зоны используются две партии исходного штатного топлива с последующими четырьмя рециклами регенерированного топлива и время облучения и выдержки топлива в каждом рецикле составляет шесть лет).

Таким образом, по количеству РАО второй вариант переработки ОЯТ предпочтительнее (рис. 3), если будет возможна загрузка активной зоны регенерированным (U,Pu,Am,Cm,Np)-топливом по условиям безопасности реакторной установки.

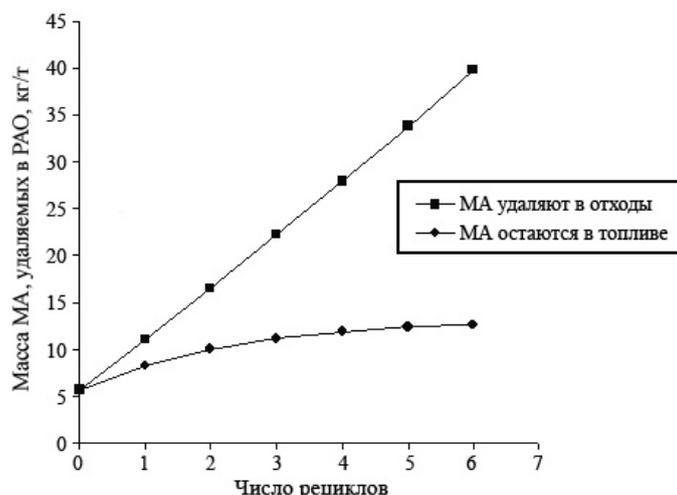


Рис. 3. Суммарная масса МА, поступающих в РАО при переработке ОЯТ, в зависимости от числа рециклов для двух вариантов топливного цикла: с удалением МА в РАО после каждого рецикла и без удаления МА.

Изменение изотопного состава МА при рециклировании показано на рис. 4.

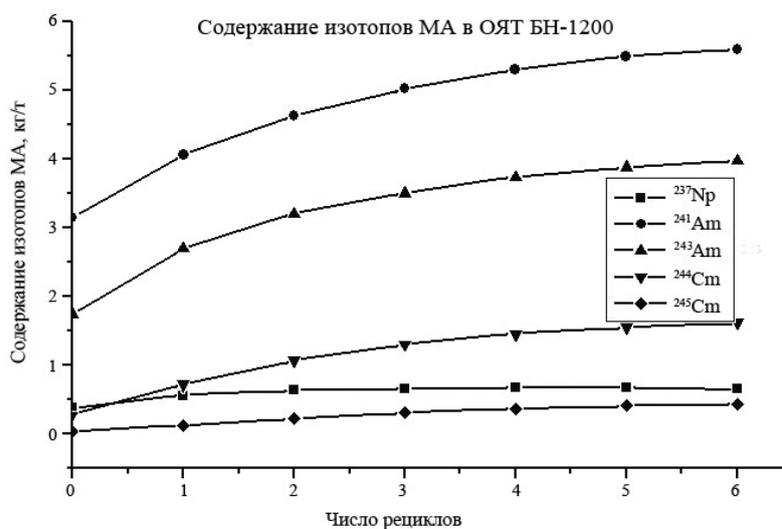


Рис. 4. Изменение элементного и изотопного состава МА при рециклировании топлива реактора БН-1200 в варианте топливного цикла, при котором МА не удаляются в РАО после каждого рецикла.

При изготовлении регенерированного топлива в среднем за один рецикл необходимо добавлять в (U,Pu)-регенерат обеднённого урана 96,2 кг/т топлива и соответственно плутония 19,4 кг/т топлива. Для шести рециклов регенерированного топлива потребуется 5,9 т плутония. Всего за 60 лет работы одного реактора БН-1200 понадобится около 24,7 т регенерированного плутония и из них 8,4 т на первичную загрузку.

Зависимость радиоактивности рециклируемого топлива от времени выдержки после шестого рецикла была вычислена по отдельности для актиноидов и продуктов деления и приведена на рис. 5. Во время облучения часть плутония и МА выгорает, и активность актиноидов в отработавшем регенерированном топливе уже после четырёх лет хранения оказывается ниже значений для исходного топлива. Активность продуктов деления поначалу на порядок превышает активность актиноидов, но уменьшается быстрее. Результаты расчётов показывают, что удельная активность уран-плутониевой фракции вместе с МА при переработке после пяти лет выдержки отработавшего регенерированного топлива будет меньше, чем у исходного регенерированного топлива до облучения. Это связано с высокой радиоактивностью исходного топлива из регенерата, которая достигает  $10^6$  Ки на тонну тяжёлого металла. Для сравнения, активность 1 т свежего уранового оксидного топлива для ВВЭР-440 с обогащением 4 % по  $^{235}\text{U}$  составляет порядка 0,7 Ки/т.

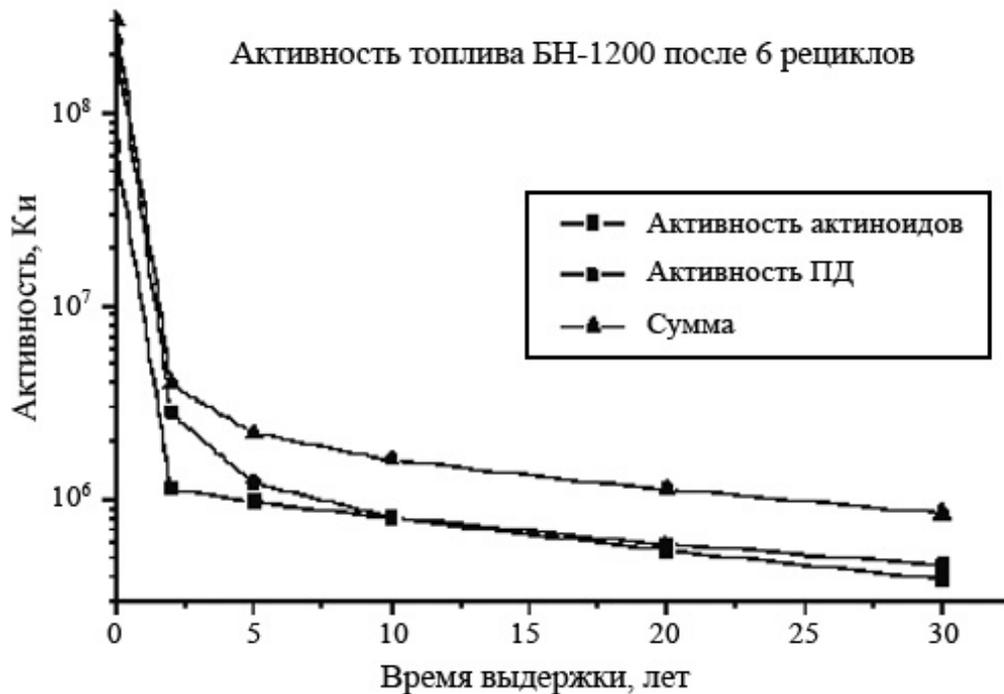


Рис. 5. Изменение активности отработавшего регенерированного топлива БН-1200 после шестого рецикла в зависимости от времени выдержки.

## 5. Расчёт нуклидного состава топлива при многократном рециклировании в реакторе БН-1200 регенерированного (U,Pu)-топлива, полученного при совместной переработке ОЯТ реакторов БН-1200 и РБМК-1000

При переработке ОЯТ в опытно-демонстрационном центре (ОДЦ) по технологии PUREX-процесса удельное содержание делящихся нуклидов в (U,Pu)-регенерате не должно превышать 3,5 % по условиям ядерной безопасности технологических процессов. Вместе с тем, удельное содержание делящихся нуклидов в ОЯТ реактора БН-1200 при загрузке активной зоны штатным топливом составляет 9,6 %. Одним из возможных решений этой проблемы является совместная переработка ОЯТ реакторов БН-1200 и РБМК-1000, так как удельное содержание делящихся нуклидов в ОЯТ РБМК-1000 при проектном выгорании топлива составляет менее 1 %. В связи с этим целесообразно исследовать возможность использования в реакторе БН-1200 регенерированного (U,Pu)-топлива, полученного при совместной переработке ОЯТ реакторов БН-1200 и РБМК-1000.

### 5.1. Исходные данные, принятые для расчёта нуклидного состава отработавшего и регенерированного топлива

В первоначальной загрузке в активную зону загружается штатное топливо, которое является исходным топливом при многократном рециклировании. Штатное топливо состоит из регенерированного плутония, полученного из ОЯТ ВВЭР-1000, и обеднённого урана с обогащением 0,3 %. Нуклидный состав штатного топлива приведен в табл. 1.

Кампания облучения штатного и регенерированного топлива:

- время облучения топлива в реакторе – 6 лет;
- выгорание топлива – 11 мас. % (110 кг/т или 107,5 ГВт·сут/т);
- время выдержки ОЯТ до изготовления регенерированного топлива и повторной загрузки в реактор – 5 лет.

При последующих загрузках в активную зону загружается (U,Pu)-регенерат, полученный при совместной переработке ОЯТ БН-1200 с ОЯТ РБМК-1000 и дообогащённый регенерированным плутонием. Выгорание ОЯТ РБМК-1000 составляет 24 ГВт·сут/т U (исходное обогащение 2,4 %). Время выдержки ОЯТ до изготовления регенерированного топлива – 30 лет. Изотопный состав ОЯТ РБМК-1000 приведён в табл. 2 (расчёт по программе AFPA).

Таблица 2. Нуклидный состав ОЯТ РБМК-1000, исходное обогащение – 2,4 %, выгорание – 24 ГВт·сут/т U, выдержка – 30 лет, кг/т исходного урана

$^{232}\text{U}$	$^{233}\text{U}$	$^{234}\text{U}$	$^{235}\text{U}$	$^{236}\text{U}$	$^{238}\text{U}$	$\Sigma\text{U}$
$1,30 \cdot 10^{-7}$	0,00	0,00	4,66	3,32	$9,6206 \cdot 10^2$	$9,7004 \cdot 10^2$
$^{236}\text{Pu}$	$^{238}\text{Pu}$	$^{239}\text{Pu}$	$^{240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Pu}$	$^{242}\text{Pu}$	$\Sigma\text{Pu}$
$9,45 \cdot 10^{-11}$	$3,69 \cdot 10^{-2}$	2,24	1,79	$1,28 \cdot 10^{-1}$	$3,30 \cdot 10^{-1}$	4,46

Доля ОЯТ БН-1200, используемая для переработки и изготовления смешанного (U,Pu)-топлива, – 30 % и доля ОЯТ РБМК-1000 – 70 %. При таком соотношении масс ОЯТ БН-1200 и ОЯТ РБМК-1000 удельное содержание делящихся нуклидов ( $^{235}\text{U}$ ,  $^{239,241}\text{Pu}$ ) в (U,Pu)-регенерате будет составлять 3,5 %. Следует отметить, что для

соблюдения баланса в этом случае 70 % ОЯТ БН-1200 будет направляться в хранилище ОЯТ без переработки, либо на склады хранения урана и плутония после переработки.

Масса регенерированного плутония, добавляемого в регенерированное топливо, выбирается из условия, чтобы удельное содержание делящихся нуклидов было таким же, как и в исходном штатном топливе (109,4 кг/т). Предполагается, что в этом случае регенерированное топливо энергетически эквивалентно штатному.

Для расчёта нуклидного состава смешанного регенерированного топлива в рамках программы AFPA создан специальный программный модуль, который рассчитывает нуклидный состав регенерированного топлива, исходя из следующих условий:

- при переработке ОЯТ после каждого рецикла извлекаются ПД и МА;
- соотношение масс ОЯТ БН-1200 и ОЯТ РБМК-1000 в (U,Pu)-регенерате составляет 30 и 70 % соответственно;
- масса добавляемого плутония выбирается таким образом, чтобы удельное содержание делящихся нуклидов в регенерированном топливе было таким же, как и в исходном штатном (U,Pu)-топливе.

## **5.2. Результаты расчёта нуклидного состава отработавшего и регенерированного топлива**

Расчёты нуклидного состава отработавшего штатного топлива выполнены по программе ORIGEN2, отработавшего регенерированного топлива – по программе AFPA. В расчётах использовали один и тот же набор эффективных сечений. Результаты расчётов нуклидного состава регенерированного и отработавшего регенерированного (U,Pu)-топлива для шести рециклов топлива в реакторе БН-1200 приведены в табл. 3.

Из данных, приведённых в табл. 3, и расчётов, когда МА остаются в топливе, можно сделать следующие выводы:

- как и в случае отдельной переработки ОЯТ БН-1200, содержание плутония в отработавшем регенерированном (U,Pu)-топливе немного возрастает с увеличением числа рециклов из-за увеличения содержания чётных изотопов плутония;
- содержание делящихся изотопов плутония в отработавшем регенерированном топливе почти постоянно (изменяется в пределах 95,50–95,52 кг/т топлива);
- показатель качества плутония в ОЯТ немного ухудшается с 60,2 % после первого рецикла до 59,9 % после шестого рецикла;
- суммарное содержание делящихся изотопов урана и плутония в отработавшем регенерированном топливе практически постоянно (изменяется от 96,618 до 96,627 кг/т по мере рециклирования топлива);
- масса плутония, добавляемая в (U,Pu)-регенерат при изготовлении регенерированного топлива для следующего рецикла, слабо изменяется от рецикла к рециклу и составляет в среднем 125,5 кг/т регенерированного топлива;
- КВп и КВд почти постоянные с первого по шестой рецикл регенерированного топлива и составляют в среднем соответственно 0,923 и 0,88.

Средняя удельная масса МА в выгруженном за один цикл облучения топливе составит 5,53 кг/т топлива.

Таблица 3. Нуклидный состав штатного, регенерированного топлива, отработавшего штатного и отработавшего регенерированного (U,Pu)-топлива при шестикратном рециклировании в реакторе БН-1200, кг/т топлива (совместная переработка ОЯТ БН и ОЯТ РБМК, МА удаляются в РАО)

Нуклид	Штатное (U,Pu)-топливо	Отработавшее штатное (U,Pu)-топливо	Регенерированное (U,Pu)-топливо перед 1 рециклом	Отработавшее регенерированное (U,Pu)-топливо после 1 рецикла	Регенерированное (U,Pu)-топливо перед 2 рециклом	Отработавшее регенерированное (U,Pu)-топливо после 2 рецикла	Регенерированное (U,Pu)-топливо перед 3 рециклом	Отработавшее регенерированное (U,Pu)-топливо после 3 рецикла	Регенерированное (U,Pu)-топливо перед 4 рециклом	Отработавшее регенерированное (U,Pu)-топливо после 4 рецикла	Регенерированное (U,Pu)-топливо перед 5 рециклом	Отработавшее регенерированное (U,Pu)-топливо после 5 рецикла	Регенерированное (U,Pu)-топливо перед 6 рециклом	Отработавшее регенерированное (U,Pu)-топливо после 6 рецикла
1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15
<sup>232</sup> U	0,0000	8,9106·10 <sup>-6</sup>	2,5514·10 <sup>-6</sup>	1,6399·10 <sup>-5</sup>	4,6254·10 <sup>-6</sup>	1,8570·10 <sup>-5</sup>	5,2264·10 <sup>-6</sup>	1,9086·10 <sup>-5</sup>	5,3695·10 <sup>-6</sup>	1,9201·10 <sup>-5</sup>	5,4014·10 <sup>-6</sup>	1,9226·10 <sup>-5</sup>	5,4083·10 <sup>-6</sup>	1,9232·10 <sup>-5</sup>
<sup>233</sup> U	0,0000	7,7558·10 <sup>-7</sup>	2,3267·10 <sup>-7</sup>	2,7441·10 <sup>-7</sup>	8,2323·10 <sup>-8</sup>	1,0542·10 <sup>-7</sup>	3,1626·10 <sup>-8</sup>	6,2092·10 <sup>-8</sup>	1,8628·10 <sup>-8</sup>	5,1713·10 <sup>-8</sup>	1,5514·10 <sup>-8</sup>	4,9278·10 <sup>-8</sup>	1,4783·10 <sup>-8</sup>	4,8710·10 <sup>-8</sup>
<sup>234</sup> U	1,2000·10 <sup>-2</sup>	1,5382·10 <sup>-2</sup>	4,6145·10 <sup>-3</sup>	4,4666·10 <sup>-3</sup>	1,3400·10 <sup>-3</sup>	1,9510·10 <sup>-3</sup>	5,8529·10 <sup>-4</sup>	1,3684·10 <sup>-3</sup>	4,1051·10 <sup>-4</sup>	1,2332·10 <sup>-3</sup>	3,6996·10 <sup>-4</sup>	1,2018·10 <sup>-3</sup>	3,6055·10 <sup>-4</sup>	1,1945·10 <sup>-3</sup>
<sup>235</sup> U	2,5000	8,3787·10 <sup>-1</sup>	3,2428	1,0925	3,3136	1,1181	3,3207	1,1209	3,3215	1,1212	3,3216	1,1213	3,3216	1,1213
<sup>236</sup> U	0,0000	3,0493·10 <sup>-1</sup>	2,2295	2,0888	2,7237	2,4734	2,8302	2,5554	2,8529	2,5728	2,8577	2,5765	2,8588	2,5773
<sup>238</sup> U	8,2944·10 <sup>2</sup>	7,2753·10 <sup>2</sup>	8,2304·10 <sup>2</sup>	7,2237·10 <sup>2</sup>	8,2168·10 <sup>2</sup>	7,2131·10 <sup>2</sup>	8,2139·10 <sup>2</sup>	7,2109·10 <sup>2</sup>	8,2133·10 <sup>2</sup>	7,2104·10 <sup>2</sup>	8,2132·10 <sup>2</sup>	7,2103·10 <sup>2</sup>	8,2132·10 <sup>2</sup>	7,2103·10 <sup>2</sup>
∑U	8,3195·10 <sup>2</sup>	7,2869·10 <sup>2</sup>	8,2852·10 <sup>2</sup>	7,2556·10 <sup>2</sup>	8,2772·10 <sup>2</sup>	7,2490·10 <sup>2</sup>	8,2754·10 <sup>2</sup>	7,2477·10 <sup>2</sup>	8,2750·10 <sup>2</sup>	7,2474·10 <sup>2</sup>	8,2750·10 <sup>2</sup>	7,2473·10 <sup>2</sup>	8,2750·10 <sup>2</sup>	7,2473·10 <sup>2</sup>
<sup>236</sup> Pu	0,0000	2,3683·10 <sup>-6</sup>	1,3274·10 <sup>-6</sup>	4,0462·10 <sup>-6</sup>	1,7905·10 <sup>-6</sup>	4,4110·10 <sup>-6</sup>	1,8916·10 <sup>-6</sup>	4,4890·10 <sup>-6</sup>	1,9132·10 <sup>-6</sup>	4,5056·10 <sup>-6</sup>	1,9178·10 <sup>-6</sup>	4,5091·10 <sup>-6</sup>	1,9187·10 <sup>-6</sup>	4,5099·10 <sup>-6</sup>
<sup>238</sup> Pu	4,3690	2,5222	2,7345	1,6693	2,4936	1,5898	2,4715	1,5855	2,4704	1,5861	2,4706	1,5864	2,4706	1,5865
<sup>239</sup> Pu	9,8477·10 <sup>1</sup>	8,9531·10 <sup>1</sup>	1,0010·10 <sup>2</sup>	8,9757·10 <sup>1</sup>	9,9991·10 <sup>1</sup>	8,9644·10 <sup>1</sup>	9,9958·10 <sup>1</sup>	8,9617·10 <sup>1</sup>	9,9951·10 <sup>1</sup>	8,9611·10 <sup>1</sup>	9,9950·10 <sup>1</sup>	8,9610·10 <sup>1</sup>	9,9950·10 <sup>1</sup>	8,9610·10 <sup>1</sup>
<sup>240</sup> Pu	4,4365·10 <sup>1</sup>	4,7045·10 <sup>1</sup>	5,1686·10 <sup>1</sup>	5,2042·10 <sup>1</sup>	5,2983·10 <sup>1</sup>	5,2883·10 <sup>1</sup>	5,3215·10 <sup>1</sup>	5,3032·10 <sup>1</sup>	5,3257·10 <sup>1</sup>	5,3058·10 <sup>1</sup>	5,3264·10 <sup>1</sup>	5,3063·10 <sup>1</sup>	5,3266·10 <sup>1</sup>	5,3064·10 <sup>1</sup>
<sup>241</sup> Pu	8,4020	5,5941	6,0360	5,7681	6,0740	5,8646	6,1006	5,8847	6,1082	5,8884	6,1072	5,8891	6,1074	5,8892
<sup>242</sup> Pu	1,1595·10 <sup>1</sup>	9,8638	1,0928·10 <sup>1</sup>	9,2637	1,0743·10 <sup>1</sup>	9,1540	1,0713·10 <sup>1</sup>	9,1381	1,0708·10 <sup>1</sup>	9,1362	1,0708·10 <sup>1</sup>	9,1361	1,0708·10 <sup>1</sup>	9,1361
∑Pu	1,6721·10 <sup>2</sup>	1,5456·10 <sup>2</sup>	1,7148·10 <sup>2</sup>	1,5850·10 <sup>2</sup>	1,7228·10 <sup>2</sup>	1,5914·10 <sup>2</sup>	1,7246·10 <sup>2</sup>	1,5926·10 <sup>2</sup>	1,7249·10 <sup>2</sup>	1,5928·10 <sup>2</sup>	1,7250·10 <sup>2</sup>	1,5928·10 <sup>2</sup>	1,7250·10 <sup>2</sup>	1,5929·10 <sup>2</sup>
<sup>238</sup> Pu+ <sup>240</sup> Pu+ <sup>242</sup> Pu	6,0329·10 <sup>1</sup>	5,9431·10 <sup>1</sup>	6,5349·10 <sup>1</sup>	6,2975·10 <sup>1</sup>	6,6220·10 <sup>1</sup>	6,3627·10 <sup>1</sup>	6,6400·10 <sup>1</sup>	6,3756·10 <sup>1</sup>	6,6435·10 <sup>1</sup>	6,3780·10 <sup>1</sup>	6,6443·10 <sup>1</sup>	6,3786·10 <sup>1</sup>	6,6445·10 <sup>1</sup>	6,3787·10 <sup>1</sup>
<sup>239</sup> Pu+ <sup>241</sup> Pu	1,0688·10 <sup>2</sup>	9,5125·10 <sup>1</sup>	1,0614·10 <sup>2</sup>	9,5525·10 <sup>1</sup>	1,0607·10 <sup>2</sup>	9,5509·10 <sup>1</sup>	1,0606·10 <sup>2</sup>	9,5502·10 <sup>1</sup>	1,0606·10 <sup>2</sup>	9,5499·10 <sup>1</sup>	1,0606·10 <sup>2</sup>	9,5499·10 <sup>1</sup>	1,0606·10 <sup>2</sup>	9,5499·10 <sup>1</sup>
( <sup>239</sup> Pu+ <sup>241</sup> Pu)/ Pu, %	63,92	61,55	61,89	60,27	61,56	60,02	61,50	59,97	61,48	59,96	61,48	59,95	61,48	59,95

Продолжение табл. 3

1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15
<sup>235</sup> U+ <sup>239</sup> Pu+ <sup>241</sup> Pu	1,0938·10 <sup>-2</sup>	9,5963·10 <sup>-1</sup>	1,0938·10 <sup>-2</sup>	9,6618·10 <sup>-1</sup>	1,0938·10 <sup>-2</sup>	9,6627·10 <sup>-1</sup>	1,0938·10 <sup>-2</sup>	9,6623·10 <sup>-1</sup>	1,0938·10 <sup>-2</sup>	9,6621·10 <sup>-1</sup>	1,0938·10 <sup>-2</sup>	9,6620·10 <sup>-1</sup>	1,0938·10 <sup>-2</sup>	9,6621·10 <sup>-1</sup>
<sup>237</sup> Np	0,0000	3,7724·10 <sup>-1</sup>	0,0000	6,3576·10 <sup>-1</sup>	0,0000	6,9171·10 <sup>-1</sup>	0,0000	7,0367·10 <sup>-1</sup>	0,0000	7,0622·10 <sup>-1</sup>	0,0000	7,0676·10 <sup>-1</sup>	0,0000	7,0687·10 <sup>-1</sup>
<sup>241</sup> Am	8,4020·10 <sup>-1</sup>	3,1529	0,0000	2,8137	0,0000	2,8597	0,0000	2,8702	0,0000	2,8722	0,0000	2,8725	0,0000	2,8726
<sup>242m</sup> Am	0,0000	1,0075·10 <sup>-1</sup>	0,0000	6,0504·10 <sup>-2</sup>	0,0000	6,1326·10 <sup>-2</sup>	0,0000	6,1568·10 <sup>-2</sup>	0,0000	6,1616·10 <sup>-2</sup>	0,0000	6,1625·10 <sup>-2</sup>	0,0000	6,1626·10 <sup>-2</sup>
<sup>242g</sup> Am	0,0000	1,2090·10 <sup>-6</sup>	0,0000	7,2606·10 <sup>-7</sup>	0,0000	7,3592·10 <sup>-7</sup>	0,0000	7,3883·10 <sup>-7</sup>	0,0000	7,3940·10 <sup>-7</sup>	0,0000	7,3950·10 <sup>-7</sup>	0,0000	7,3952·10 <sup>-7</sup>
<sup>243</sup> Am	0,0000	1,7448	0,0000	1,6226	0,0000	1,5977	0,0000	1,5937	0,0000	1,5932	0,0000	1,5931	0,0000	1,5931
<sup>242</sup> Cm	0,0000	2,8962·10 <sup>-4</sup>	0,0000	1,7925·10 <sup>-4</sup>	0,0000	1,8170·10 <sup>-4</sup>	0,0000	1,8241·10 <sup>-4</sup>	0,0000	1,8255·10 <sup>-4</sup>	0,0000	1,8258·10 <sup>-4</sup>	0,0000	1,8258·10 <sup>-4</sup>
<sup>243</sup> Cm	0,0000	8,0666·10 <sup>-3</sup>	0,0000	4,5579·10 <sup>-3</sup>	0,0000	4,6115·10 <sup>-3</sup>	0,0000	4,6284·10 <sup>-3</sup>	0,0000	4,6317·10 <sup>-3</sup>	0,0000	4,6323·10 <sup>-3</sup>	0,0000	4,6324·10 <sup>-3</sup>
<sup>244</sup> Cm	0,0000	2,8137·10 <sup>-1</sup>	0,0000	2,6042·10 <sup>-1</sup>	0,0000	2,5585·10 <sup>-1</sup>	0,0000	2,5508·10 <sup>-1</sup>	0,0000	2,5497·10 <sup>-1</sup>	0,0000	2,5496·10 <sup>-1</sup>	0,0000	2,5495·10 <sup>-1</sup>
<sup>245</sup> Cm	0,0000	2,8965·10 <sup>-2</sup>	0,0000	2,6729·10 <sup>-2</sup>	0,0000	2,6219·10 <sup>-2</sup>	0,0000	2,6131·10 <sup>-2</sup>	0,0000	2,6117·10 <sup>-2</sup>	0,0000	2,6116·10 <sup>-2</sup>	0,0000	2,6115·10 <sup>-2</sup>
МА	8,4020·10 <sup>-1</sup>	5,6944	0,0000	5,4245	0,0000	5,4973	0,0000	5,5152	0,0000	5,5191	0,0000	5,5199	0,0000	5,5201
Актиноиды	1,0000·10 <sup>-3</sup>	8,8894·10 <sup>-2</sup>	1,0000·10 <sup>-3</sup>	8,8948·10 <sup>-2</sup>	1,0000·10 <sup>-3</sup>	8,8954·10 <sup>-2</sup>	1,0000·10 <sup>-3</sup>	8,8954·10 <sup>-2</sup>	1,0000·10 <sup>-3</sup>	8,8953·10 <sup>-2</sup>	1,0000·10 <sup>-3</sup>	8,8953·10 <sup>-2</sup>	1,0000·10 <sup>-3</sup>	8,8954·10 <sup>-2</sup>
Масса (U,Pu)- регенерата	–	–	874,235	–	874,53	–	874,535	–	874,535	–	874,533	–	874,533	–
Масса добав- ленного Pu	–	–	125,765	–	125,470	–	125,465	–	125,465	–	125,467	–	125,467	–
ПД	–	110,0	–	110,0	–	110,0	–	110,0	–	110,0	–	110,0	–	110,0
КВп	–	0,924	–	0,924	–	0,924	–	0,923	–	0,923	–	0,923	–	0,923
КВд	–	0,877	–	0,883	–	0,883	–	0,883	–	0,883	–	0,883	–	0,883

## 6. Оценка наработки МА в реакторе БН-1200 и потребности в плутонии при загрузке активной зоны регенерированным (U,Pu)-топливом, полученным при совместной переработке ОЯТ реакторов БН-1200 и РБМК-1000

Проектные параметры активной зоны БН-1200, использованные для оценки:

- полная загрузка активной зоны штатным или регенерированным (U,Pu)-топливом – 50,4 т;
- удельное содержание плутония в штатном топливе – 167,2 кг/т топлива;
- кампания активной зоны – 60 лет с полной перегрузкой топлива каждые 6 лет.

В рассмотренном варианте переработки ОЯТ, когда при переработке извлекаются нептуний, америций и кюрий, за один цикл облучения штатного (U,Pu)-топлива и шесть рециклов регенерированного (U,Pu)-топлива масса выгруженных МА составит почти 2 т, которые будут направлены в РАО при переработке ОЯТ. Всего за 60 лет работы реактора будет выгружено 504 т ОЯТ, при переработке которых будет направлено в РАО около 2,8 т МА.

При изготовлении регенерированного топлива в среднем за один рецикл необходимо добавлять в (U,Pu)-регенерат 125,5 кг плутония на каждую тонну регенерированного топлива или в среднем 6,3 тонны за один рецикл. Всего за 60 лет работы одного реактора БН-1200 понадобится около 67,5 т регенерированного плутония и из них 8,4 т на первичную загрузку.

Сравнительные характеристики активных зон реактора БН-1200 с загрузкой регенерированным (U,Pu)-топливом без рецикла МА (МОХ-топливо) и регенерированным (U,Pu)-топливом, полученным при совместной переработке смешенного ОЯТ БН-1200 и ОЯТ РБМК-1000 (МІХ-топливо), приведены в табл. 4.

Из табл. 4 видно, что все характеристики активной зоны с загрузкой регенерированным МОХ- и МІХ-топливом почти одинаковые, за исключением доли перерабатываемого ОЯТ БН-1200 для изготовления регенерированного топлива, средней массы плутония, добавляемой в (U,Pu)-регенерат при изготовлении одной тонны регенерированного топлива, требуемой массы плутония для одного рецикла регенерированного топлива в активной зоне и требуемой массы плутония за 60 лет работы реактора.

Доля перерабатываемого ОЯТ БН-1200 для изготовления МІХ-топлива составляет 30 %, и 70 % ОЯТ БН-1200 должно поступать в хранилища до или после переработки, чтобы соблюсти баланс выгруженного ОЯТ и регенерированного топлива.

Поэтому масса плутония, добавляемая в (U,Pu)-регенерат при изготовлении одной тонны регенерированного топлива, а также требуемая масса плутония для одного рецикла регенерированного топлива в активной зоне и требуемая масса плутония за 60 лет работы реактора значительно больше в случае МІХ-топлива.

Таблица 4. Сравнительные загрузочные характеристики активной зоны реактора БН-1200 при шестикратном рециклировании МОХ- и МІХ-топлива

Характеристики активной зоны	БН-1200 с МОХ - топливом	БН-1200 с МІХ- топливом
Масса (U,Pu)-топлива в активной зоне, т	50,4	50,4
Доля перерабатываемого ОЯТ БН-1200, %	100	30
Доля используемого (U,Pu)-регенерата, %	100	92,3
Среднее содержание плутония в регенерированном топливе, кг/т	169,3	172,3
Средний показатель качества плутония в ОЯТ, %	58,2	60,0
Средняя масса плутония, добавляемая в (U,Pu)-регенерат при изготовлении одной тонны регенерированного топлива, кг/т	19,4	125,5
Средний коэффициент воспроизводства плутония	0,91	0,92
Средний коэффициент воспроизводства делящихся нуклидов	0,88	0,88
Выгрузка ОЯТ за 60 лет работы реактора, т	504	504
Средняя удельная масса МА в ОЯТ за один рецикл, кг/т	5,7	5,5
Наработка МА за 60 лет работы реактора, т	2,9	2,8
Требуемая масса плутония для одного рецикла регенерированного топлива в активной зоне, т	0,98	6,32
Требуемая масса плутония за 60 лет работы реактора, т	24,7	67,5

#### Список литературы

1. Croff A. G. A User's Manual for the Origen2 Computer Code: Report ORNL-TM-7175. 1980.
2. Колобашкин В. М., Рубцов П. М., Ружанский П. А., Сидоренко В. Д. Радиационные характеристики облученного ядерного топлива. М.: Энергоатомиздат, 1983. С. 51.
3. Cullen D. E. Preprocessing Codes PREPRO2007. Vienna, Austria: IAEA.

#### Recycling of Uranium-Plutonium Oxide Fuels in BN-1200 Fast Reactor

N. P. Kocherov, A. A. Rimski-Korsakov, B. A. Bibichev, V. V. Kozharin

Results of the calculations of nuclide compositions of U–Pu oxide fuels after multiple recycling in BN-1200 reactor are given. Depleted U and regenerated Pu are added after each cycle to compensate for burnup. Fission products are extracted during each treatment. Seven cycles were calculated: the first cycle with the standard fuel and the rest with the regenerated fuel. The case when RBMK reactor spent fuel is added during treatment to decrease the content of fissile nuclides in the mixture down to 3.5% was also considered. Data on the quantities of depleted U and regenerated Pu needed for each cycle and for the whole service life of the reactor are given.

## Содержание

Предисловие. <i>А. А. Римский-Корсаков</i> .....	3
<b>ФИЗИКА ЯДРА И ЯДЕРНЫЕ ДАННЫЕ</b> .....	4
Теоретическое моделирование и программный комплекс MCFx для описания деления ядер в реакциях с нуклонами средних и промежуточных энергий. <i>Г. С. Бойков, В. Т. Ипполитов, С. Г. Явищи, О. Т. Грудзевич, Ю. М. Мартиросян</i> .....	4
Массовые распределения осколков при делении ядер $^{232}\text{Th}$ и $^{238}\text{U}$ нейтронами с энергией 33, 45 и 60 МэВ. <i>И. В. Рыжов, Г. А. Тутин, А. В. Саульский, Н. А. Кудряшев</i> .....	23
Оценка характеристик и схем распада широко применяемых радиоактивных нуклидов. <i>В. П. Чечев</i> .....	41
Сечения ядерных реакций и энергетические зависимости выходов $^{186}\text{Re}$ из вольфрамовых мишеней в области малых энергий (<20 МэВ) протонов. <i>Л. М. Солин, В. А. Яковлев</i> .....	55
<b>ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ МЕТОДИКИ</b> .....	62
Циклотрон МГЦ-20 Радиевого института для производства медицинских радионуклидов (обзор). <i>Л. М. Солин</i> .....	62
Измерительный комплекс для контроля распределения бора в материале чехловых труб методами нейтронной радиографии. <i>С. В. Хлебников, А. А. Воронков, М. В. Сафоненко, В. А. Тренкин, С. Г. Явищи, В. В. Кузьмин, А. В. Лапшин, П. С. Прудников, В. М. Бойко, С. В. Булкин</i> .....	93
Портативный спектрометр нейтронов высоких энергий для активной диагностики радиационной обстановки на борту МКС. <i>С. А. Колычев, Н. В. Ковалев, Н. А. Кудряшев, И. В. Рыжов, А. В. Саульский, А. Н. Смирнов, Г. А. Тутин</i> .....	104
Использование метода PLS для анализа гамма-спектров. <i>Д. Н. Вахтин, М. Д. Зубков, А. В. Евсенин, А. В. Кузнецов, О. И. Осетров, Д. В. Постоварова, П. Д. Юрманов</i> .....	111
Возможности рентгенофлуоресцентного метода анализа в решении задач ГК Росатом и других федеральных ведомств. <i>А. С. Серебряков, В. И. Кудряшов</i> .....	122
Содержание радионуклидов $^{85}\text{Kr}$ и $\text{Xe}$ в атмосферном воздухе Северо-Западного региона России в 2006–2008 гг. <i>Ю. В. Дубасов, Н. С. Окунев</i> . 141	141
<b>РАЗНОЕ</b> .....	168
Расчёты рециклирования уран-плутониевого оксидного топлива в реакторе БН-1200. <i>Н. П. Кочеров, А. А. Римский-Корсаков, Б. А. Бибичев, В. В. Кожарин</i> ...	168

**ТРУДЫ  
РАДИЕВОГО ИНСТИТУТА  
им. В. Г. ХЛОПИНА**

**ТОМ XV**

Издание основано в 1930 году

Учредитель – Радиевый институт им. В. Г. Хлопина  
<http://www.khlopin.ru>

Адрес редакции: ФГУП «НПО “Радиевый институт им. В. Г. Хлопина”»  
194021, С.-Петербург, 2-й Муринский пр., 28  
E-mail: [gonti@khlopin.ru](mailto:gonti@khlopin.ru), [radium@khlopin.ru](mailto:radium@khlopin.ru)  
Тел.: (812) 297-56-74, факс: (812) 297-57-81

Ответственный за выпуск: Л. Г. Царицына  
Компьютерное исполнение: В. Г. Богданов  
Редактор: Г. В. Сидоренко  
Корректор: Г. С. Александрова

Адреса электронной почты и телефоны авторов статей можно найти на сайте института

---

Заказ №	Подписано к печати	Печать офсетная	Формат бумаги 60×84 1/8
Усл. печ. л.	Уч.-изд. л.	Цена договорная	Тираж 150 экз.

---

Отпечатано в типографии ПИЯФ РАН  
188300, Гатчина Ленинградской обл. Орлова роща