

(19)



**Евразийское
патентное
ведомство**

(11) **047897**

(13) **B1**

(12) **ОПИСАНИЕ ИЗОБРЕТЕНИЯ К ЕВРАЗИЙСКОМУ ПАТЕНТУ**

(45) Дата публикации и выдачи патента
2024.09.26

(21) Номер заявки
202490020

(22) Дата подачи заявки
2023.12.14

(51) Int. Cl. **G01T 1/16** (2006.01)
G01N 23/00 (2006.01)
G01V 5/00 (2024.01)

(54) **ИНСТРУМЕНТАЛЬНЫЙ СПОСОБ РАДИОМЕТРИЧЕСКОГО ОПРЕДЕЛЕНИЯ
УДЕЛЬНОЙ РАДИОАКТИВНОСТИ ЗОЛОШЛАКОВЫХ ОТХОДОВ**

(43) **2024.09.25**

(96) **KZ2023/0100 (KZ) 2023.12.14**

(71)(73) Заявитель и патентовладелец:
ПАК ЮРИЙ (KZ)

(56) EA-A1-202293131
EA-A1-202390979
RU-A-97104738
US-C-4118623
SU-A1-1803899

(72) Изобретатель:
**Пак Юрий, Нургужин Марат
Рахмалиевич, Пак Дмитрий
Юрьевич, Тебаева Анар Юлаевна,
Николаенко Никита Андреевич (KZ)**

(57) Изобретение относится к ядерно-физическим способам анализа сложных веществ. Инструментальный способ радиометрического определения удельной радиоактивности золошлаковых отходов, основанный на измерении естественного гамма-излучения урана, тория и калия, отличающийся тем, что на стандартных образцах золошлаковых отходов с известной удельной активностью выбирают оптимальные аналитические гамма-линии этих радионуклидов, находят оптимальную ширину энергетического окна ΔE с точки зрения обеспечения минимальной относительной статистической погрешности, выраженной в долях удельной активности радионуклида. Технический результат изобретения состоит в повышении чувствительности анализа и расширении сферы применения способа за счет выбора оптимальных гамма-линий U, Th и K и оптимальной ширины энергетического окна для каждого радионуклида с точки зрения минимума относительной статистической погрешности, выраженной в долях удельной активности, и определении удельной активности U, Th и K по измеренным интенсивностям в найденных энергетических окнах.

B1

047897

047897

B1

Изобретение относится к ядерно-физическим способам анализа сложных веществ. Оно может быть использовано в процессе переработки в топливно-энергетической и горно-геологических отраслях промышленности.

Угольная теплоэнергетика в основном ориентируется на энергетические угли с низким содержанием радиоактивных элементов. Однако в процессе сжигания слаборадиоактивных углей в золошлаковых отходах (ЗШО) происходит концентрирование радионуклидов. Удельная радиоактивность урана, тория и калия в ЗШО значительно (иногда на порядок) превышает их активность в исходных сжигаемых углях. При этом ЗШО превращаются в квазигеологические месторождения радиоактивных элементов, являющихся источником радиоактивного загрязнения окружающей среды. Золошлаковые отходы и летучая зола, обогащенные радионуклидами, представляют потенциальную опасность для окружающей среды.

Нужен системный мониторинг уровня радиоактивности, нужны высокочувствительные и представительные способы оценки удельной радиоактивности (содержания естественных радионуклидов) в энергетических углях и продуктах их сжигания.

Известны радиометрические способы, основанные на измерении ядерного (альфа-, бета- и гамма-) излучения, испускаемого природными радионуклидами уран-238, торий-232 и калий-40, находящимися в составе энергетических углей (Филиппов Е.М. Ядерная разведка полезных ископаемых. Справочник. Киев. Наукова Думка. 1978, с. 588).

Более представительными являются способы, основанные на измерении естественного гамма-излучения в силу их высокой проникающей способности. Интегрированные данные о содержании радионуклидов (интегральная интенсивность гамма-излучения) дают лишь качественную информацию о наличии и концентрации естественных радионуклидов и характеризуются высокой погрешностью оценки удельной радиоактивности.

Наиболее близким по технической сущности и достигаемому результату является способ, заключающийся в спектрометрии природного гамма-излучения, испускаемого радионуклидами (U^{238} , Th^{232} и K^{40}), находящимися в энергетических углях и золошлаковых отходах (Новиков Г.Ф. Радиометрическая разведка. - Л.: Недра, 1989. С. 407).

Радиоактивные элементы уран-238 и торий-232 являются родоначальниками соответственно уранового и ториевого радиоактивных рядов. В процессе радиоактивного распада этих нуклидов образуется более 10 дочерних изотопов, испускающих альфа-, бета- и гамма-излучения различных энергий.

Основные гамма-линии уранового ряда: 0,295 МэВ; 0,352 МэВ; 0,609 МэВ; 1,76 МэВ; 2,204 МэВ.

Основные гамма-линии ториевого ряда: 0,238 МэВ; 0,538 МэВ; 0,909 МэВ; 0,960 МэВ; 2,62 МэВ.

Естественная радиоактивность калия обусловлена радионуклидом K^{40} , которого в природной смеси содержится 0,012%. В отличие от тяжелых радиоактивных элементов K^{40} испускает моноэнергетическое гамма-излучение с энергией 1,46 МэВ.

Недостатком известного способа является относительно низкая чувствительность анализа, обусловленная выбором не оптимальных энергий естественного гамма-излучения и не оптимальных энергетических окон регистрации излучения.

Задачей изобретения является повышение чувствительности определения удельной радиоактивности (концентрации радионуклидов) ЗШО переменного состава.

Технический результат изобретения состоит в повышении чувствительности радиометрического анализа и расширении сферы применения способа.

Поставленная задача решается следующим образом. В процессе измерения естественного гамма-излучения урана, тория и калия, дополнительно на стандартных образцах золошлаковых отходов (ЗШО) с известной удельной радиоактивностью урана-238, тория-232 и калия-40 измеряют энергетическое распределение естественного гамма-излучения, выбирают оптимальные аналитические гамма-линии урана (1,76 МэВ; 0,609 МэВ), тория (2,62 МэВ; 0,909 МэВ) и калия (1,46 МэВ) с точки зрения максимальной относительной интенсивности и максимальной дифференциации их энергий для каждого радионуклида; в области выбранных энергий гамма-излучения каждого радионуклида (U , Th , K), последовательно меняя ширину энергетического окна ΔE_i , рассчитывают относительную статистическую погрешность измерений V_i и относительную чувствительность S_i к соответствующему радионуклиду, а оптимальную ширину энергетического окна ΔE_i находят такую, при которой обеспечивается минимальная величина относительной статистической погрешности, выраженной в долях удельной активности радионуклида ($V_i/S_i = \min$); в найденных оптимальных энергетических окнах $\Delta E_1(U)$, $\Delta E_2(U)$, $\Delta E_1(Th)$, $\Delta E_2(Th)$ и $\Delta E(K)$ измеряют соответственно интенсивности естественного гамма-излучения урана $N_1(U)$, $N_2(U)$, тория $N_1(Th)$, $N_2(Th)$ и калия $N(K)$, а удельную радиоактивность урана, тория и калия определяют по измеренным в найденных энергетических окнах интенсивностям $N_1(U)$, $N_2(U)$, $N_1(Th)$, $N_2(Th)$ и $N(K)$ с учетом поправочных коэффициентов, характеризующих интенсивность гамма-излучения от единичных удельных радиоактивностей U , Th , K в соответствующих энергетических окнах.

Спектрально-энергетическое распределение естественного гамма-излучения радионуклидов (U , Th , K) представляет собой сложный полиэнергетический спектр, включающий множество гамма-линий урана и тория, начиная с 0,238 МэВ до 2,62 МэВ. Ввиду сложности аппаратной функции гамма-

спектрометров с конечным энергетическим разрешением характерные гамма-линии урана и тория выделяются на фоне непрерывного комптоновского распределения более высокоэнергетического гамма-излучения тория (2,62 МэВ) и урана (1,764 МэВ). Это актуализирует научно-обоснованный подход к выбору аналитических гамма-линий урана и тория (энергий гамма-излучения этих нуклидов) и ширины энергетического окна ΔE в области выбранных гамма-линий. В табл. 1 даны основные характеристики гамма-линий уранового и ториевого радиоактивных рядов.

Таблица 1

Радиоактивный ряд	Гамма-линии, МэВ	Выход гамма-квантов, %	Относительная интенсивность, %
Урановый	0,295	21,5	3,37
	0,352	43,0	6,09
	0,609	53,5	7,36
	1,764	19,0	17,86
	2,204	6,0	7,46
Ториевый	0,238	46,5	4,83
	0,583	30,0	7,64
	0,909	25,0	9,89
	0,960	20,0	8,38
	2,62	35,5	40,09

На стандартных образцах ЗШО с известной удельной активностью (содержанием радионуклидов) измеряют энергетические спектры естественного гамма-излучения. Аналитические гамма-линии урана (1,76 МэВ и 0,609 МэВ), тория (2,62 МэВ и 0,909 МэВ) выбирают исходя из требования обеспечения максимальной относительной интенсивности (произведение выхода гамма-квантов на энергию) и максимальной дифференциации энергий. Для устранения влияния вещества состава (эффективного атомного номера ЗШО) необходимо измерять интенсивность гамма-излучения с энергией выше примерно 0,5 МэВ. Выбранные с учетом указанных требований аналитические гамма-линии урана и тория позволяют получить интегрированную и представительную количественную информацию об этих радионуклидах.

Путем обработки измеренных спектров в области выбранных энергий гамма-излучения урана (1,76 МэВ и 0,609 МэВ) последовательно меняют ширину энергетического окна ΔE_i , рассчитывают относительную статистическую погрешность измерений V_i и относительную чувствительность S_i к урану, а оптимальную ширину энергетического окна $\Delta E_1(U)$, $\Delta E_2(U)$ находят такую, при которой обеспечивается минимальная величина относительной статистической погрешности, выраженной в долях удельной радиоактивности урана ($V_i/S_i=\min$).

Аналогичным образом (по минимуму величины V_i/S_i) находят ширину энергетического окна $\Delta E_1(Th)$, $\Delta E_2(Th)$ в области выбранных энергий гамма-излучения тория (2,62 МэВ и 0,909 МэВ) и ширину энергетического окна $\Delta E(K)$ в области энергии гамма-излучения калия -40 (1,46 МэВ).

Такой методический подход к выбору оптимальных энергетических окон позволяет повысить чувствительность определения удельной активности урана, тория и калия.

Существенным отличием изобретения от прототипа является то, что дополнительно на стандартных образцах ЗШО с известными удельными радиоактивностями U^{238} , Th^{232} и K^{40} измеряют энергетическое распределение естественного гамма-излучения, выбирают оптимальные аналитические гамма-линии урана (1,76 МэВ; 0,609 МэВ), тория (2,62 МэВ; 0,909 МэВ) и калия (1,46 МэВ) с точки зрения максимальной относительной интенсивности и максимальной дифференциации их энергий для каждого радионуклида; в области выбранных энергий гамма-излучения каждого радионуклида (U, Th, K) последовательно меняя ширину энергетического окна ΔE_i , рассчитывают относительную статистическую погрешность измерений V_i и относительную чувствительность S_i к соответствующему радионуклиду, а оптимальную ширину энергетического окна ΔE_i , находят такую, при которой обеспечивается минимальная величина относительной статистической погрешности, выраженной в долях удельной активности радионуклида ($V_i/S_i=\min$); в найденных оптимальных энергетических окнах $\Delta E_1(U)$, $\Delta E_2(U)$, $\Delta E_1(Th)$, $\Delta E_2(Th)$ и $\Delta E(K)$ измеряют соответственно интенсивности естественного гамма-излучения урана $N_1(U)$, $N_2(U)$, тория $N_1(Th)$, $N_2(Th)$ и калия $N(K)$, а удельную радиоактивность урана, тория и калия определяют по измеренным в найденных энергетических окнах интенсивностям $N_1(U)$, $N_2(U)$, $N_1(Th)$, $N_2(Th)$ и $N(K)$ с учетом поправочных коэффициентов, характеризующих интенсивность гамма-излучения от единичных удельных радиоактивностей U, Th, K в соответствующих энергетических окнах.

Предлагаемый способ радиометрического определения удельной радиоактивности ЗШО апробирован на золошлаковых отходах Карагандинской ТЭЦ. Анализируемый сыпучий материал размещался в цилиндрической кювете диаметром и высотой 70 см. Геометрия измерений и выбранные размеры анализируемых ЗШО обеспечивали максимальную эффективность регистрации естественного гамма-излучения гамма-спектрометром на основе сцинтилляционного детектора 80×80мм и многоканального анализатора АИ-1024.

Оптимальные значения ширины энергетического окна ΔE в области выбранных аналитических

гамма-линий U, Th и K, найденные с точки зрения минимума величины отношения ($V_i/S_i=\min$), составили: $\Delta E_1(U)=1,65-1,96$ МэВ; $\Delta E_2(U)=0,52-0,70$ МэВ; $\Delta E_1(Th)=2,39-2,85$ МэВ; $\Delta E_2(Th)=0,80-1,03$ МэВ; $\Delta E(K)=1,18-1,52$ МэВ.

В процессе апробации способа радиометрического определения удельной радиоактивности золошлаковых отходов было проанализировано 13 проб. Удельную радиоактивность урана, тория и калия определяли по измеренным в найденных энергетических окнах $\Delta E_1(U)$, $\Delta E_2(U)$, $\Delta E_1(Th)$, $\Delta E_2(Th)$ и $\Delta E(K)$ интенсивностям $N_1(U)$, $N_2(U)$, $N_1(Th)$, $N_2(Th)$ и $N(K)$ с учетом поправочных коэффициентов, характеризующих интенсивность гамма-излучения от единичных удельных активностей в соответствующих энергетических окнах. Поправочные коэффициенты находились по данным измерений стандартных образцов с известными концентрациями радионуклидов.

В табл. 2 даны сопоставительные данные о чувствительности предлагаемого способа и известного (прототипа).

Таблица 2

Способ	Относительная чувствительность, проц. /10 Бк
Прототип	6,7
Предлагаемый	9,7

Предлагаемый инструментальный способ радиометрического определения удельной радиоактивности золошлаковых отходов в сравнении с известным способом обладает повышенной чувствительностью анализа, что существенно расширяет сферу применения способа.

Данное исследование финансируется Комитетом науки Министерства науки и высшего образования Республики Казахстан (грант № AP23485184).

ФОРМУЛА ИЗОБРЕТЕНИЯ

Инструментальный способ радиометрического определения удельной радиоактивности золошлаковых отходов, основанный на измерении естественного гамма-излучения, испускаемого природными радиоактивными элементами, отличающийся тем, что дополнительно на стандартных образцах золошлаковых отходов (ЗШО) с известной удельной радиоактивностью урана-238, тория-232 и калия-40 измеряют энергетическое распределение естественного гамма-излучения, выбирают оптимальные аналитические гамма-линии урана, а именно 1,76 МэВ; 0,609 МэВ, тория, а именно 2,62 МэВ; 0,909 МэВ и калия - 1,46 МэВ с точки зрения максимальной относительной интенсивности и максимальной дифференциации их энергий для каждого радионуклида; в области выбранных энергий гамма-излучения каждого упомянутого радионуклида, а именно U, Th, K последовательно меняя ширину энергетического окна ΔE_i , рассчитывают относительную статистическую погрешность измерений V_i и относительную чувствительность S_i к соответствующему радионуклиду, а оптимальную ширину энергетического окна ΔE_i находят такую, при которой обеспечивается минимальная величина относительной статистической погрешности, выраженной в долях удельной активности радионуклида ($V_i/S_i=\min$); в найденных оптимальных энергетических окнах $\Delta E_1(U)$, $\Delta E_2(U)$, $\Delta E_1(Th)$, $\Delta E_2(Th)$ и $\Delta E(K)$ измеряют соответственно интенсивности естественного гамма-излучения урана $N_1(U)$, $N_2(U)$, тория $N_1(Th)$, $N_2(Th)$ и калия $N(K)$, а удельную радиоактивность урана, тория и калия определяют по измеренным в найденных энергетических окнах интенсивностям $N_1(U)$, $N_2(U)$, $N_1(Th)$, $N_2(Th)$ и $N(K)$ с учетом поправочных коэффициентов, характеризующих интенсивность гамма-излучения от единичных удельных радиоактивностей U, Th, K в соответствующих энергетических окнах.

