

УДК 539.17; 539.33; 539.123; 539.173

546.799.4; 621.039.536

Пашкуал Антониу Муссуку Наполеау

**РАННЕЕ ОПРЕДЕЛЕНИЕ СОДЕРЖАНИЯ РАДИОНУКЛИДОВ ^{90}Sr ,
 ^{131}I , $^{238-242}\text{Pu}$ В СВЕЖИХ АВАРИЙНЫХ ЯДЕРНЫХ ВЫБРОСАХ**

01.04.16 – Физика ядра и элементарных частиц

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени кандидата
физико-математических наук

Минск – 2000

Работа выполнена в лаборатории ядерной спектроскопии Института физики
Национальной академии наук Беларуси.

Научные руководители: Доктор физ.-мат. наук, ст. н.с.
Рудак Эдуард Аркадьевич
Доктор тех. наук, профессор
Величко Борис Афанасьевич

Официальные оппоненты: Доктор физ.-мат. наук, профессор
Кувшинов Вячеслав Иванович;
Кандидат физ.-мат. наук
Гурачевский Валерий Леонидович.

Оппонирующая организация – Российский научный центр «Курчатовский
институт»

Защита состоится 12 апреля 2000 года в 12¹⁵ часов на заседании совета по
защите диссертации К 02.01.01 при Белорусском государственном
университете (220050, Минск, пр. Ф.Скорины, 4, Белгосунiversитет, ауд.206,
тел. 226-55-41).

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке Белгосунiversитета

Автореферат разослан « 09 » марта 2000 года.

Ученый секретарь совета
по защите диссертации
кандидат физ.-мат. наук



И.П. Прокопович

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность темы диссертации

Как известно, при аварии на Чернобыльской АЭС примерно 70% всех радиоактивных выбросов выпало на территорию Республики Беларусь. Возникло новое направление в различных областях науки и техники, объединяющим началом которого является ликвидация последствий этой аварии.

Один из наиболее важных в практическом отношении аспектов данной проблемы – радиометрирование и оценка дозовых нагрузок от наиболее опасных для здоровья человека нуклидов: ^{90}Sr , ^{131}I , $^{238-242}\text{Pu}$.

Нуклид ^{90}Sr аккумулируется в костных тканях кроветворных органов и вызывает хроническое заболевание человека. ^{131}I практически определяет дозовую нагрузку в первые дни после выпадения радиоактивных реакторных выбросов. Радионуклиды плутония, как и другие актиноиды, являются в основном α -излучающими, что и определяет их особую опасность.

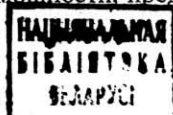
β -излучающий нуклид ^{241}Pu для здоровья человека менее опасен, чем α -излучающие нуклиды $^{238,239,240,242}\text{Pu}$. Однако он обладает сравнительно малым периодом полураспада ($T_{1/2} = 13.2$ лет) и распадается в токсичный α -излучающий нуклид ^{241}Am . В перспективе за счет β -распада ^{241}Pu активность α -излучающих нуклидов должна утроиться по сравнению с уровнем α -активности на момент аварии.

Радиометрический анализ данных и других нуклидов в свежих аварийных ядерных выбросах реактора РБМК ЧАЭС показал, что неотъемлемой частью таких исследований должна быть оценка наработки масс и активностей осколков деления и продуктов активации ядер топлива в активной зоне на момент аварии.

Радионуклидный состав топлива аварийного реактора РБМК ЧАЭС к моменту сброса мощности рассчитывали численными методами во многих работах. Схема расчетов примерно одинакова и состояла из двух этапов. На первом этапе моделировали выгорание топлива в течение кампании реактора (интервал глубин выгорания топлива $W = 0 \div 18.2$ МВт \times сут/кг) и рассчитывали удельную массу нуклидов $m_{уд}$ в зависимости от глубины выгорания.

На втором этапе на основании глубины выгорания рассчитывали массу наработанных нуклидов для каждой из 1659 тепловыделяющихборок (ТВС), суммировали и таким образом получали данные для всей активной зоны.

К сожалению, наработка нуклидов в активной зоне реактора является сложным физическим процессом, зависящим от большого числа контролируемых и неконтролируемых факторов. Вследствие этого численные расчеты такого типа сложны, громоздки, дорогостоящи, недоступны для многих исследователей. Поэтому целесообразно разработать более простую методику оценки масс нуклидов в активной зоне реактора. Она может быть полезной, например, в радиоэкологии. Такая упрощенная методика оценки, основанная на предположении о работе реактора на постоянной мощности, предлагается в настоящей диссертационной работе.



Методика отличается от строгих численных расчетов тем, что на первом этапе вместо вычисления $m_{уд}$ используются результаты наиболее корректных численных расчетов, выполненных для аварийного реактора РБМК ЧАЭС в МИФИ. На втором же этапе суммирование наработанной массы нуклидов по всем ТВС заменяется статистической обработкой $m_{уд}$.

Данный результат является основным физическим результатом, полученным в диссертационной работе. Сам по себе он носит общий характер. Однако на его основе могут быть получены другие результаты, имеющие непосредственный выход в практику:

1. Для любого реактора на тепловых нейтронах, работающего в режиме постоянной мощности, мы можем легко оценить массы интересующих нас нуклидов в активной зоне реактора.

2. Для многих важных для работы реактора нуклидов (ядра топлива, шлаки, отравители) и важных в радиозоологическом отношении нуклидов (нуклиды, определяющие основную дозовую нагрузку в случае аварии; долгоживущие радионуклиды-загрязнители) могут быть получены простые аналитические формулы для $m_{уд}$ и соответственно полных наработанных масс.

Последнее обстоятельство было использовано в настоящей диссертационной работе для решения конкретной радиозоологической проблемы - раннего определения содержания ^{90}Sr , ^{131}I , $^{238-242}\text{Pu}$ в свежих аварийных реакторных выбросах и, в частности, чернобыльского происхождения.

В принципе это три разные задачи. Однако решались они по одной схеме. Сначала делалась теоретическая проработка вопроса, а затем предлагался конкретный экспериментальный метод решения задачи.

Помимо определения содержания радионуклидов в ядерных выбросах, необходимо проводить также и очистку окружающей среды от радиоактивных загрязнителей. Особенно это касается водных сред, поскольку основная масса радионуклидов и других ксенобиотиков попадает в организм человека с водой и пищей.

В связи с этим в настоящей диссертационной работе исследовались сорбционные свойства органических био- и фитосорбентов (производство Российского университета дружбы народов, г. Москва) по отношению к тяжелым металлам, в том числе и радионуклидам. Особое внимание уделялось сорбции ^{90}Sr .

Указанные сорбенты обладают сорбционными характеристиками на уровне лучших мировых образцов, произведены по экологически чистой технологии из отходов сельского хозяйства, пищевой и лесообрабатывающей промышленности. Вследствие низкой зольности (порядка 3 - 5%) значительно упрощается проблема захоронения отработанных сорбентов.

Связь работы с научными программами и темами

Диссертационная работа выполнялась в рамках темы «Кварк-13» республиканской программы фундаментальных исследований «Кварк» (1996 - 2000 гг.), темы «Исследование структуры вещества с помощью квантового излуче-

ния радионуклидов», утвержденной Министерством образования и науки Республики Беларусь, госрегистрации № 19961672.

Цель и задачи исследования

Настоящая диссертационная работа является многоплановой. Основные задачи, стоящие перед диссертантом, можно сформулировать следующим образом:

1. Исследовать характер наработки и упростить методику расчета масс наиболее значимых в радиозоологическом отношении радионуклидов в активной зоне реактора на тепловых нейтронах, в том числе и для аварийного реактора РБМК ЧАЭС.

2. Дать теоретическое обоснование возможности определения содержания ^{90}Sr , ^{131}I , $^{238-242}\text{Pu}$ в свежих аварийных реакторных выбросах и предложить конкретные экспериментальные методы решения этих задач.

3. Исследовать сорбционные характеристики ряда низкозольных био- и фитосорбентов, предназначенных для очистки водных сред и водных растворов от тяжелых металлов, в том числе и радионуклидов.

Объект и предмет исследования

Объектом исследования являются новые методы определения содержания ^{90}Sr , ^{131}I , $^{238,239,240,241,242}\text{Pu}$ в свежих аварийных реакторных выбросах и сорбенты органического происхождения, предназначенные для удаления радионуклидов и других вредных в экологическом отношении веществ из водных сред.

Предметом исследования являются зависимости наработки удельных масс осколков деления и продуктов активации ядер топлива от глубины выгорания топлива для реактора типа РБМК, а также сорбционные характеристики сорбентов органического происхождения.

Методы проведения исследования

Обоснование новых возможностей определения содержания ^{90}Sr , ^{131}I , $^{238,239,240,241,242}\text{Pu}$ в свежих аварийных реакторных выбросах проводилось теоретически с использованием результатов численных расчетов других авторов.

Исследование сорбционных характеристик сорбентов органического происхождения проводилось по общепринятой для подобных экспериментов методике.

Научная новизна полученных результатов

Все полученные в диссертационной работе результаты являются новыми:

1. Новым является метод оценки масс наработанных нуклидов в активной зоне реактора на тепловых нейтронах, основанный на статистической обработке удельных масс $m_{уд}$ и заменяющий операцию суммирования по отдельным тепловыделяющим сборкам (ТВС).

2. Новым является предложение использовать отношения активностей $A(^{89}\text{Sr})A(^{106}\text{Ru})/A(^{90}\text{Sr})A(^{103}\text{Ru})$ и $A(^{89}\text{Sr})A(^{134}\text{Cs})/A(^{90}\text{Sr})A(^{137}\text{Cs})$ для экспрессного обнаружения ^{90}Sr в свежих аварийных реакторных выбросах.

3. Новым является предложение использовать отношения β -активности ^{241}Pu к суммарной α -активности $^{238,239,240,242}\text{Pu}$ для оценки полной и парциальных α -активностей $^{238,239,240,242}\text{Pu}$.

4. Новым является метод реконструкции экспозиционной дозы от ^{131}I (для соединения CsI) по экспериментальным данным γ -спектрометрии $^{134,137}\text{Cs}$ и теоретическим оценкам масс $^{133,134,137}\text{Cs}$.

5. Новыми являются органические сорбенты производства Российского университета дружбы народов (г. Москва), предназначенные для очистки водных сред и водных растворов от тяжелых металлов, в том числе и радионуклидов.

Практическая значимость полученных результатов

Полученные в диссертационной работе результаты могут найти следующее применение:

1. Значительно упрощен метод оценки наработанных масс нуклидов в активной зоне реактора на тепловых нейтронах, что позволяет постоянно иметь сведения о содержании интересующих нас нуклидов в активной зоне работающего реактора.

2. Разработан общедоступный, основанный на традиционной β -радиометрии и γ -спектрометрии метод раннего (в течение нескольких часов после выпадения осадков) обнаружения особо опасного радионуклида ^{90}Sr в свежих аварийных реакторных выбросах. При этом уровень обнаружения ^{90}Sr не хуже 0.1 Бк.

3. Предложен метод оценки полной и парциальных α -активностей изотопов плутония $^{238,239,240,242}\text{Pu}$ в аварийных ядерных выбросах реактора на тепловых нейтронах типа РБМК, основанный на экспериментальной β -радиометрии ^{241}Pu и теоретической оценке отношения β -активности ^{241}Pu к суммарной α -активности $^{238,239,240,242}\text{Pu}$. Метод позволяет снизить уровень обнаружения полной α -активности до ~ 0.02 Бк.

4. Реконструкция экспозиционной дозы от ^{131}I помогает уточнить дозовую нагрузку на население в первые дни после выпадения радиоактивных черномыльских осадков.

5. Исследованные сорбенты органического происхождения рекомендованы на ПО «МАЯК» для доочистки водных растворов от радионуклидов и других вредных в экологическом отношении веществ.

Основные защищаемые положения

На защиту выносятся следующие научные положения:

1. Метод оценки наработанных масс нуклидов в активной зоне реактора на тепловых нейтронах, основанный на усреднении удельных масс $m_{уд}$ по вы-

горанию с помощью распределения Пуассона, или Гаусса при известной средней по активной зоне глубине выгорания.

2. Способ экспрессного (в течение нескольких часов после выпадения осадков) определения ^{90}Sr в свежих аварийных реакторных выбросах.

3. Способ оценки содержания α -излучающих изотопов плутония $^{238,239,240,242}\text{Pu}$ в аварийных реакторных выбросах, основанный на β -радиометрии ^{241}Pu .

4. Методика реконструкции экспозиционной дозы от ^{131}I , находившегося в виде соединения CsI в аварийных реакторных выбросах, основанная на γ -спектрометрии $^{134,137}\text{Cs}$ и теоретической оценке масс ^{131}I и $^{133,134,137}\text{Cs}$.

5. Результаты исследования сорбционных характеристик ряда био- и фитосорбентов, позволяющие рекомендовать их для доочистки водных сред и водных растворов от радионуклидов и других опасных в экологическом отношении веществ.

Личный вклад соискателя

Все теоретические исследования в диссертационной работе проведены самим диссертантом под руководством его научного руководителя доктора физ.-мат. наук Э.А.Рудака.

В частности, им была проделана следующая работа:

- проведен анализ имеющихся экспериментальных данных по загрязнению окружающей среды радионуклидами вследствие аварии на Чернобыльской АЭС;

- сделан обзор работ по оценке масс наработанных нуклидов в активной зоне аварийного реактора РБМК ЧАЭС на момент аварии;

- проведен анализ зависимостей удельных масс наработанных нуклидов от глубины выгорания топлива для реактора типа РБМК;

- при разработке феноменологической модели для оценки масс осколков деления в активной зоне реактора РБМК проделаны все необходимые численные расчеты;

- проведены расчеты зависимости отношений $A(^{89}\text{Sr})A(^{106}\text{Ru})/A(^{90}\text{Sr})A(^{103}\text{Ru})$ и $A(^{89}\text{Sr})A(^{134}\text{Cs})/A(^{90}\text{Sr})A(^{137}\text{Cs})$ от глубины выгорания топлива;

- проведены расчеты зависимости отношения β -активности ^{241}Pu к суммарной α -активности $^{238,239,240,242}\text{Pu}$ от глубины выгорания топлива;

- проведена оценка активности ^{131}I , находившегося в виде соединения CsI , в свежих аварийных реакторных выбросах.

Исследования сорбционных характеристик органических сорбентов диссертант проводил на рентгенофлуоресцентном спектрометре «Спектроскан» лично при техническом содействии со стороны старших научных сотрудников О.Н.Билана и С.В.Заблоцкого.

Апробация результатов диссертации

Полученные в диссертационной работе результаты, связанные с оценкой наработки нуклидов в активной зоне реактора на тепловых нейтронах типа РБМК, в значительной степени основаны на результатах численных аналогичных расчетов, проведенных в МИФИ в рамках «Комплексной экспедиции» ИАЭ им. И.В.Курчатова. Считается, что результаты данных расчетов являются наиболее корректными по сравнению с результатами других аналогичных работ.

Результаты настоящих оценок масс и активностей нуклидов, необходимых для определения содержания ^{90}Sr , ^{131}I , $^{238,239,240,241,242}\text{Pu}$ в аварийных реакторных выбросах, сравнивались с результатами численных аналогичных оценок по программам WIMS, SASH2, ORIGEN. За исключением ^{106}Ru , расхождение между результатами настоящих оценок и оценок по указанным программам не превышает нескольких процентов.

Исследования сорбционных свойств био- и фитосорбентов проводились по стандартной методике, принятой для исследований такого типа.

Все основные результаты докладывались или экспонировались на конференциях:

1. International Conference on Nuclear Data for Science and Technology. Trieste, Italy, May 19-24, 1997.
2. Международный симпозиум «Актуальные проблемы дозиметрии». Минск, 28-30 октября 1997 г.
3. Международное совещание по физике атомного ядра. Москва, Россия, 16-19 июня 1998 г.
4. Конференция по защите от ионизирующих излучений ядерно-технических установок. Обнинск, Россия, 19-24 сентября 1998 г.

Опубликованность результатов

По результатам выполненных в диссертации исследований опубликовано 7 статей, 4 препринта, сделано 9 докладов на научных конференциях. Общее количество страниц опубликованных материалов - 125.

Структура и объем диссертации

Диссертация состоит из введения, общей характеристики работы, 5 глав, заключения, списка используемой литературы и приложения. Общий объем диссертации – 163 страницы машинописного текста, из них 21 страница занимают рисунки, 43 страницы - таблицы, список литературы (наименований) и приложение.

СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во введении определяется предмет исследований настоящей диссертационной работы - определение содержания особо опасных в радиэкологическом отношении нуклидов в аварийных реакторных выбросах, включая и чернобыльские аварийные выбросы.

Дается общая характеристика масштабных источников загрязнения окружающей среды радионуклидами. Рассматривается роль низкочастотных сорбентов органического происхождения в сорбционных методах защиты окружающей среды.

В общей характеристике работы обосновывается актуальность исследований, связанных с оценкой содержания ^{90}Sr , ^{131}I , $^{238,239,240,241,242}\text{Pu}$ в свежих аварийных реакторных выбросах. Формулируются цели и задачи исследования. Дано название НИР, в рамках которой выполнялась диссертационная работа. Определяются объект и предмет проводимых исследований, характеризуются используемые методы.

Оценивается степень новизны полученных результатов, их практическая значимость. Формулируются основные положения, выносимые на защиту. Детализируется личный вклад соискателя в проделанную работу. Приводятся данные по публикациям научных материалов, апробации их на научных конференциях, по структуре и объему диссертации.

В главе 1, состоящей из шести разделов, дается постановка задачи, описываются методики проведения расчетов и эксперимента, приводятся некоторые общие сведения по физике ядерных реакторов.

Раздел 1.1 содержит краткое изложение основных положений физики реакторов на тепловых нейтронах, необходимое для цельного изложения основного материала диссертации в дальнейшем.

В разделе 1.2 ядерные реакторы на тепловых нейтронах рассматриваются как потенциальные источники поступления радионуклидов в окружающую среду. В связи с этим исследуется в общем виде процесс наработки осколков деления и продуктов активации ядер топлива в ядерном реакторе на тепловых нейтронах.

Даются понятия об энергетических группах нейтронов, эффективных сечениях и скоростях ядерных реакций, жесткости спектра нейтронов, резонансных интегралах, усреднении сечений реакций по максвелловскому спектру нейтронов при температуре активной зоны порядка 850°K .

Приводятся необходимые данные о характеристиках взаимодействия тепловых и эпитепловых нейтронов с ядрами актиноидов при 293.16°K . Рассматривается роль независимых и кумулятивных выходов осколков деления в наработке масс нуклидов в активной зоне реактора, кинетика изменения во времени удельных активностей членов линейной изобарной цепочки.

В качестве примера приведены теоретические оценки активностей продуктов деления ^{235}U при времени экспозиции в нейтронном потоке в 1 год и времени выдержки от 0 до $3.2 \cdot 10^5$ лет.

Раздел 1.3 содержит сведения о характере распределения тепловыделяющих сборок (ТВС) с различными глубинами выгорания по активной зоне аварийного реактора РБМК ЧАЭС.

На основании анализа характера распределения ТВС с различными глубинами выгорания можно полагать, что при аварии на реакторе РБМК ЧАЭС могло произойти естественное усреднение продуктов разрушения ТВС.

Вследствие этого отношение активностей радионуклидов одного и того же элемента, рассчитанное для активной зоны, может быть полезным и при анализе радионуклидного состава радиоактивных осадков черновобильского происхождения. В связи с этим приводятся оценки активностей ряда нуклидов в активной зоне реактора РБМК ЧАЭС на момент аварии, рассчитанные в ряде известных нам работ.

В *разделе 1.4* проводится детальное рассмотрение проблемы раннего определения содержания ^{90}Sr , ^{131}I , $^{238,239,240,241,242}\text{Pu}$ в аварийных реакторных выбросах. Делается краткий обзор работ по экспериментальным методам определения содержания ^{90}Sr при наличии сопутствующего нуклида ^{89}Sr . Предлагается экстрагировать $^{89,90}\text{Sr}$ из исследуемых образцов с помощью дициклогексил-18-краун-6 и делать оценку активности ^{90}Sr расчетным путем.

Отмечается, что коэффициенты фракционирования для ^{131}I и ^{137}Cs , согласно ряду оценок, близки между собой. Вследствие этого можно ожидать определенной корреляции между активностью ^{131}I и ^{137}Cs в аварийных черновобильских выбросах.

При решении проблемы определения α -излучающих изотопов плутония предлагается использовать то обстоятельство, что β -активность ^{241}Pu в выбросах черновобильского происхождения примерно в 50 раз больше, чем суммарная α -активность $^{238,239,240,242}\text{Pu}$. Проблема определения β -активности ^{241}Pu близка по сложности к проблеме определения активности трития. По известной активности ^{241}Pu путем пересчета можно оценить и полную, и парциальные активности α -излучающих изотопов плутония.

В *разделе 1.5* дается физическое обоснование предлагаемому β -радиометрическому и γ -спектрометрическому методу определения содержания ^{90}Sr , $^{238-242}\text{Pu}$ в свежих аварийных реакторных выбросах. Суть метода состоит в том, что для отношения активностей ряда нуклидов в активной зоне реактора на тепловых нейтронах оказывается возможным получить теоретически достаточно надежные оценки. В частности, это «цезиевое отношение» $A(^{134}\text{Cs})/A(^{137}\text{Cs})$, $A(^{89}\text{Sr})/A(^{90}\text{Sr})$, $A(^{103}\text{Ru})/A(^{106}\text{Ru} + ^{106}\text{Pd})$, $A(^{238}\text{Pu}) : A(^{239}\text{Pu}) : A(^{240}\text{Pu}) : A(^{242}\text{Pu})$.

Раздел 1.6 содержит необходимые сведения о сорбционных методах удаления радионуклидов из водных сред. Дается краткое описание требований к сорбентам органического происхождения.

Глава 2 содержит основной физический результат, полученный в диссертационной работе, в ней дано физическое обоснование и разработан математический аппарат метода оценки наработанных масс нуклидов в активной зоне реактора на тепловых нейтронах, в котором операция суммирования масс по отдельным тепловыделяющим сборкам (ТВС) заменяется простой статистической обработкой удельных масс $m_{\text{уд}}$.

В принципе оценка масс наработанных в активной зоне нуклидов является очень сложной проблемой, поскольку на наработку масс нуклидов влияет большое число факторов: конструкционные особенности топливной ячейки; наличие в реакторе нескольких типов замедляющих веществ (графит, парово-

дая смесь, кислород в топливе); внешнее и внутреннее экранирование топлива; наличие в активной зоне нерабочих каналов; неравномерность распределения нейтронного поля по объему активной зоны реактора; наличие большого числа ядерных процессов, влияющих на наработку или выгорание того или иного нуклида; изменение со временем спектра нейтронов и соответственно скоростей некоторых ядерных реакций и т.д..

Однако для реакторов на тепловых нейтронах есть одно существенно упрощающее решение задачи обстоятельство - достаточно простой спектр нейтронов. Вследствие этого для скоростей ядерных реакций используется простое выражение

$$\lambda = \phi_{\text{тепл}} (Ag\sigma_{2000} + rRI), \quad (1)$$

где $\phi_{\text{тепл}}$ - поток тепловых нейтронов; r - отношение потоков эпитепловых и тепловых нейтронов; σ_{2000} - сечение реакции на тепловых нейтронах при 293.16 °К; $A = (\pi T_0/4T_n)^{1/2}$, $T_0 = 293.16$ °К, $T_n = 850$ °К; фактор g характеризует отклонение сечения от закона $1/v$.

В разделе 2.1 делается обзор работ по численным оценкам масс и активностей нуклидов в активной зоне аварийного реактора РБМК ЧАЭС. Схема расчетов во всех работах примерно одинакова, состоит из двух этапов и подробно описана в отчете МИФИ о работе в рамках "Комплексной экспедиции" ИАЭ им. И.В.Курчатова.

На первом этапе моделировался процесс выгорания топлива в течение всей кампании реактора и рассчитывались зависимости удельных масс нуклидов $m_{уд}$ от глубины выгорания. На втором этапе на основании данных о глубине выгорания для каждой из 1659-ти ТВС были рассчитаны количества наработанных нуклидов в каждой ТВС. Массы этих нуклидов были затем покассетно просуммированы, и таким образом получены данные для всей активной зоны.

Сравнение результатов численных оценок активностей нуклидов в разных работах показывает, что в ряде случаев они плохо согласуются между собой. Поскольку в методическом плане все работы сходны, причина расхождений, по-видимому, объясняется различием в исходных данных (например, значение средней глубины выгорания по активной зоне $W_{ср}$ варьируется от ~8 до ~13 МВтхсут/кг). Наиболее корректные оценки сделаны в указанном отчете МИФИ. Эти данные и использовались в дальнейшем в настоящей диссертационной работе.

В разделе 2.2 предлагается статистическая модель оценки средних масс и активностей нуклидов, основанная на использовании многомерного закона Пуассона. Суть ее состоит в том, что в приближении постоянной мощности реактора сложная и громоздкая операция покассетного суммирования наработанных масс нуклидов (предварительно необходимо для каждой ТВС вычислить эффективную глубину выгорания $W_{эфф}$ с учетом неравномерности поля нейтронов по высоте и радиусу активной зоны, зависимости плотности по-

тока нейтронов от времени) может быть сведена к простой статистической обработке удельных масс $m_{уд}$.

Для обоснования предлагаемого метода необходимо учесть связь многих макроскопических физических явлений со статистическими свойствами микромира. Измерения любой макроскопической величины имеют статистический характер. При этом флуктуации результатов измерений частично обусловлены макроскопическими факторами, а частично – статистическим характером явлений микромира.

Это в полной мере относится и к процессу наработки нуклидов в активной зоне реактора. К макроскопическим факторам здесь можно отнести режим работы реактора, конструкционные особенности ТВС и замедлителя и многое другое. К микроскопическим факторам – статистический характер взаимодействия нейтронов с атомными ядрами, радиоактивного распада ядер и т.д. В режиме постоянной мощности реактора оказывается возможным разделить влияние макроскопических и микроскопических факторов на наработку масс нуклидов в активной зоне реактора.

Для оценки масс нуклидов в активной зоне реактора часто используют приближение равномерного перемешивания топлива, когда любая макроскопическая масса топлива будет характеризоваться глубиной выгорания W , совпадающей со средней по активной зоне глубиной выгорания топлива $\bar{W}_{аз}$. В этом приближении для массы i -го нуклида M_i имеем

$$M_i = m_{уд_i} (\langle W \rangle) \times m(U), \quad (2)$$

где $m_{уд_i}$ – удельная масса i -го нуклида при $W = \bar{W}_{аз}$; $m(U)$ – начальная масса урана.

Известно, что указанная формула (2) для M_i справедлива для нуклидов с линейной зависимостью $m_{уд_i}$ от глубины выгорания W . Детально условия применимости формулы (2) для M_i также рассмотрены в отчете МИФИ. Там же показано, что для нуклидов с нелинейной зависимостью $m_{уд}$ от W (^{134}Cs , $^{241,243}\text{Am}$, $^{242,244}\text{Cm}$) формула (2) дает для M_i заниженные значения по сравнению с оценками, полученными методом покассетного суммирования. Следовательно, формула для M_i (2) должна быть скорректирована таким образом, чтобы учесть возможную нелинейность в зависимости $m_{уд}$ от глубины выгорания W .

В общем это сделать несложно, если учесть, что исходное предположение о равномерном перемешивании топлива по всем ТВС эквивалентно усреднению по макроскопическим факторам, влияющим на наработку нуклидов в активной зоне реактора. При этом, естественно, она не учитывает статистический характер микропроцессов, сопровождающих данный процесс. Это можно показать на следующем примере.

Рассматривается система из большого числа идентичных установок, состоящих из одинаковых источников частиц, которыми облучаются одинаковые счетчики. За определенное время t каждый i -ый счетчик срабатывает k_i

раз. При этом величины k , будут распределены в соответствии с законом Пуассона.

В случае ядерного реактора в качестве системы одинаковых счетчиков, облучаемых одинаковыми источниками частиц, может быть любой фрагмент топлива, в пределах которого плотность потока нейтронов заметно не меняется. Распределение количества ядерных взаимодействий по объему фрагмента топлива должно также подчиняться закону Пуассона

$$P_k = \frac{(\langle n \rangle V)^k}{k!} e^{-\langle n \rangle V}, \quad (3)$$

где $\langle n \rangle$ имеет смысл среднего числа ядерных взаимодействий, приходящихся на единицу объема; V – интересующая нас часть объема фрагмента топлива (выступает в качестве отдельного счетчика); $\langle n \rangle V$ – среднее число ядерных взаимодействий в объеме V ; $k = 0, 1, 2, \dots$ – число ядерных взаимодействий в объеме V .

Очевидно, что знания среднего числа ядерных взаимодействий в объеме V и соответственно в полном объеме фрагмента топлива недостаточно для того, чтобы оценить среднее значение какой-либо величины, произвольным образом зависящей от числа взаимодействий. Для получения корректного среднего значения рассматриваемой величины необходимо усреднение с помощью распределения Пуассона.

Аналогичная ситуация будет иметь место и для ансамбля произвольным образом выбранных фрагментов топлива. Поэтому все ядерное топливо, находящееся в активной зоне реактора, разбивается на фрагменты, в пределах которых количество ядерных взаимодействий будет подчиняться закону Пуассона. Для ансамбля отдельных объемов по всем фрагментам топлива (в нашем случае он соответствует 1 кг топлива) будет справедлив многомерный закон Пуассона. С учетом этого обстоятельства для M_i можно получить более корректную, чем (2), формулу:

$$M_i = \langle m_{y_{d_i}}(W) \rangle_{\langle W \rangle} \times m(U), \quad (4)$$

где $\langle m_{y_{d_i}}(W) \rangle_{\langle W \rangle}$ обозначает усреднение $m_{y_{d_i}}(W)$ по глубине выгорания с помощью распределения Пуассона при средней глубине выгорания по активной зоне $\bar{W}_{a.z.}$.

В разделе 2.3 разрабатывается математический аппарат, необходимый для вычисления M_i по формуле (4). Получен безразмерный аналог глубины выгорания W , поскольку в распределении Пуассона должны фигурировать безразмерные величины. Установлена связь между распределением Пуассона с дискретными значениями $W = 0, 1, 2, \dots$ и распределением Гаусса с непрерывными значениями W .

Рассчитаны средние значения от функций типа $W^n e^{-\lambda W}$, где $n = 0, 1, 2, 3, 4, 5$, λ – константа. Очень простое выражение получается для важного случая (распределение Пуассона):

$$e^{-\lambda W} = e^{-\bar{W}(1-e^{-\lambda})}, \quad (5)$$

т.е. вычисление среднего значения сводится к простой перенормировке константы распада.

В разделе 2.4 рассматривается зависимость «цезиевого отношения» $\lambda = A(^{134}\text{Cs})/A(^{137}\text{Cs})$ от глубины выгорания. Показано, что при оценке λ с помощью M_i (4) получается значение $\lambda = 0.59$ ($\bar{W}=10.9$), что совпадает с результатами расчетов МИФИ. Использование же обычной формулы для M_i (2) дает λ заниженное значение — 0.53.

В разделе 2.5 исследуются нелинейные эффекты в наработке масс и активностей ^{134}Cs , $^{241,243}\text{Am}$, $^{242,244}\text{Cm}$. Данные МИФИ для $m_{\text{уд}}$ нуклидов $^{241,243}\text{Am}$, $^{242,244}\text{Cm}$ при глубинах выгорания свыше 2 МВт \times сут/кг с точностью до нескольких процентов хорошо аппроксимируются функциями

$$\begin{aligned} m(^{241}\text{Am})_{\text{уд}} &= 4.96(-5)W^2(1-e^{-0.19W})(1-e^{-0.21W}) && \text{кг/т}, \\ m(^{243}\text{Am})_{\text{уд}} &= 1.72(-7)W^4(1-e^{-0.36W})(1-e^{-0.40W}) && \text{кг/т}, \\ m(^{242}\text{Cm})_{\text{уд}} &= 1.29(-7)\{W^4 - 0.0325W^5 - 1.2708W^3\} && \text{кг/т}, \\ m(^{244}\text{Cm})_{\text{уд}} &= 1.29(-5)W^5(1-e^{-0.135W}) && \text{кг/т}, \end{aligned} \quad (6)$$

После усреднения их по распределению Пуассона и домножения на всю массу топлива для аварийного реактора РБМК ЧАЭС при $\bar{W}=10.9$ МВт \times сут/кг получаем:

$$\begin{aligned} m(^{241}\text{Am}) &- 1.086 \text{ кг}, && (\text{МИФИ} - 1.08 \text{ кг}), \\ m(^{243}\text{Am}) &- 0.731 \text{ кг}, && (\text{МИФИ} - 0.73 \text{ кг}), \\ m(^{242}\text{Cm}) &- 0.244 \text{ кг}, && (\text{МИФИ} - 0.256 \text{ кг}), \\ m(^{244}\text{Cm}) &- 0.0694 \text{ кг}, && (\text{МИФИ} - 0.0595 \text{ кг}). \end{aligned}$$

Согласие между нашими оценками, полученными с помощью формулы для M_i (4), и оценками МИФИ, полученными методом покассетного суммирования, хорошее.

Глава 3 содержит физическое обоснование феноменологической модели для оценки удельных масс и активностей осколков деления в активной зоне реактора РБМК. Предполагается, что реактор работает в режиме постоянной мощности на скорости 10^{20} дел/с ядер первичного и вторичного топлива и основной вклад в энерговыработку дают ^{235}U , $^{239,241}\text{Pu}$ (деление тепловыми и замедляющимися нейтронами), ^{238}U (деление быстрыми нейтронами). В конце кампании реактора при $W = 18.5$ МВт \times сут/кг вклад в энерговыработку ^{235}U , ^{239}Pu , ^{241}Pu , и ^{238}U должен быть примерно следующим: 65%, 26%, 4% и 5% соответственно.

Плотность потока нейтронов существенно не менялась в течение кампании. Сечения нейтронных реакций в тепловой группе брались при $T = 850$ °К. Зависимость масс $^{239,241}\text{Pu}$ от глубины выгорания бралась из отчета МИФИ и аппроксимировалась аналитическими функциями. Предполагалось также, что

кумулятивные выходы для осколков деления ^{239}Pu и ^{241}Pu близки между собой.

Второй вариант феноменологической модели основывался на данных расчета трансурановых элементов в активной зоне реактора РБМК по программе ORIGEN. В обоих случаях получены простые выражения для масс и активностей осколков деления, накопленных в активной зоне реактора РБМК.

Делалась оценка масс стабильных нуклидов, долгоживущих нуклидов (типа ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{93}Zr и др.), короткоживущих нуклидов (типа ^{131}I , ^{103}Ru , и др.), нуклидов с промежуточными периодами полураспада (^{106}Ru , ^{125}Sb , ^{144}Ce).

Массы стабильных нуклидов рассчитывались при $\bar{W} = 9.5 \text{ МВт} \times \text{сут}/\text{кг}$ и сравнивались с результатами численных расчетов ИПЭ НАНБ (г. Минск). Для $^{80,82}\text{Se}$, ^{81}Br , $^{84,86}\text{Kr}$, ^{88}Sr , $^{90,92,94,96}\text{Zr}$, $^{97,98,100}\text{Mo}$, $^{99,101,102}\text{Ru}$, ^{105}Pd , ^{119}Sn , ^{127}I , ^{130}Te , $^{131}\text{Xe} + ^{132}\text{Xe}$, ^{134}Xe , ^{133}Cs , $^{137,138}\text{Ba}$, $^{135}\text{Xe} + ^{136}\text{Xe}$, $^{140,142}\text{Ce}$, ^{139}La , $^{145,146,148,150}\text{Nd}$ результаты оценок по феноменологической модели и результаты численных расчетов ИПЭ НАНБ практически совпадают.

Аналогичные оценки делались и для долгоживущих нуклидов, создающих долговременный радиоактивный фон - ^{87}Rb , ^{90}Sr , ^{93}Zr , $^{93\text{m}}\text{Nb}$, $^{98,99}\text{Tc}$, ^{129}I , ^{137}Cs ($\bar{W} = 9.5 \text{ МВт} \times \text{сут}/\text{кг}$). Результаты настоящих расчетов практически совпадают с результатами численных расчетов ИПЭ НАНБ.

Для короткоживущих нуклидов ^{89}Sr , ^{91}Y , $^{95,97}\text{Zr}$, ^{99}Mo , ^{103}Ru , ^{127}Sb , $^{131,133}\text{I}$, ^{132}Te , ^{133}Xe , ^{140}Ba , $^{141,143}\text{Ce}$, ^{147}Nd оценки по феноменологической модели с точностью не хуже 10% согласуются с результатами численных оценок ИПЭ НАНБ и ИФ Литвы (г. Вильнюс).

За исключением ^{106}Ru аналогичная ситуация имеет место и для нуклидов с промежуточными периодами полураспада. В случае ^{106}Ru расхождение достигает 25%, что легко объяснимо: кумулятивный выход ^{106}Ru при делении ^{239}Pu примерно в 12 раз выше, чем аналогичная величина для ^{235}U . Начинают сказываться упрощающие предположения, лежащие в основе феноменологической модели.

В главе 4 приведены примеры возможного использования на практике результатов, полученных в главах 2, 3.

В разделах 4.1, 4.2 рассматривается метод экспрессного (в течение нескольких часов) определения содержания ^{90}Sr в свежих аварийных реакторных выбросах. Идея метода основана на том, что согласно теоретическим оценкам, в активной зоне реактора отношение активностей

$$\begin{aligned} \nu &= A(^{89}\text{Sr})A(^{106}\text{Ru})/A(^{90}\text{Sr})A(^{103}\text{Ru}), \\ \rho &= A(^{89}\text{Sr})A(^{134}\text{Cs})/A(^{90}\text{Sr})A(^{137}\text{Cs}) \end{aligned} \quad (7)$$

слабо зависит от глубины выгорания в интервале $W \sim 2 - 18 \text{ МВт} \times \text{сут}/\text{кг}$. Поэтому и в ядерных выбросах величины ν и ρ должны быть близкими к аналогичным величинам в активной зоне реактора на момент аварии.

Величины ν и ρ рассчитывались как в рамках развитой феноменологической модели, так и с использованием результатов численных расчетов. Результаты расчетов практически совпадают.

Значения величины ν лежат в пределах 4.2 ± 0.5 , а значения $\rho - 10.5 \pm 1.1$. В принципе по отношениям активностей $A(^{134}\text{Cs})/A(^{137}\text{Cs})$ и $A(^{103}\text{Ru})/A(^{106}\text{Ru})$ могут быть уточнены значения W для данных выбросов и соответственно величины ν и ρ .

С точки зрения эксперимента определение активностей ^{89}Sr , ^{103}Ru , ^{106}Ru + ^{106}Pd , $^{134,137}\text{Cs}$ трудностей не представляет. Поэтому на основании соотношений (7) легко может быть оценена и активность ^{90}Sr .

В разделе 4.3 рассматривается возможность оценки полной и парциальных активностей $^{238,239,240,242}\text{Pu}$ на основании измерения β -активности ^{241}Pu . Согласно результатам известных нам теоретических оценок, отношение β -активности ^{241}Pu к суммарной α -активности $^{238,239,240,242}\text{Pu}$ $\lambda = A(\beta)/A(\alpha)$ при глубинах выгорания свыше 7 МВт \times сут/кг слабо зависит от глубины выгорания и близко к 50. Результаты численных оценок данной величины для аварийного реактора РБМК ЧАЭС дают близкое значение $\lambda \sim 55$. Поэтому, по крайней мере, для выбросов чернобыльского происхождения данный подход корректен.

В основу расчетов положены $m_{\text{уд}}$ изотопов плутония из отчета МИФИ. Результаты численных расчетов МИФИ с точностью до нескольких процентов аппроксимировались аналитическими функциями

$$\begin{aligned} m(^{238}\text{Pu})_{\text{уд}} &= 3.20(-6)W^2(W + 5.312)(1 - e^{-1.322W}) \quad \text{кг/т}, \\ m(^{239}\text{Pu})_{\text{уд}} &= 3.41(e^{-0.015W} - e^{-0.169W}) \quad \text{кг/т}, \\ m(^{240}\text{Pu})_{\text{уд}} &= 3.54(-2)Wm(^{239}\text{Pu})_{\text{уд}} \quad \text{кг/т}, \\ m(^{241}\text{Pu})_{\text{уд}} &= 4.25(-2)W(e^{-0.019W} - e^{-0.15W})(1 - e^{-0.19W}) \quad \text{кг/т}, \\ m(^{242}\text{Pu})_{\text{уд}} &= 1.11(-5) \cdot W^4(e^{-0.1W} + 0.03) \quad \text{кг/т}. \end{aligned} \quad (8)$$

Затем выражения (8) усреднялись по формуле (4) и находилось отношение активностей λ .

Активность ^{241}Pu предлагается измерять на β -радиометрах, предназначенных для измерения активности трития. Таким способом можно измерять активность ^{241}Pu на уровне 0.1 Бк. Это соответствует суммарной α -активности $^{238,239,240,242}\text{Pu}$ порядка 0.002 Бк.

Теория позволяет достаточно точно рассчитать и отношения парциальных активностей $A(^{238}\text{Pu}) : A(^{239}\text{Pu}) : A(^{240}\text{Pu}) : A(^{242}\text{Pu})$. Поэтому знание полной α -активности и рассчитанного отношения парциальных α -активностей позволяет решить проблему определения содержания изотопов плутония в аварийных реакторных выбросах.

В разделе 4.4 анализируется возможность реконструкции экспозиционной дозы от ^{131}I по данным γ -спектрометрии $^{134,137}\text{Cs}$ и теоретической оценке наработанных масс $^{133,134,137}\text{Cs}$.

Теория позволяет достаточно точно оценить наработку изотопов цезия $^{133,134,137}\text{Cs}$ и ^{131}I . Если предположить, что в реакторных выбросах Cs и I частично находятся в виде соединения CsI, то должна наблюдаться корреляция

между активностью ^{131}I и ^{137}Cs . Для аварийного реактора РБМК ЧАЭС можно получить соотношение

$$A(^{131}\text{I})/A(^{137}\text{Cs}) = 7.54(+13)/t(\text{сут}); \quad t \cong 59.5\text{W}. \quad (9)$$

Естественно, соотношение (9) дает только верхнюю границу активности ^{131}I , соответствующую случаю, когда вся масса наработанного ^{131}I представлена в виде CsI .

Раздел 4.5 содержит сведения о многоцелевом высокоэффективном γ -спектрометре «Припять» и β -радиометре «Бета-2», с помощью которых возможно решение радиозокологических задач, рассмотренных в разделах 4.1, 4.2, 4.3, 4.4.

Гамма-спектрометр «Припять» регистрирует γ -излучение с помощью шести $\text{NaI}(\text{Te})$ - детекторов в режиме гамма-гамма-совпадений с кратностью от 1 до 6. Обладает 4л - геометрией, вследствие чего возможны измерения образцов любой формы, вписывающихся в объем рабочей камеры 5 л. Минимальная регистрируемая активность по ^{137}Cs порядка 0.1 Бк.

Бета-радиометр «Бета-2» предназначен для регистрации активности трития и ^{14}C . Фон установки - порядка 0.5 Бк, что и определяет нижнюю границу регистрируемой β -активности. Данная установка аттестована для измерения β -активности ^{90}Sr . В принципе она пригодна и для измерения активности ^{241}Pu (верхняя граница β -спектра 21 кэВ).

В главе 5 приводятся результаты исследований сорбционных характеристик ряда сорбентов органического происхождения, предназначенных для очистки водных сред и водных растворов от тяжелых металлов, радионуклидов и других ксенобиотиков. Исследования проводились совместно с Российским университетом дружбы народов (г. Москва), в котором разрабатывалась технология изготовления сорбентов, и Российским научным центром «Институт атомной энергии им. И.В.Курчатова» (г. Москва), в котором, как и в Институте физики НАН Б, проводились исследования сорбционных характеристик сорбентов.

Наиболее перспективный фитосорбент №728 был испытан в ПО «МАЯК». По результатам испытаний сорбент №728 был рекомендован для доочистки водных растворов от тяжелых металлов и радионуклидов. Фитосорбент №728 и ряд других сорбентов производства РУДН (г. Москва) по сорбционным характеристикам не уступают лучшим зарубежным сорбентам (японские сорбенты на основе хитина и хитозана, активные угли, молекулярное сито «Клиносорб»).

Подробно анализируются перспективы использования сорбентов органического происхождения для решения различных экологических проблем. Отмечается перспективность сорбента «Виктория», разработанного в Институте химической физики РАН.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Основные результаты, полученные в настоящей работе, могут быть сформулированы следующим образом:

1. На примере аварийного реактора на тепловых нейтронах РБМК ЧАЭС в приближении постоянной мощности реактора показано, что при оценке общего количества наработанных нуклидов в активной зоне реактора применявшаяся ранее громоздкая операция суммирования по отдельным тепловыделяющим сборкам (ТВС) может быть сведена к простой статистической обработке удельных масс нарабатываемых нуклидов $m_{уд}$ (усреднение $m_{уд}$ с помощью распределения Пуассона, или Гаусса по выгоранию W при заданной средней по активной зоне глубине выгорания $\bar{W}_{a.z.}$). Предложена более корректная, чем использовавшаяся ранее, формула для оценки полных масс наработанных нуклидов M_i в активной зоне реактора: $M_i = \left\langle m_{уд}(W) \right\rangle_{\bar{W}} m(U)$, где M_i – полная масса i -го нуклида; $m_{уд}(W)$ – удельная масса i -го нуклида; $m(U)$ – масса урана $\left\langle \right\rangle_{\bar{W}}$ – обозначает усреднение по W с помощью распределения Пуассона, или Гаусса при средней глубине выгорания по активной зоне $\bar{W}_{a.z.}$. Рассчитанные с помощью указанной формулы массы наработанных нуклидов в активной зоне аварийного реактора РБМК ЧАЭС практически совпадают с результатами численных оценок с использованием метода суммирования по отдельным тепловыделяющим сборкам (ТВС) [3, 5, 13, 20].

2. Разработана простая феноменологическая модель для оценки наработки масс осколков деления ядер топлива в активной зоне реактора на тепловых нейтронах, в частности, для аварийного реактора РБМК ЧАЭС. Модель основана на теоретической оценке зависимости скоростей деления в реакторном топливе ядер ^{235}U , $^{239,241}\text{Pu}$ от глубины выгорания в интервале $W = 0 \div 18.5$ МВт \times сут/кг. Для масс большинства стабильных и долгоживущих осколков деления, активностей многих важных в радиозокологическом отношении нуклидов ($^{89,90}\text{Sr}$, $^{95,97}\text{Zr}$, ^{99}Mo , ^{103}Ru , ^{131}I , ^{137}Cs и др.) модельные оценки хорошо согласуются с результатами численных расчетов по программам SASH2, WIMS и ORIGEN [7, 8, 17, 18, 19].

3. Предложен новый экспрессный метод (в течение нескольких часов после выпадения радиоактивных осадков) определения содержания ^{90}Sr в свежих аварийных реакторных выбросах, основанный на β -радиометрии ^{89}Sr , γ -спектрометрии ^{103}Ru , ^{106}Ru (^{106}Pd), $^{134,137}\text{Cs}$ и теоретической оценке отношения активностей $A(^{89}\text{Sr})A(^{106}\text{Ru})/A(^{90}\text{Sr})A(^{103}\text{Ru})$, $A(^{89}\text{Sr})A(^{134}\text{Cs})/A(^{90}\text{Sr})A(^{137}\text{Cs})$. Метод предполагает предварительное экстрагирование стронция из исследуемого образца с помощью высокоселективного сорбента дициклогексил-18-краун-6. Чувствительность метода ~ 0.1 Бк, что близко к чувствительности масс-спектрометрических методов [7, 8, 11, 12, 15, 17, 18].

4. Дано теоретическое обоснование нового высокочувствительного метода определения содержания α -излучающих изотопов плутония $^{238,239,240,242}\text{Pu}$ в аварийных реакторных выбросах. На примере аварийного реактора на тепло-

вых нейтронах РБМК ЧАЭС показано, что в реакторном топливе при глубине выгорания свыше 7 МВт×сут/кг отношение β -активности ^{241}Pu к суммарной α -активности $^{238,239,240,242}\text{Pu}$ $\lambda = A(\beta)/A(\alpha)$ примерно постоянно и близко к 50. Поскольку β -активность ^{241}Pu в принципе может быть измерена на уровне ~ 0.1 Бк, то это дает возможность оценить парциальные и суммарную α -активность $^{238,239,240,242}\text{Pu}$ на уровне ~ 10^{-3} Бк [3, 4, 5, 10, 14, 20].

5. Показано, что по экспериментальным данным γ -спектрометрирования $^{134,137}\text{Cs}$ и теоретическим оценкам наработки масс ^{131}I , $^{133,134,137}\text{Cs}$ в активной зоне реактора на тепловых нейтронах можно частично реконструировать экспозиционную дозу от ^{131}I (для ^{131}I , находящегося в виде соединения CsI) в месте выпадения радиоактивных осадков [9].

6. Исследованы сорбционные характеристики большой партии новых био- и фитосорбентов производства Российского университета дружбы народов (г. Москва) по отношению к тяжелым металлам (в том числе и радионуклидам). Показано, что ряд исследованных сорбентов (особенно фитосорбент №728) по своим характеристикам не уступает активированному углю, сорбентам на основе хитина и хитозана (производство Японии), молекулярному сити («клиносорб», производство ФРГ). После проведения испытаний данных сорбентов на реальных объектах в НПО «МАЯК» они были рекомендованы для доочистки загрязненных водных сред [1, 2, 6, 16].

Список опубликованных работ по теме диссертации

1. Величко Б.А., Венсковский Н.У., Зволинский В.П., Абрамова Г.А., Шутова Л.А. Рудак Э.А., Наполеау П.А.М. Био- и фитосорбенты для защиты окружающей среды. //Экология и промышленность России, август 1997. – С.32-36.

2. Величко Б.А., Венсковский Н.У., Рудак Э.А. и др. Био- и фитосорбенты для очистки питьевой воды и промышленных стоков. //Экология и промышленность России, январь 1998. – С.28-32.

3. Napoleao P.A.M., Rudak E.A., Wiley J.R. The role of the shot effect in the accumulation of nuclide masses and activities in the thermal reactor core. //Environmental Physics, Vilnius, 1998. Vol.20 №1. – P.21-26.

4. Бурак А.О., Наполеау П.А.М., Рудак Э.А. Приближенный метод оценки плутония в свежих аварийных ядерных выбросах. //Вопросы радиационной безопасности, 1998. Журнал ПО «Маяк», № 3, 1998. – С.68-71.

5. Наполеау П.А.М., Рудак Э.А. Экспрессный метод оценки массы и активности нуклидов в активной зоне РБМК. //Атомная энергия, Т.85, вып.3, 1998. – С.219-226.

6. Величко Б.А., Абрамова Г.В., Шутова Л.А., Венсковский Н.У., Кулаков В.М., Рудак Э.А., Наполеау П.А.М. Результаты и перспективы применения био- и фитосорбентов при решении некоторых экологических проблем. //Экология промышленного производства, 1-2, 1998. – С.42-48.

7. Наполеау П.А.М., Рудак Э.А. Экспрессное определение содержания ^{90}Sr в свежих ядерных выбросах. // Вопросы радиационной безопасности, 1998, №4. – С.58-60.

8. Napoleao P.A.M., Rudak E.A., Zablotzky S.V. Rapid determination of the ^{90}Sr content in fresh nuclear fallout. «International conference on nuclear data for science and technology». Trieste, Italy, 1997.

9. Napoleao P.A.M., Rudak E.A., Zablotzky S.V. On one possibility of reconstructing the exposure dose at the side of fresh nuclear fallout. «International conference on nuclear data for science and technology». Trieste, Italy, 1997.

10. Наполеау П.А.М., Рудак Э.А. Определение содержания трансурановых элементов в аварийных ядерных выбросах. //Сб. тез. «Дозиметрический контроль: техника и методы». Под ред. Люцко А.М. и др. – Минск, 1997. – С.200-201.

11. Берестов А.В., Заблоцкий С.В., Наполеау П.А.М., Рудак Э.А., Тесевич Б.И., Хильманович А.М. Раннее определение содержания ^{90}Sr в свежих ядерных выбросах. Сб. тез. «Дозиметрический контроль: техника и методы». Под ред. Люцко А.М. и др. – Минск, 1997. – С.202-203.

12. Берестов А.В., Заблоцкий С.В., Наполеау П.А.М., Рудак Э.А., Тесевич Б.И., Хильманович А.М. Раннее определение содержания ^{90}Sr в свежих ядерных выбросах. Сб. тез. «Международное совещание по физике атомного ядра». – Санкт-Петербург, 1998. – С.279.

13. Наполеау П.А.М., Рудак Э.А. Аналитические оценки на основе многомерного закона Пуассона масс и активностей нуклидов в активной зоне реактора РБМК-1000. //Сб. тез. «Международное совещание по физике атомного ядра». – Санкт-Петербург, 1998. – С.280.

14. Бурак А.О., Заблоцкий С.В., Наполеау П.А.М., Рудак Э.А., Вайли Дж.Р. Экспрессный метод определения содержания радионуклидов плутония в аварийных ядерных выбросах. Сб. тез. «Защита от ионизирующих излучений ядерно-технических установок». Под ред. М.И.Бондаренко и др. – Обнинск, 1998. – С.178-180.

15. Заблоцкий С.В., Наполеау П.А.М., Рудак Э.А., Вайли Дж.Р. Экспрессный метод определения содержания ^{90}Sr в свежих ядерных выбросах. Сб. тез. «Защита от ионизирующих излучений ядерно-технических установок». Под ред. М.И.Бондаренко и др. – Обнинск, 1998. – С.175-177.


16. Абрамова Г.А., Величко Б.А., Шутова Л.А., Билан О.Н., Наполеау П.А.М., Рудак Э.А. Био- и фитосорбенты для очистки воды и водных растворов от радионуклидов и других вредных для здоровья человека веществ. Сб. тез. «Защита от ионизирующих излучений ядерно-технических установок». Под ред. М.И.Бондаренко и др. – Обнинск, 1998. – С.299-300.

17. Wiley J.R., Zablotzky S.V., Napoleao P.A.M., Rudak E.A. On one possibility of rapid measurement of strontium radionuclides in fresh nuclear fallout. – Minsk, 1996. -16 p. (Preprint Institute of Physics Academy of Sciences of Belarus, №704).

18. Вайли Дж.Р., Заблоцкий С.В., Наполеау П.А.М., Рудак Э.А. Об одной возможности быстрого определения радионуклидов стронция в свежих ядерных выбросах. – Минск, 1996. 19 с. (Препринт Института физики АН Беларуси, №706).

19. Zablotsky S.V., Napoleao P.A.M., Rudak E.A., Wiley J.R.. Analytical estimates of masses and activities of fission fractions in the active zone of a thermal reactor. – Minsk, 1997. 19 p. (Preprint Institute of Physics Academy of Sciences of Belarus., №708).

20. Вайли Дж.Р., Наполеау П.А.М., Рудак Э.А. Оценка активностей трансурановых элементов в активной зоне реактора на тепловых нейтронах типа РБМК. – Минск, 1998. 17 с. (Препринт института физики НАН Беларуси, №714).



РЕЗЮМЕ

Пашкуал Антониу Муссуку Наполеау. Раннее определение содержания радионуклидов ^{90}Sr , ^{131}I , $^{238-242}\text{Pu}$ в свежих аварийных ядерных выбросах.

Ключевые слова: радионуклиды; реактор РБМК ЧАЭС; выгорание; осколки деления; ядерное топливо; плутоний; уран; стронций-90; йод-131; цезий-137; радиозекология; распределение Пуассона; сорбенты; сорбция радионуклидов.

В приближении постоянной мощности реактора на тепловых нейтронах показано, что при оценке общего количества наработанных нуклидов в активной зоне реактора применявшаяся ранее громоздкая операция суммирования по отдельным тепловыделяющим сборкам (ТВС) может быть сведена к простой статистической обработке удельных масс нарабатываемых нуклидов $m_{\text{уд}}$ (усреднение с помощью распределения Пуассона, или Гаусса по выгоранию W при заданной средней по активной зоне глубине выгорания $\bar{W}_{\text{аз}}$).

Предложен новый экспрессный метод (в течение нескольких часов) определения содержания ^{90}Sr в свежих аварийных реакторных выбросах. В основе метода лежит слабая зависимость отношений активностей $A(^{89}\text{Sr})A(^{106}\text{Ru})/A(^{90}\text{Sr})A(^{103}\text{Ru})$, $A(^{89}\text{Sr})A(^{134}\text{Cs})/A(^{90}\text{Sr})A(^{137}\text{Cs})$ от глубины выгорания. Метод предполагает предварительное экстрагирование стронция из исследуемого образца с помощью дициклогексил-18-краун-6. Чувствительность метода порядка 0.1 Бк.

Дано теоретическое обоснование нового высокочувствительного метода определения содержания α -излучающих изотопов плутония $^{238,239,240,242}\text{Pu}$ в аварийных реакторных выбросах. В основе метода лежит слабая зависимость отношения β -активности ^{241}Pu к суммарной α -активности $^{238,239,240,242}\text{Pu}$ $A(\beta)/A(\alpha) \cong 50$ при глубинах выгорания свыше 7 МВт \times сут/кг.

Показано, что по экспериментальным данным γ -спектрометрии $^{134,137}\text{Cs}$ и теоретическим оценкам наработанных масс ^{131}I , $^{133,134,137}\text{Cs}$ возможна частичная реконструкция экспозиционной дозы от ^{131}I в месте выпадения радиоактивных осадков.

Исследованы сорбционные характеристики ряда сорбентов органического происхождения по отношению к тяжелым металлам, включая и радионуклидам.

РЭЗЮМЕ

Пашкуал Антоніу Мусуку Напалеау. Раньне вызначэнне ўтрымання радыёнуклідаў ^{90}Sr , ^{131}I , $^{238-242}\text{Pu}$ у свежых аварыйных ядзерных выкідах.

Ключавыя словы: радыёнукліды, рэактар РХПН ЧАЭС, выгаранне, асколкі дзялення, ядзернае паліва, плутоній, уран, стронцый-90, ёд-131, цэзій-137, радыёэкалогія, размеркаванне Пуасона, сарбенты, сорбцыя радыёнуклідаў.

У рабоце паказана, што калі лічыць магутнасць рэактара на цеплавых нейтронах няэменнай, то пры ацэнцы агульнай колькасці напрацаваных нуклідаў у актыўнай зоне рэактара грувасткая аперацыя падсумавання па асобных цеплавывлучальных зборках (ЦВЗ), якая выкарыстоўвалася раней, можа быць зведзена да прастай статыстычнай апрацоўкі ўдзельных мас напрацоўваемых нуклідаў $m_{\text{уд}}$ (усерадненне з дапамогай размеркавання Пуасона ці Гауса па выгаранні W пры зададзенай сярэдняй па актыўнай зоне глыбіні выгарання $\bar{W}_{\text{с.г.}}$).

Прапанаваны новы экспрэсны метад (на працягу некалькіх гадзін) вызначэння ўтрымання ^{90}Sr у свежых аварыйных рэактарных выкідах. У аснове метаду ляжыць слабая залежнасць адносін актыўнасцей $A(^{89}\text{Sr})A(^{106}\text{Ru})/A(^{90}\text{Sr})A(^{103}\text{Ru})$, $A(^{89}\text{Sr})A(^{134}\text{Cs})/A(^{90}\text{Sr})A(^{137}\text{Cs})$ ад глыбіні выгарання. Метад прадугледжвае папярэдняе экстраганне стронцыя з даследуемага ўзору пры дапамозе дыцыклагексіл-18-краўн-6. Чуласць метаду складае прыкладна 0.1 Бк.

Дадзена тэрэтычнае абгрунтаванне новага высокаадчувальнага метаду вызначэння ўтрымання α -выпраменьваючых ізатопаў плутонія $^{238,239,240,242}\text{Pu}$ у аварыйных рэактарных выкідах. У аснове метаду ляжыць слабая залежнасць адносін β -актыўнасці ^{241}Pu да сумарнай α -актыўнасці $^{238,239,240,242}\text{Pu}$ $A(\beta)/A(\alpha) \cong 50$ пры глыбінях выгарання звыш 7 МВт \times сут/кг.

Паказана, што па эксперыментальных дадзеных γ -спектраметры $^{134,137}\text{Cs}$ і тэрэтычных ацэнках напрацаваных мас ^{131}I , $^{133,134,137}\text{Cs}$ магчыма частковая рэканструкцыя экспазіцыйнай дозы ад ^{131}I у месцы выпадзення радыёактыўных ападкаў.

Даследаваны сарбцыённыя характарыстыкі шэрагу сарбентаў арганічнага паходжання ў адносінах да цяжкіх металаў, у тым ліку і радыёнуклідаў.



Summary

Pascoal Antonio Mussuco Napoleao. Early determination of the content of the radionuclides ^{90}Sr , ^{131}I , $^{238-242}\text{Pu}$ in fresh emergency nuclear ejections.

Key words: radionuclides; RBMK Chernobyl NPP reactor; depletion of nuclear fuel; fission fragments; nuclear fuel; plutonium; uranium; strontium-90; iodine-131; caesium-137; radioecology; Poisson distribution; sorbents; sorption of radionuclides.

It is shown that within the thermal reactor constant power approximation the cumbersome manipulation of summation over separate heat-releasing assemblies (HRA), applied earlier to the estimation of the total amount of nuclides produced in the active zone of the reactor, can be reduced to a simple static processing of the specific masses of produced nuclides m_{spec} (averaging over the depletion W at a given depletion depth $W_{\text{a.z}}$ averaged over the active zone of the reactor is performed with the help of the Poisson or Gauss distributions).

A new express method of determination (for several hours) of the ^{90}Sr content in fresh emergency reactor ejections is proposed. The method is based on the use of a weak dependence of the ratios of the activities $A(^{89}\text{Sr})A(^{106}\text{Ru})/A(^{90}\text{Sr})A(^{103}\text{Ru})$, $A(^{89}\text{Sr})A(^{134}\text{Cs})/A(^{90}\text{Sr})A(^{137}\text{Cs})$ on the depletion depth. The method involves the preliminary extraction of strontium from an investigated specimen with the help of dicyclohexyle-18-crown-6. The sensitivity of the method is of the order of 0.1 Bq.

A theoretical proof of a new high-sensitivity method of determination of the content of the α -emitting plutonium isotopes $^{238,239,240,242}\text{Pu}$ in emergency reactor ejections is presented. The method is based on the use of a weak dependence of the ratio of the β -activity of ^{241}Pu to the α -activity of $^{238,239,240,242}\text{Pu}$, $A(\beta)/A(\alpha) \cong 50$ at a depletion depth of more than 7 MW \times day/kg.

It is shown that experimental data obtained with γ -spectrometry of $^{134,137}\text{Cs}$ and theoretical estimations of the mass of produced ^{131}I , $^{133,134,137}\text{Cs}$ provide a means for partial reconstruction of the exposure doze of ^{131}I in the place of radioactive fallout.

The sorption characteristics of a number of sorbents of the organic origin in relation to heavy metals including radionuclides were investigated.



Подписано в печать 1.03.2000. Формат 60х84/16. Бумага офсетная.

Печать офсетная. Тираж 100 экз. Зак. 2/3.

Белорусский Государственный Университет.

Лицензия ЛВ № 315 от 14.07.98.

220050, Минск, пр. Ф. Скорины, 4.

Отпечатано в Издательском центре БГУ.

220030, Минск, ул. Красноармейская, 6.

2Ag40780



8000000 1854 108