

МИНИСТЕРСТВО НАУКИ И ВЫСШЕГО ОБРАЗОВАНИЯ
РОССИЙСКОЙ ФЕДЕРАЦИИ

Федеральное государственное автономное образовательное
учреждение высшего образования
«СЕВАСТОПОЛЬСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ»

ИНСТИТУТ ЯДЕРНОЙ ЭНЕРГИИ И ПРОМЫШЛЕННОСТИ

Кафедра «Радиоэкология и экологическая безопасность»

**МЕТОДИКА РАСЧЕТА РАДИОАКТИВНЫХ ИЗОТОПОВ
ХИМИЧЕСКИХ ЭЛЕМЕНТОВ – СОСТАВЛЯЮЩИХ
ВОЗДУШНОЙ СРЕДЫ НА ПРИМЕРЕ ТРИТИЯ,
РАДИОУГЛЕРОДА И АРГОНА-41
при облучении воздушной среды тепловыми нейтронами**

.....

Методические указания

Севастополь
СевГУ
2020

УДК 504.3.054:539.16/.17(076.1)

ББК 26.23я73

М 54

Р е ц е н з е н т:

Б.М. Касьянов – технический директор АО «РАОПРОЕКТ»

Составитель: М. А. Фролова

М 54 Методика расчета радиоактивных изотопов химических элементов – составляющих воздушной среды на примере трития, радиоуглерода и аргона-41 при облучении воздушной среды тепловыми нейтронами : метод. указания / сост. М. А. Фролова ; Министерство науки и высшего образования РФ, ФГАОУ ВО «Севастопольский государственный университет», Институт ядерной энергии и промышленности, кафедра «Радиоэкология и экологическая безопасность». – Севастополь : СевГУ, 2020. – 58 с. – Текст : непосредственный.

Приведена методика выполнения расчетов по определению количества загрязняющих веществ, попадающих в окружающую среду при работе ядерного реактора на мощности.

Методика предназначена для самостоятельной работы студентов по направлению подготовки 05.03.06 Экология и природопользование.

УДК 504.3.054:539.16/.17(076.1)

ББК 26.23я73

Методические указания рассмотрены и рекомендованы на заседании кафедры радиоэкологии и экологической безопасности, протокол № 3 от 24 октября 2019 г.

СОДЕРЖАНИЕ

ВВЕДЕНИЕ.....	4
ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНО-АНАЛИТИЧЕСКОЕ ОПРЕДЕЛЕНИЕ РАСПРЕДЕЛЕНИЯ ПЛОТНОСТИ ПОТОКА ТЕПЛОВЫХ НЕЙТРОНОВ ПО ЦЕНТРАЛЬНОЙ ВЕРТИКАЛЬНОЙ ОСИ АКТИВНОЙ ЗОНЫ И ЗАМЕДЛИТЕЛЯ.....	6
АКТИВАЦИЯ СОСТАВЛЯЮЩИХ ВОЗДУХА.....	25
Образование радиоуглерода в активной зоне ядерного реактора.....	27
Образование трития в активной зоне ядерного реактора.....	34
Генерация аргона-41 в активной зоне ядерного реактора.....	43
ЗАКЛЮЧЕНИЕ.....	53
ИСПОЛЬЗОВАННЫЕ ИСТОЧНИКИ.....	54

ВВЕДЕНИЕ

Исследовательский ядерный реактор ИР-100, располагаясь в черте города, является активной компонентой урбанистической структуры специфического характера. Генерируемые в активной зоне реактора загрязняющие вещества являются радиоактивными нуклидами зачастую либо с большим периодом полураспада, либо с высокоэнергетическим излучением, либо являются активными элементами с точки зрения биологической значимости.

Зачастую определение количественных и качественных параметров, сгенерированных в активной зоне радионуклидов, имеющейся в наличии приборной базой, не представляется возможным. В этой связи актуальными являются теоретические и прикладные исследования системных связей и закономерностей функционирования объекта использования атомной энергии – исследовательской ядерной установки с точки зрения генерации радионуклидов, ориентированные на повышение качества обеспечения экологической и радиационной обстановки на объекте. Результатом исследований выступает разработка методики расчета радиоактивных изотопов химических элементов на основании экспериментально-аналитических измерений параметров, влияющих на скорость и объем генерации радионуклидов.

В методике представлена последовательность операций их приведен пример из решения на примере исследовательского ядерного реактора ИР-100: определено значение плотностей потоков нейтронов реакторного спектра во всех экспериментальных устройствах ИР-100 с помощью аттестованных метрологической организацией ВНИИФТРИ активационных детекторов типа АКН-Т-10 и АКН; представлен подробный анализ составляющих воздуха, которые являются источниками биологически наиболее вредных радионуклидов (^{14}C , ^3H , ^{41}Ar) в полях тепловых нейтронов, плотность которых в процессе эксплуатации реактора и использования

первой загрузки ядерного топлива, увеличилась; физические и математические модели активации радионуклидов с учетом значений активирующего фактора; путем решения математических моделей представлено определение количественных характеристик указанных радионуклидов в динамических процессах и определены параметры, которые влияют на количественные характеристики (скорость образования, плотность потока нейтронов, время работы реактора).

Разработка методики расчета радиоактивных изотопов химических элементов составляющих воздушной среды проводилась на примере трития, радиоуглерода и аргона-41; использовались полюсные модели элементов и систем. При этом количественные значения подтверждены измерением объемной активности с пересчетом на активность аргона-41 с использованием прибора радиометра аэрозольно-газового РВ-4.

Приведен анализ полученных данных с позиций обеспечения радиоэкологической безопасности объекта ИР-100 в свете требований новых руководящих документов.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНО-АНАЛИТИЧЕСКОЕ ОПРЕДЕЛЕНИЕ РАСПРЕДЕЛЕНИЯ ПЛОТНОСТИ ПОТОКА ТЕПЛОВЫХ НЕЙТРОНОВ ПО ЦЕНТРАЛЬНОЙ ВЕРТИКАЛЬНОЙ ОСИ АКТИВНОЙ ЗОНЫ И ЗАМЕДЛИТЕЛЯ

По мере работы реактора происходят изменения в изотопическом составе топливных блоков. Так как со временем количество делящегося вещества в ядерном реакторе на тепловых нейтронах (водо-водяных реакторах) уменьшается, то для поддержания постоянства мощности должна увеличиваться плотность потока тепловых нейтронов.

А генерация радионуклидов в теплоносителе реактора ИР-100, которые могут влиять на окружающую среду, зависит от плотности потока нейтронов в области активной зоны (АЗ), через которую проходит теплоноситель, и времени нахождения теплоносителя в нейтронном поле известной плотности.

Теплоноситель в реакторе ИР-100 входит в активную зону снизу (рис. 1), поднимается по мере нагрева вверх и, охлаждаясь в верхней части, на большой высоте над АЗ, по кольцевому зазору (вне АЗ) поступает на вход активной зоны. Отражателем сверху и снизу активной зоны является сам теплоноситель (вода высокой чистоты) с толщинами более 4 длин диффузии нейтронов в воде. Это говорит о том, что его эффективность соответствует толщине отражателя бесконечных размеров и равна отражающей способности воды (альбедо) для нейтронов. Боковые отражатели представлены графитовыми кладками толщиной 400 мм, что соответствует 50% от полного альбедо нейтронов в графите [1].

Таким образом, отражатель нейтронов вокруг активной зоны реактора ИР-100 симметричен, а его эффективности соответствуют полному альбедо нейтронов в воде (низ и верх активной зоны) и 50 % от полного альбедо в графите (боковой отражатель). Это, согласно [2] говорит о том, что нейтронное поле в силу гетерогенной однородности цилиндрической АЗ симметрично относительно центра в активной зоне и отражателе (нижнем,

верхнем и боковом). Таким образом, теплоноситель, проходя через АЗ снизу вверх, последовательно попадает в три области нейтронного поля, характеризуемые тремя значениями средней плотности потока тепловых нейтронов: нижний отражатель, активная зона, верхний отражатель. В силу симметричности поля средние плотности потока в отражателях снизу и сверху будут зависеть только от мощности реактора и будут равны.

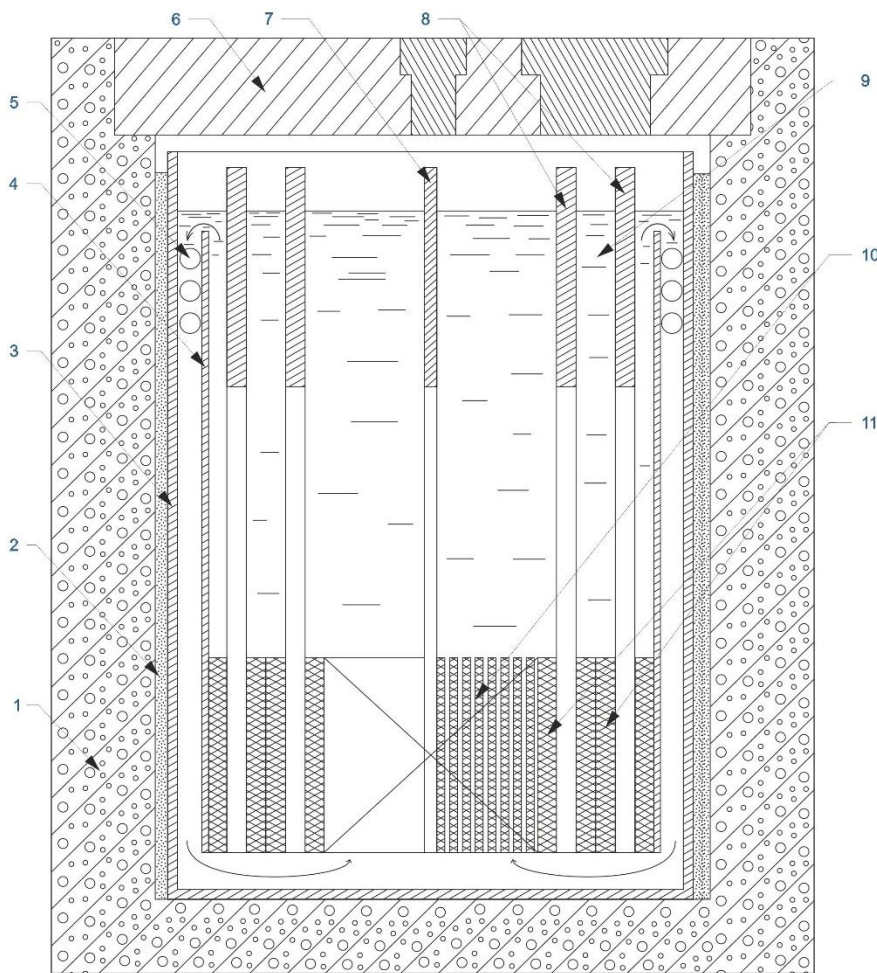


Рисунок 1 – Продольный разрез ядерного реактора ИР-100:

- 1 – биологическая защита, бетон; 2 – песок; 3 – бак реактора; 4 – обечайка;
- 5 – теплообменник второго контура; 6 – крышка реактора; 7 – центральный экспериментальный канал; 8 – вертикальные экспериментальные каналы;
- 9 – теплоноситель-замедлитель; 10 – активная зона; 11 – графитовые отражатели

Графически распределение плотности потока тепловых нейтронов представлено на рис. 2.

Как видно из рисунка 1, плотность потока неравномерно распределена по высоте активной зоны – максимум плотности потока наблюдается в центре активной зоны, на периферии – минимум.

В связи с этим возникает необходимость контроля плотности потока нейтронов с определенной точностью по всему объему активной зоны [3].

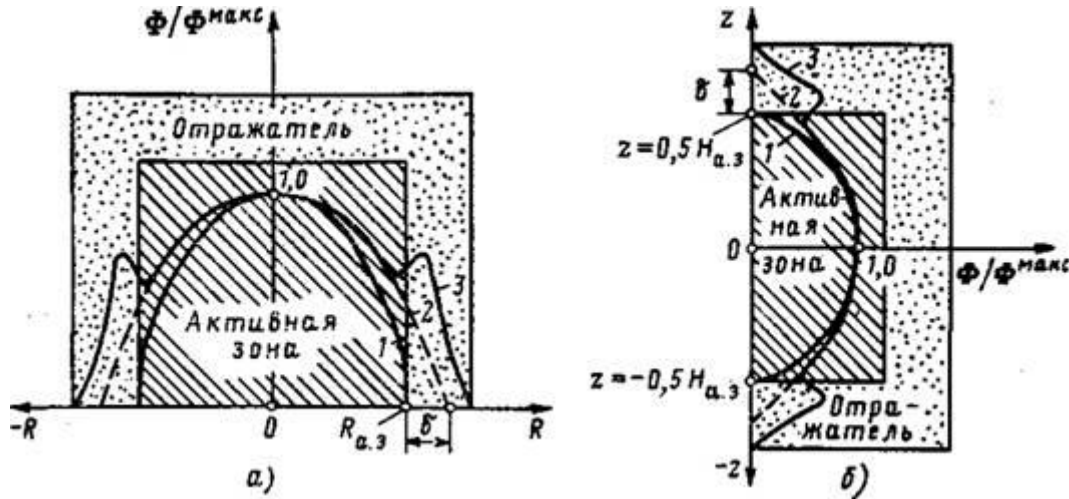


Рисунок 2 – Характер распределения плотности потока тепловых нейтронов по радиусу (а) и высоте (б) гомогенной критической активной зоны: 1 - без отражателя; 2 - с отражателем (расчетная кривая); 3 - с отражателем (фактическая кривая)

Ранее проведенные исследования в период определения нейтронно-физических характеристик реактора ИР-100 проектантам НИКИЭТ и ВНИИФТРИ показали, что максимальные и средние плотности потоков в АЗ и отражателе пропорциональны мощности реактора. Это положение позволяет использовать нейтронно-активационный метод для численного определения плотностей потока тепловых нейтронов в АЗ и отражателе на любой стационарной мощности реактора с продолжительностью облучения детекторов, вытекающей из возможности измерения их активности на аттестованной измерительной установке.

С помощью нейтронно-активационного анализа возможно параллельно проводить эксперименты по нескольким активационным детекторам,

содержащим нуклиды разных элементов, что позволяет получить более достоверные результаты, уменьшая процент погрешности.

Суть метода состоит в том, что под действием нейтронов в нерадиоактивных веществах могут образоваться радиоактивные ядра, т.е. нерадиоактивные вещества приобретают наведенную активность (активируются). Наведенная активность прямо пропорциональна плотности потока нейтронов [4, 5, 6, 7].

Захват нейтронов ядрами нуклидов ведет к образованию радиоактивных ядер. По мере облучения вещества нейтронами радиоактивные ядра накапливаются тем быстрее, чем больше плотность потока нейтронов. Следовательно, активность облученного вещества может служить мерой плотности потока нейтронов, вызвавших эту активность.

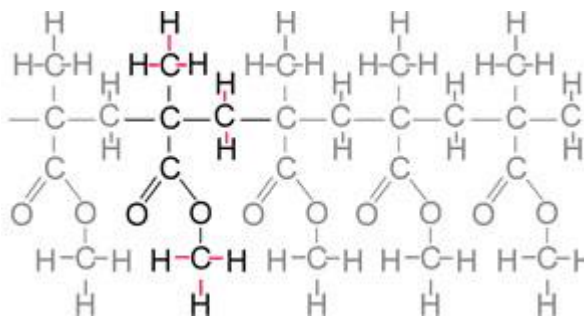
Настоящая глава и посвящена рассмотрению определения очень важной характеристики нейтронного поля реактора - функции распределения плотности потока тепловых нейтронов по центральной вертикальной оси активной зоны и замедлителя.

Определение функции распределения осуществляется по данным, полученным из проведённых экспериментов с активацией стандартных аттестованных детекторов из наборов АКН-Т потоком нейтронов.

Стандартные детекторы перед облучением упаковывают в материал, практически не активирующийся под действием нейтронов (или дающий продукты активации, которые быстро распадаются). По окончании облучения после некоторой выдержки измеряют спектр наведенного γ -излучения каждой пробы и по интенсивности γ -линий соответствующих радионуклидов рассчитывают наведенную активность облученных детекторов.

Удобный материал для упаковки проб перед активацией — органическое стекло или полиметилметакрилат (ПММА) — синтетический полимер метилметакрилата, термопластичный прозрачный пластик марки плексиглас.

Химическая формула полная:



Химическая формула сокращенная: $\text{CH}_2=\text{C}(\text{CH}_3)\text{COOCH}_3$.

Линейка из этого материала, герметизируется изолентой. Плексиглас практически чистый, без примесей, не активизируется, имеет удовлетворительную радиационную стойкость и выдерживает облучение плотностью потока $1 \cdot 10^{13} \text{ н} \cdot \text{см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ в течение 10 - 20 ч.

Так же для определения плотности потока нейтронов тепловых энергий необходимо использовать кадмиевые чехлы.

Кадмий толщиной 0,5 мм практически полностью поглощает тепловые нейтроны, пропуская нейтроны с энергией выше 0,4 эВ, позволяя тем самым облучать детекторы только быстрыми нейтронами.

При расчете активности, наведенной тепловыми нейтронами, одной из значимых величин является сечение активации тепловыми нейтронами σ_a . Не менее важной величиной, прямо пропорциональной активности наведенной тепловыми нейтронами, является количество исходных атомов в детекторе $N_{яд}$, которое указано в СВИДЕТЕЛЬСТВЕ о метрологической аттестации набора активационных комплектов нейтронных тепловых АКН-Т-10 № 605 [8].

Таким образом, зависимость активности детектора от плотности потока нейтронов в области энергий тепловых нейтронов можно выразить соотношением

$$A_{тн} = \sigma_a \cdot N_{яд} \cdot \varphi \cdot (1 - e^{-\lambda_{дем} \cdot t}), \quad (1)$$

где A_{mn} – активность, наведенная тепловыми нейтронами, Бк; σ_a – сечение активации детектора тепловыми нейтронами, см²; $N_{яд}$ – количество исходных атомов в детекторе, ядер·г⁻¹; φ – плотность потока тепловых нейтронов, н·см⁻²·с⁻¹; $\lambda_{дет}$ – постоянная распада образующихся радиоактивных ядер, с⁻¹; $t_{обл}$ – время облучения, с.

Для определения активности, наведенной тепловыми нейтронами необходимо использовать пары детекторов, один из которых помещается в кадмиевый чехол, который практически полностью поглощает тепловые нейтроны. Поэтому детекторы, помещенные в экспериментальные каналы в кадмиевом чехле, облучаются только быстрыми нейтронами, а детекторы без кадмиевого чехла облучаются нейтронами всего реакторного спектра.

Активности детекторов определяются инструментально и разность между активностями детекторов, облучаемых без чехла $A(t)$ и облучаемых в чехле $ACd(t)$, будет являться активностью, наведенной тепловыми нейтронами $A_m(t)$.

$$A_m(t) = A(t) - A_{Cd}(t) \quad (2)$$

Следовательно, зная значение активности $A_m(t)$, используя выражение (1) можно определить значение плотности потока тепловых нейтронов [9].

Именно этот метод лег в основу определения плотности потока тепловых нейтронов в активной зоне и отражателе исследовательского реактора ИР-100.

Так как активная зона от центра симметрична, то, чтобы охватить всю активную зону, высота которой составляет 50 см и отражатель, было выбрано 20 детекторов, распределённых на линейке из оргстекла длиной в 50 см в 20-ти гнёздах. Расположение детекторов на линейке было таким, чтобы нижняя дуга 1-го детектора совпадала с центром АЗ, а верхняя дуга последнего детектора находилась в отражателе.

Диаметр гнезда составлял 0,51 см. Расстояние между гнездами в паре 10 мм, расстояние между центрами пар 20 мм.

Для проведения эксперимента были выбраны медные детекторы. Однако значения абсолютной наведенной активности дают только золотые детекторы ($^{197}_{79}\text{Au}$).

Поэтому для определения абсолютной плотности потока в центре активной зоны из наборов нейтронно-активационных детекторов АКН-10 №605 были выбраны детекторы позволяющие произвести их облучение нейтронами с энергиями соответствующими области тепловых нейтронов, а именно: ^{63}Cu (№ 431-440), ^{197}Au (№ 041-044) (основные характеристики детекторов представлены в табл. 1).

Облучение возможно проводить двумя способами:

1) выбранные детекторы облучались парами – один детектор в кадмиевом чехле и один без кадмиевого чехла на одной линейке;

2) выбранные детекторы помещались в две линейки параллельно, в одну линейку устанавливались детекторы без чехлов, в другую – с чехлами; облучение детекторов в чехле и без него проводилось с целью определения активности наведенной тепловыми нейтронами.

Таблица 1 - Ядерно-физические характеристики детекторов

№	Реакция	λ , с ⁻¹	E_γ МэВ	η , %	σ_a барн
1	$^{197}\text{Au}(n,\gamma)^{198}\text{Cu}$	$2,97 \cdot 10^{-6}$	0,412	0,955	$98,7 \pm 0,2$
2	$^{63}\text{Cu}(n,\gamma)^{64}\text{Cu}$	$1,49 \cdot 10^{-5}$	0,511	0,368	$4,5 \pm 0,1$

С учетом ядерно-физических характеристик детекторов и расчетных значений интегральных плотностей потоков были определенные режимы облучения детекторов, а именно время облучения $t_{обл}$, мощность реактора в режиме облучения $W_{обл}$ и время выдержки после облучения $t_{выл}$ (табл. 2).

Облучение детекторов проводилось в центре активной зоны в центральном экспериментальном канале. Выдержка медных детекторов

после облучения осуществлялась в сухой сборке СС4, куда они помещались на время необходимое для снижения активности полученных радионуклидов до безопасного уровня и до значений, соответствующих диапазону измерения используемых спектрометров. Золотые детекторы в СС4 не выдерживались, так как их активность на момент остановки реактора была в допустимых пределах и позволяла сразу после извлечения детекторов из активной зоны провести измерение на спектрометрическом комплексе.

Таблица 2 - Режимы облучения нейтронно-активационных детекторов

№	Детектор	Реакция	$t_{обл}, c$	$W_{обл}, кВт$	$t_{выл}, часов$
1	^{197}Au (№ 041-044)	$^{197}\text{Au}(n,\gamma)^{198}\text{Cu}$	$1,2 \cdot 10^3$	2	-
2	^{63}Cu (№ 431-434)	$^{63}\text{Cu}(n,\gamma)^{64}\text{Cu}$	$1,2 \cdot 10^3$	2	48

После проведения измерений на спектрометрическом комплексе КС-100С и на полупроводниковом детекторе КАМБЕРРА.

Учитывая, что детекторы облучались парами (в чехле из кадмия и без чехла), то, согласно (2) можно определить активность, наведенную только тепловыми нейтронами. В табл. 3 приведены значения активностей и плотностей потоков, наведенных только тепловыми нейтронами.

Далее, используя уравнение активации, связывающее активность и плотность потока (1), определялась плотность потока тепловых нейтронов через измеренную активность детекторов.

Значения измеренной активности и вычисленной плотности потока нейтронов тепловых энергий приведены в табл. 3.

Согласно расчетным данным, плотности потока тепловых нейтронов, как по золоту, так и по меди приблизительно равны. Это позволяет использовать медные детекторы при проведении эксперимента, и считать полученные данные истинными значениями.

Экспериментальными каналами выбраны центральный ЦЭК и восемь вертикальных каналов ВЭКи. Для эксперимента были выбраны стандартные детекторы, содержащие нуклид меди ^{63}Cu , собранные на линейке из

оргстекла и распределённые по длине линейки, соответствующей высоте активной зоны и отражателя.

Таблица 3 - Значения плотностей потоков тепловых нейтронов в центре активной зоны

№	Детектор	Расстояние от центра АЗ (мм)	Активность, Бк	Плотность потока тепловых нейтронов, $\text{н}\cdot\text{см}^{-2}\cdot\text{с}^{-1}$
1	^{197}Au (№ 041-042)	135	$3,056189\cdot 10^6$	$4,306\cdot 10^{12}$
2	^{197}Au (№ 043-044)	175	$2,354243\cdot 10^6$	$3,316\cdot 10^{12}$
3	^{63}Cu (№ 431-432)	135	$8,11813\cdot 10^6$	$3,826\cdot 10^{12}$
4	^{63}Cu (№ 433-434)	175	$6,762368\cdot 10^6$	$3,193\cdot 10^{12}$

При проведении эксперимента линейка загружалась в экспериментальный канал дважды: сначала детекторы помещались в гнезда линейки без кадмиевых чехлов, во второй раз – в чехлах.

В качестве чехлов использовались стандартные экраны из кадмия, представляющие собой круг, соответствующий диаметру детектора. Так как при облучении линейки с детекторами в кадмиевых чехлах необходимо было исключить влияние кадмия друг на друга, то детекторы располагались через 4 см, то есть через один на линейке. Данное расстояние определено в ходе экспериментальных работ по выявлению взаимовлияния кадмия. Причем расстояние между детекторами в 4 см эффективно лишь при радиусе кадмиевых чехлов в 1,5 см и массе 10 г. Такие условия были соблюдены при проведении эксперимента.

Линейки поочередно загружались таким образом, чтобы геометрия расположения первой погруженной линейки совпала с геометрией второй погруженной линейки. Это позволило через разность наведенных активностей детекторов определить активность, наведенную тепловыми

нейтронами, а, соответственно, и плотность потока тепловых нейтронов в каждой точке расположения детектора.

Линейка опускалась в экспериментальный канал на проволоке из электротехнического алюминия таким образом, чтобы центр расположения между первым и вторым детекторами на линейке совпал с геометрическим центром активной зоны.

Для последовательных загрузок режим облучения был одинаков. То есть линейки облучались по 2 часа на мощности 2 кВт. Положение регулирующих стержней при выводе реактора на мощность и реактивность соответствовала критериям, отраженным в [9].

После облучения, линейка с активированными детекторами меди первой загрузки (без чехлов) при измеренной мощности дозы около $100 \text{ мР}\cdot\text{ч}^{-1}$, была помещена в канал сухой сборки СС4 для снижения наведённой активности на 1 сутки, с учётом величины периода полураспада нуклида $^{64}\text{Си}$.

Через сутки линейка с детекторами при измеренной мощности дозы, равной приблизительно $18 \text{ мР}\cdot\text{ч}^{-1}$, была извлечена из СС4, разобрана - вытащены из гнезд (детекторы 1 загрузки) и переложены в контейнер для передачи на спектрометрический комплекс КС-100С для измерения.

Линейка с активированными детекторами меди второй загрузки (с чехлами) при измеренной мощности дозы около $20 \text{ мР}\cdot\text{ч}^{-1}$ без выдержки в СС4 была передана на спектрометрический комплекс КС-100С для измерения.

Линейка, кадмиевые чехлы и вспомогательные материалы помещены в боксы для дезактивации и утилизации.

Результаты измерений на спектрометрическом комплексе (далее – СМК) КС-100С фиксировались на бумажной ленте цифropечатающего устройства (цифropечать).

Каждая лента обрабатывалась аналитически и через площадь пиков определялась активность детектора в Бк.

Результаты измерения наведённой активности на СМК представлены в табл. 4.

Реальное время измерения на СМК каждого детектора было 100 с.

В спектрометрическом комплексе расстояние от детектора до полупроводникового детектора (далее – ПГТД) - анализатора гамма импульсов было выставлено 82 мм. При величине диаметра детекторов 0,51 см, детекторы рассматривались как точечные источники [10].

Определялась средневзвешенная активность по энергиям в пике скоростей счёта. Измерения наведённой активности каждого детектора были проведены 3 раза по 100 с.

По наведённой активности была рассчитана плотность потока тепловых нейтронов.

Плотность потока тепловых нейтронов φ представляет собой сложную функцию, зависящую от многих параметров.

$$\varphi = G(A, m, M, \Theta, \gamma, \sigma, \lambda, t_{обл}), \quad (3)$$

где $t_{обл}$ – эффективное время облучения детекторов, с; A – гамма-активность детектора на момент останова реактора, (Бк); φ – плотность потока тепловых нейтронов, $\text{н} \cdot \text{см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$; m – масса детектора, г; M – атомный вес нуклида ^{63}Si , а.е.м.; θ – распространенность нуклида в природе, %; γ – выход гамма-квантов на распад активированного детектора, %; $\sigma_{акт}$ – микроскопическое сечение активации, см^2 ; λ – постоянная распада нуклида ^{64}Si , с^{-1} .

Затем вычислялась усреднённая плотность потока по всему потоку тепловых, промежуточных и быстрых нейтронов, и плотность потока по нейтронам в вырезанном диапазоне энергий. После определялась абсолютная плотность потока нейтронов (согласно соотношения 2). Результатом расчетов явились значения плотности потока тепловых нейтронов по высоте активной зоны, пространственно распределённые по центральной вертикальной оси

канала ЦЭК, а также соответствующие высоте наведённые активности. Эти данные представлены в табл. 4.

Таблица 4 - Значения плотностей потока тепловых нейтронов по высоте активной зоны и отражателя центрального экспериментального канала реактора ИР-100

№	Нуклид детектора	Расстояние от центра АЗ (мм)	Средневзвешенная активность детектора, Бк	Плотность потока тепловых нейтронов, $\text{н}\cdot\text{см}^{-2}\cdot\text{с}^{-1}$ при $W=2\text{кВт}$	Плотность потока тепловых нейтронов, $\text{н}\cdot\text{см}^{-2}\cdot\text{с}^{-1}$ при $W=200\text{кВт}$
1	Cu-64	0	$4,258\cdot 10^5$	$5,02\cdot 10^{10}$	$5,02\cdot 10^{12}$
2	Cu-64	20	$4,2338\cdot 10^5$	$5,17\cdot 10^{10}$	$5,17\cdot 10^{12}$
3	Cu-64	40	$4,159\cdot 10^5$	$5,079\cdot 10^{10}$	$5,079\cdot 10^{12}$
4	Cu-64	60	$4,0355\cdot 10^5$	$4,928\cdot 10^{10}$	$4,928\cdot 10^{12}$
5	Cu-64	80	$3,865\cdot 10^5$	$4,72\cdot 10^{10}$	$4,72\cdot 10^{12}$
6	Cu-64	100	$3,649\cdot 10^5$	$4,456\cdot 10^{10}$	$4,456\cdot 10^{12}$
7	Cu-64	120	$3,39106\cdot 10^5$	$4,141\cdot 10^{10}$	$4,141\cdot 10^{12}$
8	Cu-64	140	$3,09298\cdot 10^5$	$3,777\cdot 10^{10}$	$3,777\cdot 10^{12}$
9	Cu-64	160	$2,758\cdot 10^5$	$3,368\cdot 10^{10}$	$3,368\cdot 10^{12}$
10	Cu-64	180	$2,39\cdot 10^5$	$2,92\cdot 10^{10}$	$2,92\cdot 10^{12}$
11	Cu-64	200	$1,996\cdot 10^5$	$2,438\cdot 10^{10}$	$2,438\cdot 10^{12}$
12	Cu-64	220	$1,5788\cdot 10^5$	$1,928\cdot 10^{10}$	$1,928\cdot 10^{12}$
13	Cu-64	240	$1,1415\cdot 10^5$	$1,394\cdot 10^{10}$	$1,394\cdot 10^{12}$
14	Cu-64	260	$0,69188\cdot 10^5$	$0,8449\cdot 10^{10}$	$0,8449\cdot 10^{12}$
15	Cu-64	280	$0,524096\cdot 10^5$	$0,64\cdot 10^{10}$	$0,64\cdot 10^{12}$
16	Cu-64	300	$0,507718\cdot 10^5$	$0,62\cdot 10^{10}$	$0,62\cdot 10^{12}$
17	Cu-64	320	$0,66945\cdot 10^5$	$0,8175\cdot 10^{10}$	$0,8175\cdot 10^{12}$
18	Cu-64	340	$1,2365\cdot 10^5$	$1,51\cdot 10^{10}$	$1,51\cdot 10^{12}$
19	Cu-64	360	$1,37165\cdot 10^5$	$1,675\cdot 10^{10}$	$1,675\cdot 10^{12}$
20	Cu-64	380	$0,8066165\cdot 10^5$	$0,985\cdot 10^{10}$	$0,985\cdot 10^{12}$
21	Cu-64	400	$0,3480325\cdot 10^5$	$0,425\cdot 10^{10}$	$0,425\cdot 10^{12}$

По результатам расчётов были построены графики функции зависимость плотности потока φ от высоты h активной зоны по центральной вертикальной оси канала ЦЭК.

На рис. 3 приведен график функции $\varphi = \varphi(h) \text{ н}\cdot\text{см}^{-2}\cdot\text{с}^{-1}$, у которого аргументом служит высота h активной зоны. Максимум функция достигается в точке $h = 0$ см от центра АЗ со значением $\varphi(h) = 5,2 \cdot 10^{12} \text{ н}\cdot\text{см}^{-2}\cdot\text{с}^{-1}$. На этой высоте находится геометрический центр АЗ, где и отмечается максимум плотности потока тепловых нейтронов.

Учитывая, что плотность потока тепловых нейтронов распределяется симметрично относительно центра активной зоны, можно представить распределение плотности потока по всей высоте канала. Данное распределение представлено на рис. 4.

Сравнивая полученные результаты с экспериментальными графиками, приведёнными в [2], можно видеть, что наши расчёты по измерениям достаточно близки с измерениями, представленными в [2].

Для дальнейших вычислений необходимо имеющиеся данные по распределению плотности потока тепловых нейтронов привести к среднему значению. Для этого был применен метод трапеций. Согласно вычислений - средняя плотность потока тепловых нейтронов по высоте активной зоны и отражателя больше максимума плотности потока в отражателе (рис. 4). Таким образом, принято решение пренебречь всплеском φ в отражателе при дальнейшем определении плотности потока в экспериментальных каналах.

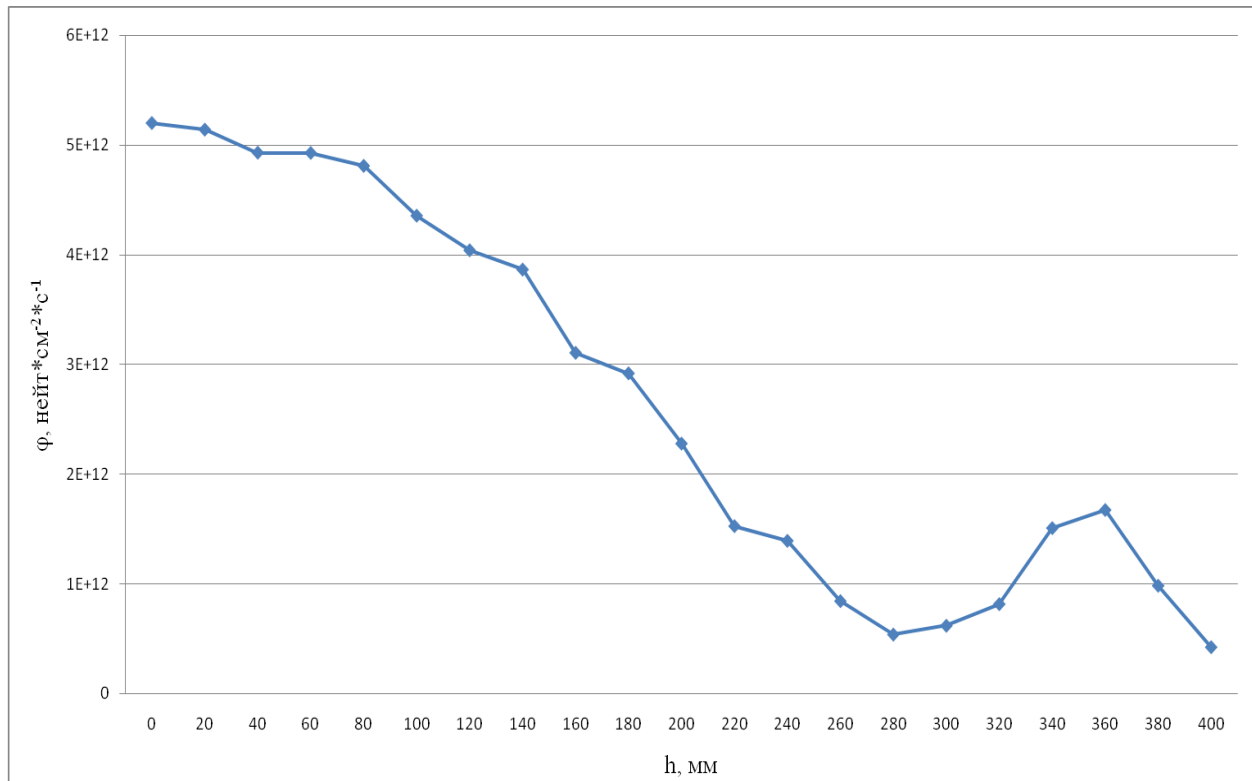


Рисунок 3 – Распределение плотности потока тепловых нейтронов по высоте активной зоны

Однако истинное среднее значение плотности потока тепловых нейтронов активной зоны находится нормированием экспериментально измеренной величины абсолютной плотности потока тепловых нейтронов [12]:

$$\overline{\varphi_{az}} = \frac{\varphi_{mn}}{K_V}, \quad (4)$$

где $\overline{\varphi_{az}}$ – среднее значение плотности потока тепловых нейтронов активной зоны, $\text{н} \cdot \text{см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$; φ_{mn} – измеренная величина абсолютной плотности потока тепловых нейтронов, $\text{н} \cdot \text{см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$; K_V – объемный коэффициент неравномерности:

$$K_V = K_H \cdot K_R \quad (5)$$

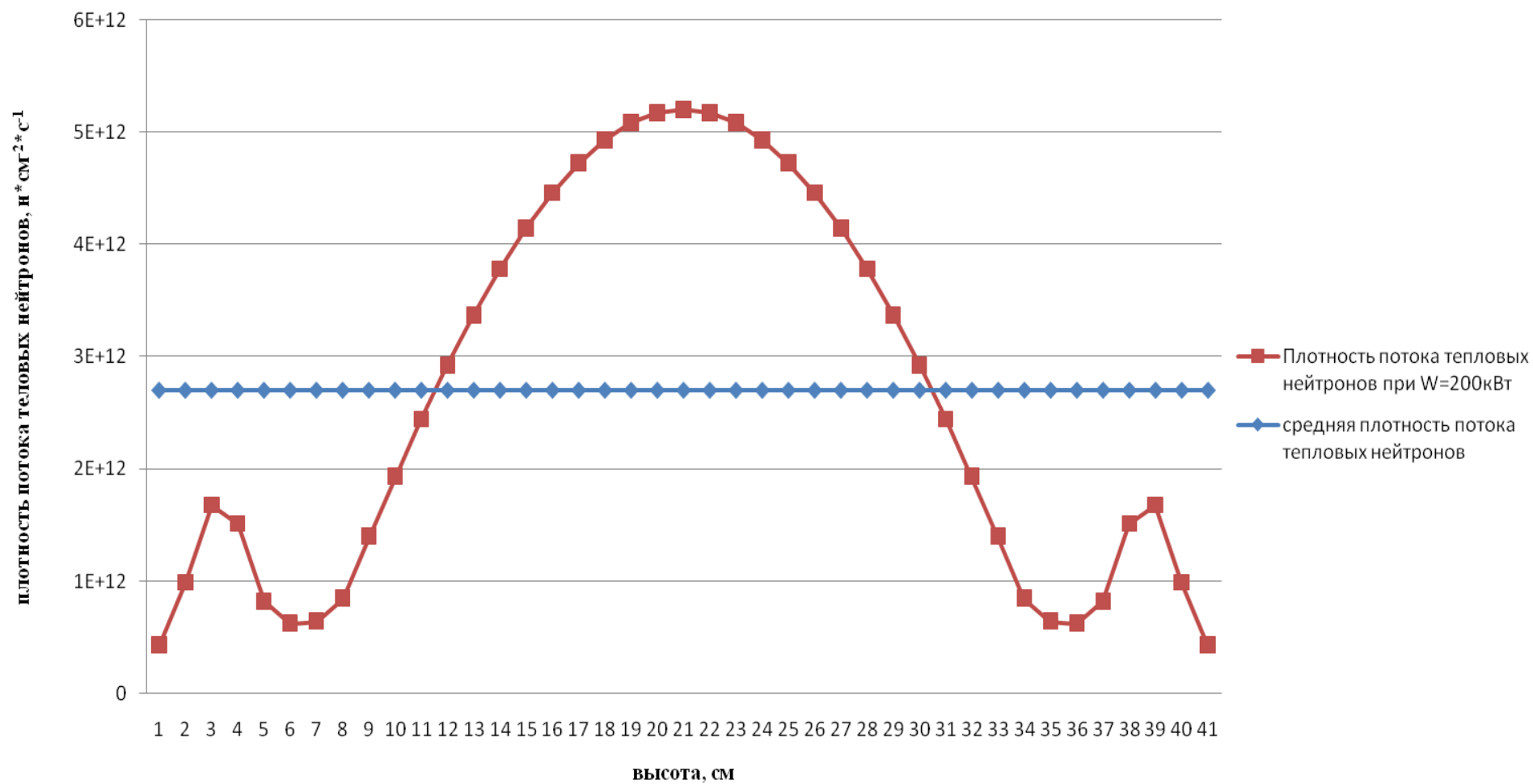


Рисунок 4 – Распределение плотности потока тепловых нейтронов по высоте активной зоны и отражателя

С учетом объемного коэффициента неравномерности распределения нейтронного поля среднее значение плотности потока тепловых нейтронов активной зоны $\varphi_{аз}$ равна $1,72 \cdot 10^{12} \text{ н} \cdot \text{см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$.

Придерживаясь вышеизложенной методики, были определены плотности потока тепловых нейтронов во всех вертикальных облучательных устройствах реактора ИР-100. Полученные данные приведены в табл. 5.

Таблица 5 - Распределение плотности потока тепловых нейтронов по вертикальной оси экспериментальных каналов исследовательского реактора ИР-100

№	Экспериментальный канал	Среднее значение плотности потока тепловых нейтронов $\text{н} \cdot \text{см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ при $W=200\text{кВт}$	Значение плотности потока тепловых нейтронов с учетом объемного коэффициента неравномерности $\text{н} \cdot \text{см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ при $W=200\text{кВт}$,
1	ВЭК-1	$1,596 \cdot 10^{12}$	$1,023 \cdot 10^{12}$
2	ВЭК-2	$1,56067 \cdot 10^{12}$	$1,00043 \cdot 10^{12}$
3	ВЭК-3	$4,86519 \cdot 10^{11}$	$3,1187 \cdot 10^{11}$
4	ВЭК-4	$3,325 \cdot 10^{11}$	$2,13158 \cdot 10^{11}$
5	ВЭК-5	$1,167 \cdot 10^{12}$	$7,48 \cdot 10^{11}$
6	ВЭК-6	$1,39 \cdot 10^{12}$	$8,9 \cdot 10^{11}$
7	ВЭК-7	$4,33 \cdot 10^{11}$	$2,77 \cdot 10^{11}$
8	ВЭК-8	$3,16852 \cdot 10^{11}$	$2,03 \cdot 10^{11}$

Исследования определения плотности потока тепловых нейтронов в экспериментальных каналах ИР-100 проводилось с помощью набора АKN-T-3. Аттестованными характеристиками активационного набора АKN-T-3 является число ядер изотопа-мишени в детекторе и активность градуировочных детекторов. Значения аттестованных характеристик детекторов и градуировочных источников приведены в свидетельстве

АКН-Т-3 [13]. Однако многократное использование указанных детекторов приводит к снижению эффективности измерения за счет активации, хотя эта особенность учитывалась при определении режима облучения перед каждым экспериментом.

Детекторы набора АКН-Т-3 являются дорогостоящими, что не позволяет приобретать новый набор по истечению срока эксплуатации. Эталоны активности детекторов недолговечны по своей активности во времени, что затрудняет в дальнейшем определение эффективности измерений. Размеры эталонов стационарны, что позволяет проводить измерения только придерживаясь геометрии точечной. Все это приводит к увеличению погрешности результатов исследования. Для устранения вышеперечисленных недочетов было предложено произвести замену детекторов набора АКН-Т на более подходящие.

В связи с тем, что из набора АКН-Т наиболее часто используются золотые детекторы, было принято решение заменить детекторы ^{197}Au на детекторы, изготовленные из сусального золота, в которых метрологически аттестовано число ядер золота с учетом добавки серебра.

Из сусального золота отечественного производства изготавливаются детекторы, определенного диаметра, вырубая их просечкой из нержавеющей стали. Размеры детекторов могут варьироваться в широких пределах, но главное, чтоб в условиях измерения детектор был точечным. Этого легко добиться, выбирая нужный диаметр.

Далее необходимо аттестовать число ядер Au в листе сусального золота. Для этого можно использовать аналитический способ - по изготовленной геометрии. Для определения предварительной массы детектора находим площадь детектора по формуле

$$S_{\text{детектора}} = d_{\text{детектора}} \cdot \pi \cdot R^2, \quad (6)$$

Через формулу определения плотности материала детектора

$$m_{\text{детектора}} = \rho \cdot V_{\text{детектора}}, \quad (7)$$

находим его массу, зная, что объем детектора равен

$$V_{\text{детектора}} = S_{\text{детектора}} \cdot h_{\text{детектора}}. \quad (8)$$

Найденная масса детектора является средней. Предварительная масса необходима для выбора точности аналитических весов, с помощью которых детектора будут взвешены с определенной точностью.

Через полученную массу детектора определяется число ядер A в детекторе пользуясь уравнением связи массы с активностью

$$A = \lambda \cdot \frac{N_A}{M} \cdot m, \quad (9)$$

где λ – постоянная распада, с^{-1} , N – число ядер нуклида, N_A – число Авогадро, M – молекулярная масса, $\text{г} \cdot \text{моль}^{-1}$, m – масса, г.

При определении числа ядер золота в детекторе необходимо учесть процент содержания золота в листе сусального золота.

Состав сусального золота регламентирован [14]: марка ЗлСр 75-25 состоит из золота (74,7 - 75,3 %) и серебра (24,7 – 25,3 %). Допустимы в составе примеси: свинца (не более 0,005%), железа (0,15%), сурьмы (0,005 %), висмута (0,005 %).

Размер листа сусального золота так же регламентирован: длина 120 мм, ширина 70 мм, масса одной книжечки 1,60 г, листов в книжечке 60 [15].

Использование предлагаемого способа позволит значительно снизить расходы на приобретение аттестованных детекторов. При истечении

активности детектора во времени будет возможно изготовить новые эталоны за довольно короткий промежуток времени.

Для подтверждения возможности применения детекторов из сусального золота был повторно проведен эксперимент по определению плотности потока тепловых нейтронов, но уже с использованием сусального золота вместо медных детекторов [16]. Полученные значения приведены в табл. 6.

Таблица 6 - Значения плотностей потоков тепловых нейтронов в центре активной зоны при применении детекторов из сусального золота

№	Детектор	Расстояние от центра АЗ (мм)	Средневзвешенная активность детектора, Бк	Плотность потока тепловых нейтронов, $\text{н} \cdot \text{см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ при $W=2\text{кВт}$	Плотность потока тепловых нейтронов, $\text{н} \cdot \text{см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ при $W=200\text{кВт}$
1	С.З.	120	$3,39106 \cdot 10^5$	$4,15 \cdot 10^{10}$	$4,15 \cdot 10^{12}$
2	С.З.	140	$3,09298 \cdot 10^5$	$3,6 \cdot 10^{10}$	$3,6 \cdot 10^{12}$
3	С.З.	160	$2,758 \cdot 10^5$	$3,3 \cdot 10^{10}$	$3,3 \cdot 10^{12}$
4	С.З.	180	$2,39 \cdot 10^5$	$2,8 \cdot 10^{10}$	$2,8 \cdot 10^{12}$

Данные полученные в ходе эксперимента подтвердили возможность применения детекторов из сусального золота вместо детекторов набора АКН-Т для определения плотности потока нейтронов тепловых энергий; это видно при сравнении полученных данных табл. 6 с данными табл. 4.

Таким образом, проведённые измерения, осуществлённые с помощью группы стандартных медных детекторов набора АКН-Т, дали удовлетворительные результаты.

При мощности реактора $W = 2$ кВт максимальное значение плотности потока тепловых нейтронов в центре активной зоны равняется $\phi(h) = 5,2 \cdot 10^{10}$ н·см⁻²·с⁻¹.

Пространственное распределение плотности потока тепловых нейтронов отражает реальное распределение потока по высоте активной зоны для данного положения регуляторов системы защиты реактора. Сравнение измеренного распределения с распределением плотности потока по высоте активной зоны, полученное в [2], позволяет констатировать аналогичность характера этих распределений, что так же подтверждено исследованиями, проводимыми ранее [17-20].

Проведённые научно-исследовательская, расчётная и практическая работы по метрологии нейтронных полей реактора ИР-100 в части экспериментального определения распределённой по вертикали активной зоны и замедлителя плотности потока тепловых нейтронов выполнены с удовлетворительным результатом. Отмечены технические просчёты, которые необходимо в дальнейшем учесть.

Применённая на практике методика нейтронно-активационного анализа позволит в дальнейшем эффективно проводить подобные работы в случае необходимости повторного определения плотности потока тепловых нейтронов при выгорании топлива.

АКТИВАЦИЯ СОСТАВЛЯЮЩИХ ВОЗДУХА

Воздух имеет сложный состав и облучается в экспериментальном канале теми же нейтронами, что и исследуемые образцы, при этом могут образовываться радиоактивные вещества и его нуклидный состав изменяется. Эти радиоактивные вещества при открытии каналов могут попадать в помещения, посещаемые обслуживающим персоналом.

Исходя из этого, была поставлена задача проанализировать радиоэкологическую обстановку на массиве ИР-100 после извлечения

облученных образцов из вертикальных экспериментальных каналов, то есть выяснить каким образом изменяется удельная объемная активность воздуха на массиве при открытии каналов.

Для определения радионуклидов составляющих радиационную обстановку на массиве необходимо определить какие из нуклидов, составляющих воздух, дают радиоактивные элементы.

Для этого для каждого нуклида составляющих воздуха была составлена реакция взаимодействия нуклида с нейтронами тепловых энергий. Такие нуклиды как $^{16}_8\text{O}$, $^{20}_{10}\text{Ne}$, $^{21}_{10}\text{Ne}$, ^1_1H , ^2_1H , $^{80}_{36}\text{Kr}$, $^{82}_{36}\text{Kr}$, $^{83}_{36}\text{Kr}$, $^{124}_{54}\text{Xe}$, $^{126}_{54}\text{Xe}$, $^{128}_{54}\text{Xe}$, $^{129}_{54}\text{Xe}$, $^{130}_{54}\text{Xe}$, $^{131}_{54}\text{Xe}$ не дают радионуклидов, но при облучении нейтронами тепловых энергий, являются добавкой к начальному числу ядер изотопа дающего радионуклид. Рассматривать вышеперечисленные изотопы химических элементов необходимо в случае участия одного из них в реакции образования радионуклидов высокоактивных либо имеющих значительный период полураспада.

Как упоминалось ранее, на ИР-100 основной источник образования радиоактивных веществ – экспериментальные каналы. Они представляют собой узкую трубу высотой 4000 мм, низ которой располагается в активной зоне реактора. Экспериментальный канал закрывается пробкой длиной 1800 мм. Под пробкой находится воздух, который при проведении экспериментов также облучается потоком нейтронов и гамма-квантов. В результате этого в воздухе активной зоны образуются столь опасные вещества как тритий, аргон-41 и углерод-14.

Таким образом, проанализировав реакции взаимодействия нуклидов природного происхождения с тепловыми нейтронами можно сделать следующие выводы. Наиболее значимыми для радиозащиты являются радионуклиды аргон-41, углерод-14 и тритий, так как:

- углерод-14 имеет период полураспада 5560 лет, β^- активен с максимальной энергией частиц 0,158 МэВ и эффективной энергией частиц 0,054 МэВ [21] и являясь изотопом углерода, проникая в органы и ткани

организма, включается непосредственно в молекулы органических соединений. Замещая природный карбон в структурных единицах, тем самым производя внутреннее облучение, меняет химический состав молекул;

- тритий имеет период полураспада 12,6 лет и, являясь изотопом водорода, может замещать природный водород в молекулах воды (а человек на 75 % состоит из воды), а также в структурных элементах молекул и производить внутреннее облучение и менять химический состав молекул;

- аргон-41 – это инертный газ, бета- и гамма-излучатель с энергией гамма квантов 1,293 МэВ (выход 99 % на распад), энергией бета 1,2 МэВ (выход 99 % на распад) и 2,48 МэВ (выход 1 % на распад) [22-24].

Образование радиоуглерода в активной зоне ядерного реактора

Из всех природных элементов таблицы Менделеева углероду принадлежит особая роль — он составляет структурную основу органических соединений, в том числе тех, которые входят в состав живых организмов.

Углерод - важнейший биогенный элемент, составляющий основу жизни на Земле, структурная единица огромного числа органических соединений, участвующих в построении организмов и обеспечении их жизнедеятельности (биополимеры, а также многочисленные низкомолекулярные биологически активные вещества - витамины, гормоны, медиаторы и др.). Значительная часть необходимой организмам энергии образуется в клетках за счёт окисления углерода.

Природный углерод — это смесь двух стабильных изотопов: $^{12}_6\text{C}$ (98,892 %) и $^{13}_6\text{C}$ (1,108 %). Из четырех радиоактивных изотопов ($^{10}_6\text{C}$, $^{11}_6\text{C}$, $^{14}_6\text{C}$ и $^{15}_6\text{C}$) только долгоживущий углерод-14 (период полураспада 5730 лет) представляет практический интерес, поскольку участвует в круговороте углерода биосферы. Этот чистый низкоэнергетический бета-излучатель с максимальной энергией частиц 156 кэВ относится к числу глобальных

радионуклидов. Образуется он как в естественных, под воздействием космического излучения, так и в искусственных условиях в результате нескольких ядерных реакций. Повышение концентрации антропогенного $^{14}_6\text{C}$ во внешней среде способствует его накоплению в организме живых веществ, в том числе и человека, а его источники — ядерные взрывы и выбросы предприятий ядерной энергетики представляет большую гигиеническую и экологическую проблему [25].

Физиологическая роль углерода. В организм человека углерод поступает с пищей (в норме около 300 г в сутки). Общее содержание углерода достигает около 21 % (15 кг на 70 кг общей массы тела). Углерод составляет 2/3 массы мышц, 1/3 массы костной ткани и 78 % жировой ткани. Выводится из организма преимущественно с выдыхаемым воздухом (углекислый газ) и мочой (мочевина).

Главной функцией углерода является формирование разнообразия органических соединений, тем самым обеспечивая биологическое разнообразие, участие во всех функциях и проявлениях живого. В биомолекулах углерод образует полимерные цепи и прочно соединяется с водородом, кислородом, азотом и другими элементами. Столь существенная физиологическая роль углерода определяется тем, что этот элемент входит в состав всех органических соединений и принимает участие практически во всех биохимических процессах в организме. Окисление соединений углерода под действием кислорода приводит к образованию воды и углекислого газа; этот процесс служит для организма источником энергии. Двуокись углерода CO_2 (углекислый газ) образуется в процессе обмена веществ, является стимулятором дыхательного центра, играет важную роль в регуляции дыхания и кровообращения.

В свободном виде углерод не токсичен, но многие его соединения обладают значительной токсичностью. К таким соединениям следует отнести окись углерода CO (угарный газ), четыреххлористый углерод CCl_4 , сероуглерод CS_2 , соли цианистой кислоты HCN , бензол C_6H_6 и другие.

Хорошо растворимые органические соединения $^{14}_6\text{C}$ ($\text{Na}_2^{14}_6\text{CO}_3$, $\text{K}_2^{14}_6\text{CO}_3$, $\text{NaH}^{14}_6\text{CO}_3$) всасываются в организме до 90 – 100 %. Распределение $^{14}_6\text{C}$ в организме является равномерным. $^{14}_6\text{C}$ быстро выводится из организма, в основном через легкие в виде $^{14}_6\text{CO}_2$.

$^{14}_6\text{C}$ проникает во все органы и ткани организма, включается непосредственно в молекулы органических соединений. Он может неблагоприятно действовать в результате превращения атомов углерода в атомы азота (трансмутационный эффект). Это приводит к разрывам химических связей в ДНК [26].

Проникающая способность бета-частиц радиоуглерода невелика, если рассматривать его как источник внешнего облучения. Однако при попадании внутрь организма это значение приобретает иной интерес.

Проникающая способность бета частиц радиоуглерода составляет 0,0156 см. Исходя из этого можно определить линейную плотность ионизации бета частиц, то есть количество пар ионов, созданных частицей при прохождении единицы пути.

Полная ионизация бета излучения определяется зависимостью

$$N_n = \frac{E_\beta}{\varepsilon}, \quad (10)$$

где N_n – полная ионизация, пар ионов, E_β – энергия бета частицы, эВ, ε – энергия образования пары ионов, эВ (для биоткани 35 эВ).

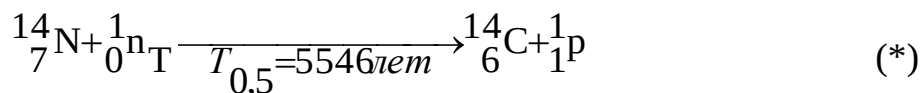
Число пар ионов образованных при прохождении бета частицы в биологической – линейная плотность ионизации, ткани составит:

$$ЛПИ = \frac{N_\beta}{R_\beta} = \frac{4457}{0,0156} = 2,8 \cdot 10^5 \text{ пар ионов}$$

$^{14}_6\text{C}$ образуется в активной зоне реактора в результате реакций (n, p) на

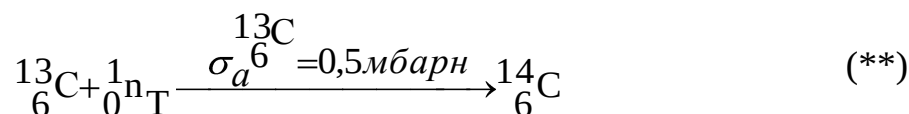
$^{14}_7\text{N}$, (n, α) на $^{17}_8\text{O}$ и (n, γ) на $^{13}_6\text{C}$. Роль других реакций — $^{15}_7\text{N}$ (n, α) $^{14}_6\text{C}$; $^{18}_8\text{O}$ (p, 3p) $^{14}_6\text{C}$; $^{17}_8\text{O}$ (n, α) $^{14}_6\text{C}$; $^{13}_6\text{C}$ (n, γ) $^{14}_6\text{C}$ — в образовании углерода-14 незначительна из-за малых сечений взаимодействия и низкого содержания ядер этих изотопов в естественной смеси элементов [27-35].

При взаимодействии тепловых нейтронов с азотом-14, который составляет 99,6337 % природного азота [36], образуется $^{14}_6\text{C}$ по реакции 1.



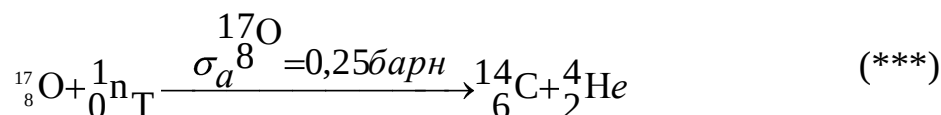
Микросечение активации $^{14}_7\text{N}$ σ составляет 1,75 барн.

Известно, что углерод природный состоит из двух изотопов: $^{12}_6\text{C}$ в количестве 98,89 % и $^{13}_6\text{C}$ — 1,11%. Но только при взаимодействии тепловых нейтронов с $^{13}_6\text{C}$ дает на выходе радиоуглерод



А вот кислород природный состоит из трех изотопов: $^{16}_8\text{O}$, $^{17}_8\text{O}$, $^{18}_8\text{O}$, которые содержатся в природном 99,76 %, 0,037 % и 0,204 % соответственно.

Однако при взаимодействии с нейтронами тепловых энергий радиоуглерод дает только $^{17}_8\text{O}$ по реакции:



Проанализировав физические модели образования радиоуглерода, можно сделать некоторые пренебрежения:

– микросечение активации $^{13}_6\text{C}$ несоизмеримо мало при сравнении с

микросечениями активации $^{17}_8\text{O}$ и $^{14}_7\text{N}$, поэтому им можно пренебречь;

– процентный состав $^{17}_8\text{O}$ по массе от природного кислорода – слишком мал, чтобы давать существенную добавку к ядрам радиоуглерода, образованным по реакциям (***) и (***), поэтому этим параметром мы так же пренебрегаем.

Остался наиболее мощный источник радиоуглерода – $^{14}_7\text{N}$, и именно по физической модели образования $^{14}_6\text{C}$ из азота составим математическую модель, используя уравнение сохранения вещества.

$$\begin{cases} \frac{dN_{^{14}_7\text{N}}}{dt} = -\sigma_a^{^{14}_7\text{N}} \cdot N_{^{14}_7\text{N}} \cdot \varphi \\ \frac{dN_{^{14}_6\text{C}}}{dt} = \sigma_a^{^{14}_7\text{N}} \cdot N_{^{14}_7\text{N}} \cdot \varphi - \lambda_{^{14}_6\text{C}} \cdot N_{^{14}_6\text{C}} - \sigma_a^{^{14}_6\text{C}} \cdot N_{^{14}_6\text{C}} \cdot \varphi \end{cases} \quad (11)$$

Для решения модели необходимо задаться данными:

- начальное число ядер азота;
- постоянная распада трития;
- микросечение азота;
- микросечение трития;
- плотность потока космических нейтронов.

Если решить эту систему при начальных условиях

$$t = 0, N_{^{14}_7\text{N}} = N_{0^{14}_7\text{N}}, N_{^{14}_6\text{C}} = 0$$

$$t = t, N_{^{14}_7\text{N}} = N_{^{14}_7\text{N}}(t), N_{^{14}_6\text{C}} = N_{^{14}_6\text{C}}(t).$$

получим

$$\begin{cases} N_{^{14}_7\text{N}}(t) = N_{0^{14}_7\text{N}} \cdot e^{-\varphi \cdot \sigma_a^{^{14}_7\text{N}} \cdot t} \\ N_{^{14}_6\text{C}}(t) = \frac{\varphi \cdot \sigma_a^{^{14}_7\text{N}} \cdot N_{0^{14}_7\text{N}}}{\lambda_{^{14}_6\text{C}} - \varphi \cdot \sigma_a^{^{14}_7\text{N}} + \varphi \cdot \sigma_a^{^{14}_6\text{C}}} \cdot \left(e^{-\varphi \cdot \sigma_a^{^{14}_7\text{N}} \cdot t} - e^{-\lambda_{^{14}_6\text{C}} \cdot t} \right) \end{cases} \quad (12)$$

Подставив все аргументы в данную систему получаем число ядер радиоуглерода образовавшегося в активной зоне реактора ИР-100 под действием тепловых нейтронов за время облучения t . Данные расчетов приведены в табл. 7.

Изменение удельной активности углерода-14 в экспериментальных каналах реактора ИР-100 представлено на рис. 5 при 6-часовом рабочем дне и на рис. 6 при 12-часовом рабочем дне.

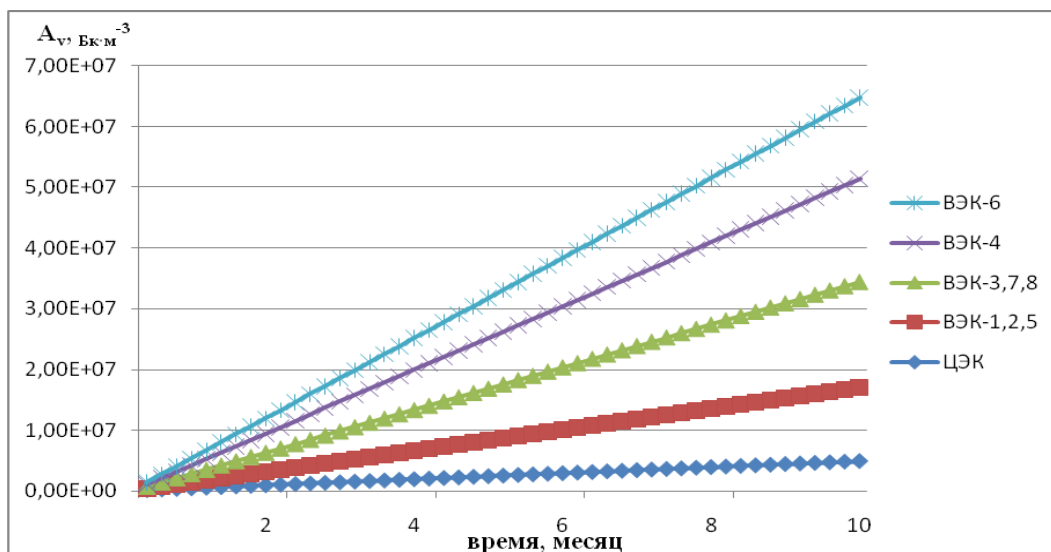


Рисунок 5 – Изменение удельной активности радиоуглерода в экспериментальных каналах при 6-часовом рабочем дне

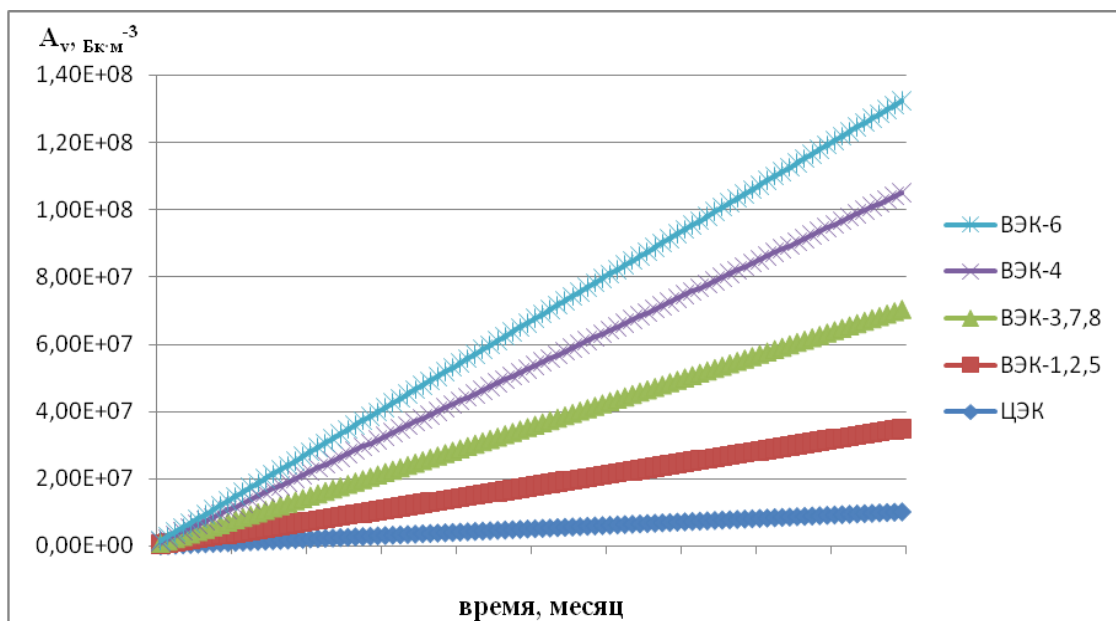


Рисунок 6 – Изменение удельной активности радиоуглерода в экспериментальных каналах при 12-часовом рабочем дне

Таблица 7

Данные расчета активности воздуха в экспериментальных каналах, наведенной радиоуглеродом

Экспериментальный канал	Время облучения,с	Число ядер ¹⁴ С на конец облучения, ядер	Активность воздуха, наводимая ¹⁴ С, Бк	Удельная активность воздуха надреакторного помещения, наводимая ¹⁴ С, Бк·м ⁻³	ДОА _{перс} Бк·м ⁻³	Превышение	Удельная активность воздуха СЗЗ, наводимая ¹⁴ С, Бк·м ⁻³	ДОА _{нас} Бк·м ⁻³	Превышение
					НРБ-99 (Россия)			НРБ-99 (Россия)	
ЦЭК	8,64·10 ⁶	5,729·10 ¹⁵	2,26·10 ⁴	29	14000	-	0,001798	55	-
	4,32·10 ⁶	2,864·10 ¹⁵	1,13·10 ⁴	15	14000	-	0,000899	55	-
ВЭК-4	8,64·10 ⁶	8,193·10 ¹⁶	3,232·10 ⁵	428	14000	-	0,02572	55	-
	4,32·10 ⁶	4,096·10 ¹⁶	1,616·10 ⁵	214	14000	-	0,01286	55	-
ВЭК-6	8,64·10 ⁶	6,439·10 ¹⁶	2,54·10 ⁵	336	14000	-	0,02021	55	-
	4,32·10 ⁶	3,22·10 ¹⁶	1,27·10 ⁵	168	14000	-	0,01011	55	-
ВЭК-3,7,8	8,64·10 ⁶	3,328·10 ¹⁶	1,313·10 ⁵	174	14000	-	0,01045	55	-
	4,32·10 ⁶	1,664·10 ¹⁶	6,565·10 ⁴	87	14000	-	0,00522	55	-
ВЭК-1,2,5	8,64·10 ⁶	2,334·10 ¹⁶	9,21·10 ⁴	122	14000	-	0,007328	55	-
	4,32·10 ⁶	1,167·10 ¹⁶	4,605·10 ⁴	61	14000	-	0,003664	55	-

Сравнив полученные данные с нормативными значениями [37] для персонала, населения и окружающей среды, видно, что превышение значений по допустимым концентрациям в воздухе рабочих помещений для лиц категории А наблюдается только при вскрытии экспериментального канала ВЭК-4 сразу после облучения, причем допустимый уровень превышен в 1,07 раз. При поступлении образовавшегося радиоуглерода в атмосферный воздух санитарно-защитной зоны по вентиляционной системе угроза облучения для объектов окружающей среды отсутствует, так как его суммарная удельная активность составляет $6,5506 \cdot 10^{-2} \text{ Бк} \cdot \text{м}^{-3}$ при допустимой концентрации в воздухе радиоактивного углерода в $5 \text{ Бк} \cdot \text{м}^{-3}$.

Образование трития в активной зоне ядерного реактора

В вопросах радиационной безопасности ядерных реакторов тритий занимает особое место. Сверхтяжелый радионуклид водорода с периодом полураспада 12,36 года, при этом мягкий бета-излучатель с $E_{\beta\text{max}}=18,6 \text{ кэВ}$, $E_{\beta\text{эфф}}=0,01 \text{ МэВ}$ [21]. Отличается большой интенсивностью миграции в окружающей среде, особенно в водных ее объектах, и является глобальным загрязнителем природных комплексов. Природный тритий образуется под действием космических лучей в атмосфере со скоростью образования 0,2 ядра в секунду на см^2 Земли.

Тритий образуется в активной зоне ядерного реактора при облучении урана и плутония. Кроме того, тритий образуется в теплоносителе при охлаждении им тепловыделяющих сборок.

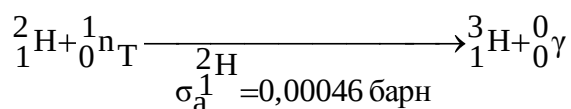
Чаще всего тритий представлен не как отдельный элемент, а как составная часть химической формулы. В основном тритий находится в виде тритиевой воды. Тритиевая вода — это изотопная разновидность воды: HDO , HTO , TO и DO , в которой обыкновенный водород заменен его тяжелыми изотопами — дейтерием ^2_1H и тритием ^3_1H .

Более 80 % трития образуется как продукт тройного деления в тепловыделяющих элементах. Около 90 % образующегося трития диффундирует в теплоноситель, где большая его часть осаждается на фильтрах-ловушках.

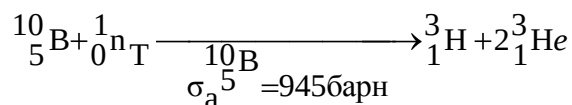
Тритий, как и водород, чрезвычайно подвижен и, обладая большой проникающей способностью, мигрирует по всем технологическим системам реакторной установки с частичным выходом в окружающую среду.

При работе ИР-100 идет непрерывный процесс образования трития за счет тройного деления ядер урана и плутония, при взаимодействии нейтронов с ядрами элементов, входящих в состав конструкционных материалов (Fe, Ni, Cr), органов СУЗ (В) или присутствующих в виде примесей в топливе и натриевом теплоносителе (Li, В): в среднем примерно на 10^4 делений ^{235}U всего одно происходит с образованием трития и приблизительно в 2 раза больше образуется трития при делении ^{239}Pu . Кроме того, тритий образуется в теплоносителе в результате захвата нейтронов ядрами дейтерия, содержащегося в воде в количестве 0,015%. Тритий также образуется при взаимодействии нейтронов с бором, входящим в состав органов регулирования. Из реакторов и установок по переработке топлива тритий выделяется или в виде содержащего тритий газа (НТ), или в виде содержащей тритий воды (НТО) и попадает в атмосферу. Газообразный тритий НТ очень скоро окисляется и переходит в НТО.

Как уже отмечалось, тритий образуется в теплоносителе в результате захвата нейтронов ядрами дейтерия, содержащегося в воде в количестве 0,015 %.

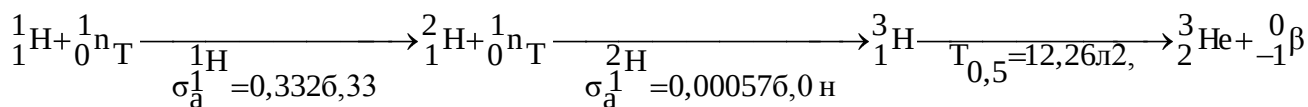


Тритий образуется также при взаимодействии нейтронов с бором, входящим в состав органов регулирования:



Весь он в воде первого контура и поэтому эти воды должны тщательно утилизироваться, что согласно руководящим документам [37] и [38] строго выполняются. Однако в период работы реактора теплоноситель может испаряться и вместе с испарениями в помещения исследовательского реактора и окружающую среду может поступать и радиоактивный изотоп водорода.

Но при облучении теплоносителя, попадающий в рабочие помещения и окружающую среду радиоактивный водород дает лишь небольшую добавку к дозовой нагрузке. Более значима с точки зрения радиационной безопасности генерация трития происходить при облучении ядер протия и дейтерия нейтронами тепловых энергий, находящегося в воздухе экспериментального канала под пробкой в виде H_2 . Тогда физическая модель процесса примет вид [39]:



Рассчитаем образовавшийся тритий при облучении нейтронами тепловых энергий дейтерия.

Согласно физической модели была составлена математическая модель:

$$\begin{cases} \frac{dN_{1H}}{dt} = -\sigma_a^{1H} \cdot N_{1H} \cdot \varphi \\ \frac{dN_{2H}}{dt} = \sigma_a^{1H} \cdot N_{1H} \cdot \varphi - \sigma_a^{2H} \cdot N_{2H} \cdot \varphi \\ \frac{dN_{3H}}{dt} = \sigma_a^{2H} \cdot N_{2H} \cdot \varphi - \lambda_{3H} \cdot N_{3H} - \sigma_a^{3H} \cdot N_{3H} \cdot \varphi \end{cases} \quad (13)$$

Данная система, состоящая из трех дифференциальных уравнений, представляет собой математическую модель ядерных процессов образования радиоактивного изотопа водорода - трития.

Первое уравнение показывает скорость убыли исходного нуклида протия; второе - скорость образования дочернего изотопа дейтерия и его выгорание в поле тепловых нейтронов; третье – скорость генерации трития ($\sigma_a^{H-2} \cdot N_{H-2} \cdot \varphi$), его распад, согласно закона радиоактивного распада ($\lambda_{H-3} \cdot N_{H-3}$) и выгорание ($\sigma_a^{H-3} \cdot N_{H-3} \cdot \varphi$). Проанализировав третье уравнение, можно сделать вывод, что выгоранием трития можно пренебречь, так как значение выгорания на 4 порядка меньше скорости распада трития. Поэтому выражение (13) примет вид:

$$\begin{cases} \frac{dN_{1H}}{dt} = -\sigma_a^{1H} \cdot N_{1H} \cdot \varphi \\ \frac{dN_{2H}}{dt} = \sigma_a^{1H} \cdot N_{1H} \cdot \varphi - \sigma_a^{2H} \cdot N_{2H} \cdot \varphi \\ \frac{dN_{3H}}{dt} = \sigma_a^{2H} \cdot N_{2H} \cdot \varphi - \lambda_{3H} \cdot N_{3H} \end{cases} \quad (13a)$$

Эти уравнения не связаны между собой внутренними связями, и каждое уравнение решается самостоятельно.

При начальных условиях:

$$t = 0, N_{H-2} = N_{0H-2}, N_{H-3} = 0$$

$$t = t, N_{H-2} = N_{H-2}(t), N_{H-3} = N_{H-3}(t)$$

Система уравнений решается:

$$\left\{ \begin{array}{l} N_{1H}(t) = N_{01H} \cdot e^{-\varphi \cdot \sigma_1^{1H} \cdot t} \\ N_{2H}(t) = N_{02H} \cdot e^{-\varphi \cdot \sigma_2^{1H} \cdot t} + \frac{\sigma_1^{1H} \cdot N_{01H}}{\sigma_2^{1H} - \sigma_1^{1H}} \cdot \left(e^{-\varphi \cdot \sigma_1^{1H} \cdot t} - e^{-\varphi \cdot \sigma_2^{1H} \cdot t} \right) \\ N_{3H}(t) = N_{03H} \cdot e^{-\lambda_3^{1H} \cdot t} + \frac{\sigma_2^{1H} \cdot \varphi \cdot N_{02H}}{\lambda_3^{1H} - \sigma_2^{1H} \cdot \varphi} \cdot \left(e^{-\sigma_2^{1H} \cdot t} - e^{-\lambda_3^{1H} \cdot t} \right) + \\ + \sigma_1^{1H} \cdot \sigma_2^{1H} \cdot \varphi^2 \cdot N_{01H} \cdot \left(\frac{e^{-\sigma_1^{1H} \cdot t}}{\left(\sigma_2^{1H} - \sigma_1^{1H} \right) \cdot \left(\lambda_3^{1H} - \sigma_1^{1H} \right)} + \right. \\ \left. + \frac{e^{-\sigma_2^{1H} \cdot t}}{\left(\sigma_1^{1H} - \sigma_2^{1H} \right) \cdot \left(\lambda_3^{1H} - \sigma_2^{1H} \right)} + \right. \\ \left. + \frac{e^{-\lambda_3^{1H} \cdot t}}{\left(\sigma_1^{1H} - \lambda_3^{1H} \right) \cdot \left(\sigma_2^{1H} - \lambda_3^{1H} \right)} \right) \end{array} \right.$$

При двусменной работе реактора ежемесячно испаряется 320 литров теплоносителя и доливается такой же объема воды высокой чистоты. Так, за десять месяцев работы реактора при заданных условиях, активность теплоносителя, наводимая тритием составляет 21139,9 Бк, что соответствует

$0,66 \text{ Бк} \cdot \text{см}^{-3}$, что, с учетом объема надреакторного помещения, значительно ниже допустимых значений $\text{PC}_A^{\text{inhal}}$ для категории А.

Расчет активности циркулирующего по замкнутому контуру теплоносителя усложняется необходимостью учета специфических условий активации, определяемых временем пребывания теплоносителя в областях с большими плотностями нейтронных потоков, кратностью циркуляции и т. д. Наведенную активность теплоносителя можно подсчитать следующим образом. Пусть за время полного цикла циркуляции по контуру T активирующиеся ядра дейтерия, входящего в состав теплоносителя, в течение времени t_{az} находятся в активной зоне и облучаются нейтронами – образуя радиоактивные ядра трития.

Скорость образования активных ядер может определяться как количество актов взаимодействия нейтронов с ядрами дейтерия, происходящих в единицу времени [40], т. е.

$$\omega_D = \rho_D \cdot \int_0^{\infty} \varphi(E) \cdot \sigma_{aD}(E) dE \quad (14)$$

где $\varphi(E)dE$ - плотность потока нейтронов энергии в интервале от E до $E+dE$ по объему активной зоны, которую для расчета можно заменить средней для тепловых нейтронов.

Микроскопическое сечение реакции поглощения нейтронов энергии E_T ядрами дейтерия, приводящей к активации, обозначается через σ_{aD} . Это значение взято для стандартных нейтронов [41] и осреднено через вычисление температуры нейтронного газа в работающем реакторе по формуле 6.10.9 [42]. Ядерная плотность ядер дейтерия, обозначаемая ρ_D – взята из [43] и скорректированная с учетом средней температуры теплоносителя по активной зоне реактора ИР-100.

В процессе образования радиоактивного водорода большую роль играют нейтроны тепловых энергий, плотность потока которых была

измерена экспериментально с помощью сусального золота с учетом осреднения [44] и равна $2,86819 \cdot 10^{12} \text{ (н} \cdot \text{см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1})$.

Формула (14) справедлива, если предположить, что в результате каждого акта поглощения нейтронов ядрами дейтерия образуется одно радиоактивное ядро трития.

Скорость радиоактивного распада трития ядер равна $\lambda_T n_T$ (λ_T — постоянная радиоактивного распада радионуклида).

Уравнение баланса активных ядер в единице объема теплоносителя можно записать так:

$$\frac{dn_T}{dt} = \omega_T - \lambda_T \cdot n_T \quad (15)$$

Решение уравнения при условии $n_T(0) = 0$ имеет вид

$$n_T(t) = \frac{\omega_T}{\lambda_T} (1 - e^{-\lambda_T \cdot t}) \quad (16)$$

Если обозначить через t_{az} время прохождения теплоносителем активной зоны и через t_x время, необходимое для транспортировки теплоносителя по контуру от выхода из активной зоны до того места контура, в котором измеряют активность, то за время $t_{az} + t_x$ вследствие радиоактивного распада число ядер в единице объема теплоносителя будет равным

$$n_T(t_{az}, t_x) = \frac{\omega_T}{\lambda_T} (1 - e^{-\lambda_T \cdot t_{az}}) \cdot e^{-\lambda_T t_x} \quad (17)$$

Время прохождения теплоносителя по циркуляционному контуру было вычислено через объем первого контура и его расход через активную

зону. Расход вычислялся с учетом изменения энтальпии теплоносителя между входом и выходом по температурному перепаду в активной зоне.

Количество циклов прохода теплоносителя по контуру вычислялся с учетом работы реактора на мощности и времени обращения теплоносителя. В связи с испарениями теплоносителя в окружающую среду и его ежемесячным доливом водой высокой чистоты, в этот момент происходило скачкообразное изменение удельной активности. Однако, эти изменения незначительны, менее 2 %, и этими колебаниями можно пренебречь. Таким образом, анализ загрязнения рассчитывается исходя из суммарного испарения воды первого контура с различными значениями удельной активности теплоносителя наводимой тритием.

Активность единицы объема теплоносителя, т.е. удельную активность, обусловленную распадом радиоактивных ядер трития после однократного прохождения активной зоны A_{T1} можно записать так:

$$A_{T1} = \omega_T (1 - e^{-\lambda_T \cdot t_{a3}}) \cdot e^{-\lambda_T t_x} \quad (18)$$

После второго прохождения теплоносителем активной зоны активность его в точке замера будет равна

$$\begin{aligned} A_{T2} &= \omega_T (1 - e^{-\lambda_T \cdot t_{a3}}) \cdot e^{-\lambda_T (t_x + T)} + \omega_T (1 - e^{-\lambda_T \cdot t_{a3}}) \cdot e^{-\lambda_T t_x} = \\ &= \omega_T (1 - e^{-\lambda_T \cdot t_{a3}}) \cdot e^{-\lambda_T t_x} \cdot (1 + e^{-\lambda_T \cdot T}) \end{aligned} \quad (19)$$

Спустя n циклов

$$A_{Tn} = \omega_T (1 - e^{-\lambda_T \cdot t_{a3}}) \cdot e^{-\lambda_T t_x} (1 + e^{-\lambda_T \cdot T} + \dots + e^{-(n-1)\lambda_T T}) \quad (20)$$

При достаточно большом количестве циклов n справедливо соотношение

$$\sum_{i=0}^n e^{-ix} = \frac{1 - e^{-nx}}{1 - e^{-x}} \text{ сумма членов геометрической прогрессии.}$$

Поэтому для длительного стационарного режима работы установки выражение может быть записано следующим образом:

$$A_{Tn} = \omega_T (1 - e^{-\lambda_T \cdot t_{az}}) \cdot e^{-\lambda_T t_x} \left[\frac{1 - e^{-(n-1)\lambda_T \cdot T}}{1 - e^{-\lambda_T \cdot T}} \right] \quad (21)$$

Подставив все имеющиеся данные, характеризующие работу исследовательского реактора ИР-100, в уравнение (4.15), получим активность теплоносителя, наведенную тритием, за время работы реактора 10 месяцев в двусменном режиме на мощности 100 %, равной $3,115 \cdot 10^6$ Бк. Если учесть испарение трития с водой и проникновение паров радиоактивного газа в надреакторное помещение, то удельная активность трития равная $8268 \text{ Бк} \cdot \text{м}^{-3}$, будет ниже допустимых концентраций в воздухе рабочих помещений PC_A^{inhal} для категории А [37]. Это соответствует удельной активности теплоносителя $0,79 \text{ Бк} \cdot \text{см}^{-3}$. При испарении ежедневно 10 литров воды первого контура активность атмосферного воздуха надреакторного помещения №102 объемом 755 м^3 при отсутствии работающей вентиляции увеличивает активность воздуха этого помещения до 790 Бк [45].

Таким образом, в разделе приведены данные о суточном загрязнении атмосферы реакторных помещений тритием при максимально возможной удельной активности. Радиационная обстановка при минимальной концентрации суточного загрязнения будут меньше предельных и в целом генерация трития не приведет к серьезным загрязнениям атмосферы реакторных помещений. Этот эффект будет иметь еще меньшее значение в

связи с тем, что согласно регламента обеспечения радиационной безопасности одним из первых мероприятий новой смены является включение спецвентиляции.

Генерация аргона-41 в активной зоне ядерного реактора

Исследовательские реакторы является одним из источников загрязнения атмосферы газообразными радиоактивными веществами. Выброс или непредвиденная утечка газов может иметь место при авариях на атомных реакторах, из хранилищ радиоактивных отходов или на заводах по регенерации ядерного горючего. Поступление короткоживущих радиоактивных газов в атмосферу создает проблемы локальной защиты населения, проживающего вблизи атомных предприятий, а выброс долгоживущих радиоактивных газов может привести к глобальному загрязнению атмосферы. Радиоактивные благородные газы в воздухе могут быть в виде паров, аэрозолей и сложных соединений, которые по своей природе могут быть твердыми или газообразными веществами.

При проведении различных исследований, предполагающих облучение в вертикальных экспериментальных каналах исследуемых образцов было отмечено, что помимо них в экспериментальных каналах содержится некоторый объем воздуха, который также подвергается облучению.

Ядерные реакторы, в том числе исследовательские, могут быть источниками выбросов $^{41}_{18}\text{Ar}$. Величина выброса $^{41}_{18}\text{Ar}$ в атмосферу на ядерных реакторах зависит от конструкции реактора. Наибольший выброс в атмосферу $^{41}_{18}\text{Ar}$ - до $59,2 \cdot 10^{13}$ Бк·сут⁻¹ наблюдается на графитовых реакторах с воздушным охлаждением.

Наибольший интерес представляет $^{41}_{18}\text{Ar}$. Это β -, γ -излучатель. Энергия β -частиц максимальная 1,2 МэВ, γ -квантов – 1,3 МэВ, период полураспада 109 мин. В природе встречается в свободном виде, главным образом в воздухе.

Проникающая способность бета частиц аргона-41 невелика, если рассматривать его как источник внешнего облучения. При пробеге испускаемых аргоном-41 β -частиц в биологической ткани, равном всего 0,12 см, образуется $9,5 \cdot 10^4$ пар ионов, а это может привести к поражению слизистой оболочки дыхательных путей и образованию злокачественных опухолей.

Изотопный состав природного аргона: $^{36}_{18}\text{Ar}$ – 0.34 % по весу, $^{38}_{18}\text{Ar}$ – 0.063 % по весу, $^{40}_{18}\text{Ar}$ – 99.6 % по весу. В природе встречается в свободном виде, главным образом в воздухе. Аргон значительно более распространен на Земле, по сравнению с другими элементами нулевой группы. [43, 46, 47].

Из искусственно радиоактивных изотопов наибольший период полураспада имеет аргон-39 ($T_{0,5} = 265$ лет); в качестве радиоактивного индикатора применяется аргон-37 ($T_{0,5} = 34$ дня). Наибольший интерес представляет аргон-41. Это β -излучатель, с энергией β -частиц 1,98 МэВ ($E_{\beta}^{\text{max}} = 1,199$ (99,1 %) МэВ; 2,48 (0,99%) МэВ [22, 45]), γ -квантов 1,293 МэВ (99 %), период полураспада 1,8 часа.

При нормальных условиях аргон – одноатомный газ; плотность которого ρ 1,7839 г·л⁻¹; температура плавления – 189,3°/760 мм; температура кипения – 185,9°/760 мм. Растворимость аргона (см³ в 1 г воды при давлении 1 кг/см²): 0,0519 (0°); 0,0329 (20°); 0,0247 (40°); растворимость понижается при добавлении электролитов. В органических растворителях аргон растворим значительно лучше, чем в воде. В металлах аргон практически нерастворим и поэтому не способен диффундировать сквозь металлы.

Экспериментально – аналитически определенные значения плотностей потока тепловых нейтронов в центральном вертикальном экспериментальном и вертикальных экспериментальных каналах позволят составить математическую модель динамики образования $^{41}_{18}\text{Ar}$ в зависимости от мощности и времени работы реактора.

Как уже было сказано, природный аргон состоит из 3-х стабильных нуклидов: $^{36}_{18}\text{Ar}$, $^{38}_{18}\text{Ar}$, $^{40}_{18}\text{Ar}$. При облучении их тепловым нейтронами,

образуются следующие изотопы: $^{37}_{18}\text{Ar}$, $^{39}_{18}\text{Ar}$, $^{41}_{18}\text{Ar}$. Рассмотрим физические и математические модели изотопов аргона.

Физическая и математическая модели образования $^{37}_{18}\text{Ar}$:

$$^{36}_{18}\text{Ar} + {}^1_0\text{n} \xrightarrow[\sigma_a^{18} = 665 \text{ бар}]{^{36}_{18}\text{Ar}} ^{37}_{18}\text{Ar} \xrightarrow[T_{0,5} = 34,4 \text{ д}]{^{37}_{18}\text{Ar}} ^{37}_{17}\text{Cl}(\text{стаб})$$

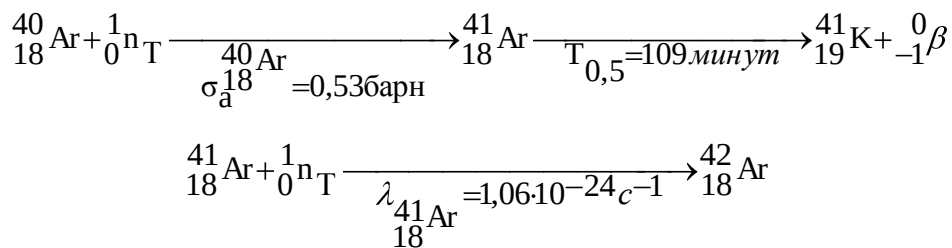
$$\begin{cases} \frac{dN_{^{36}_{18}\text{Ar}}}{dt} = -\sigma_a^{18} \cdot N_{^{36}_{18}\text{Ar}} \cdot \varphi \\ \frac{dN_{^{37}_{18}\text{Ar}}}{dt} = \sigma_a^{18} \cdot N_{^{36}_{18}\text{Ar}} \cdot \varphi - \lambda_{^{37}_{18}\text{Ar}} \cdot N_{^{37}_{18}\text{Ar}} \end{cases} \quad (22)$$

Физическая и математическая модели образования $^{39}_{18}\text{Ar}$:

$$^{38}_{18}\text{Ar} + {}^1_0\text{n} \xrightarrow[\sigma_a^{18} = 0,8 \text{ барн}]{^{38}_{18}\text{Ar}} ^{39}_{18}\text{Ar} \xrightarrow[T_{0,5} = 265 \text{ лет}]{^{39}_{18}\text{Ar}} ^{39}_{19}\text{K} + {}^0_{-1}\beta$$

$$\begin{cases} \frac{dN_{^{38}_{18}\text{Ar}}}{dt} = -\sigma_a^{18} \cdot N_{^{38}_{18}\text{Ar}} \cdot \varphi \\ \frac{dN_{^{39}_{18}\text{Ar}}}{dt} = \sigma_a^{18} \cdot N_{^{38}_{18}\text{Ar}} \cdot \varphi - \lambda_{^{39}_{18}\text{Ar}} \cdot N_{^{39}_{18}\text{Ar}} \end{cases} \quad (23)$$

Физическая и математическая модели образования $^{41}_{18}\text{Ar}$:



$$\begin{cases} \frac{dN_{18}^{40}\text{Ar}}{dt} = -\sigma_a^{18\text{Ar}} \cdot N_{18}^{40}\text{Ar} \cdot \varphi \\ \frac{dN_{18}^{41}\text{Ar}}{dt} = \sigma_a^{18\text{Ar}} \cdot N_{18}^{40}\text{Ar} \cdot \varphi - \lambda_{18}^{41}\text{Ar} \cdot N_{18}^{41}\text{Ar} - \sigma_a^{18\text{Ar}} \cdot N_{18}^{41}\text{Ar} \cdot \varphi \end{cases} \quad (24)$$

Так как аргон-41 является основным радионуклидом, формирующим радиационную обстановку на массиве реактора ИР-100, поэтому будет целесообразно рассмотреть решение дифференциальных уравнений именно этого нуклида.

Так как $\sigma_a^{Ar-41} < 60$ мбарн, а $\sigma_a^{Ar-40} < 530$ мбарн, то можем сделать вывод, что σ_a^{Ar-40} на порядок больше. Кроме того, число ядер аргона-40 значительно превышает число ядер аргона-41, следовательно, выгоранием $^{41}_{18}\text{Ar}$ пренебрегаем, а членом выгорания является выражение $\sigma_a^{Ar-41} N_{Ar-41} \cdot \varphi$.

Данная система, состоящая из двух дифференциальных уравнений, представляет собой математическую модель ядерных процессов образования радиоактивного изотопа $^{41}_{18}\text{Ar}$.

Первое уравнение показывает скорость убыли исходного нуклида аргона-40, второе - скорость образования дочернего изотопа аргона-41.

Эти уравнения не связаны между собой внутренними связями, и каждое уравнение решается самостоятельно.

Решение математической модели. Решение математической модели производится аналитически с использованием экспоненциального множителя.

Для решения дифференциальных уравнений необходимо задаться начальными условиями:

$$t = 0, N_{Ar-40} = N_{0Ar-40}, N_{Ar-41} = 0$$

$$t = t, N_{Ar-40} = N_{Ar-40}(t), N_{Ar-41} = N_{Ar-41}(t)$$

Согласно данных начальных условий решение системы примет вид:

$$\left\{ \begin{array}{l} N_{18}^{40\text{Ar}}(t) = N_{018}^{40\text{Ar}} \cdot e^{-\varphi \cdot \sigma_a^{40\text{Ar}} \cdot t} \\ N_{18}^{41\text{Ar}}(t) = \frac{\varphi \cdot \sigma_a^{40\text{Ar}} \cdot N_{018}^{40\text{Ar}}}{\lambda_{18}^{41\text{Ar}} - \varphi \cdot \sigma_a^{40\text{Ar}} + \varphi \cdot \sigma_a^{41\text{Ar}}} \cdot \left(e^{-\varphi \cdot \sigma_a^{40\text{Ar}} \cdot t} - e^{-\lambda_{18}^{41\text{Ar}} \cdot t} \right) \end{array} \right. \quad (25)$$

Для расчета активности аргона-41, необходимо определить режим генерации из исходного продукта его в экспериментальных устройствах.

Так как аргон-41, является короткоживущим нуклидом (1,8 часа), то определять активность воздуха, наводимую им, необходимо на конец рабочего дня и на конец рабочей недели. Смена на реакторе может быть шести- и двенадцати часовая, и между сменами возможно вскрытие каналов для извлечения образцов, что приводит к разбавлению химического состава воздуха, в том числе восстановлению первоначального количества ядер аргона-40, как исходного материала, для генерации радиоактивного аргона-41. Но если канал не вскрывать, то на начало каждой следующей смены число ядер аргона-40 будет меньше, за счет «выгорания» материнского нуклида. Число ядер аргона-40 на начало каждой следующей смены рассчитан согласно выражения 16.

Физическая и математическая модели образования $^{39}_{18}\text{Ar}$:

$$N_{18}^{\text{вторник}}^{40\text{Ar}}(t) = N_{018}^{\text{понедельник}}^{40\text{Ar}} \cdot \left(1 - e^{-\varphi \cdot \sigma_a^{40\text{Ar}} \cdot t} \right) \quad (26)$$

Согласно данному уравнению, за время между сменами, без вскрытия канала после облучения, количество ядер аргона-40 уменьшается менее чем

на 1% от начального их количества, что позволяет пренебречь этим условием и считать начальное число ядер аргона-40 как материнского константой для каждой последующей смены.

Тогда изменение удельной активности воздуха наводимой радиоактивным аргоном в центральном экспериментальном канале в течение рабочей недели при 6- и 12-часовом рабочем дне будет иметь вид:

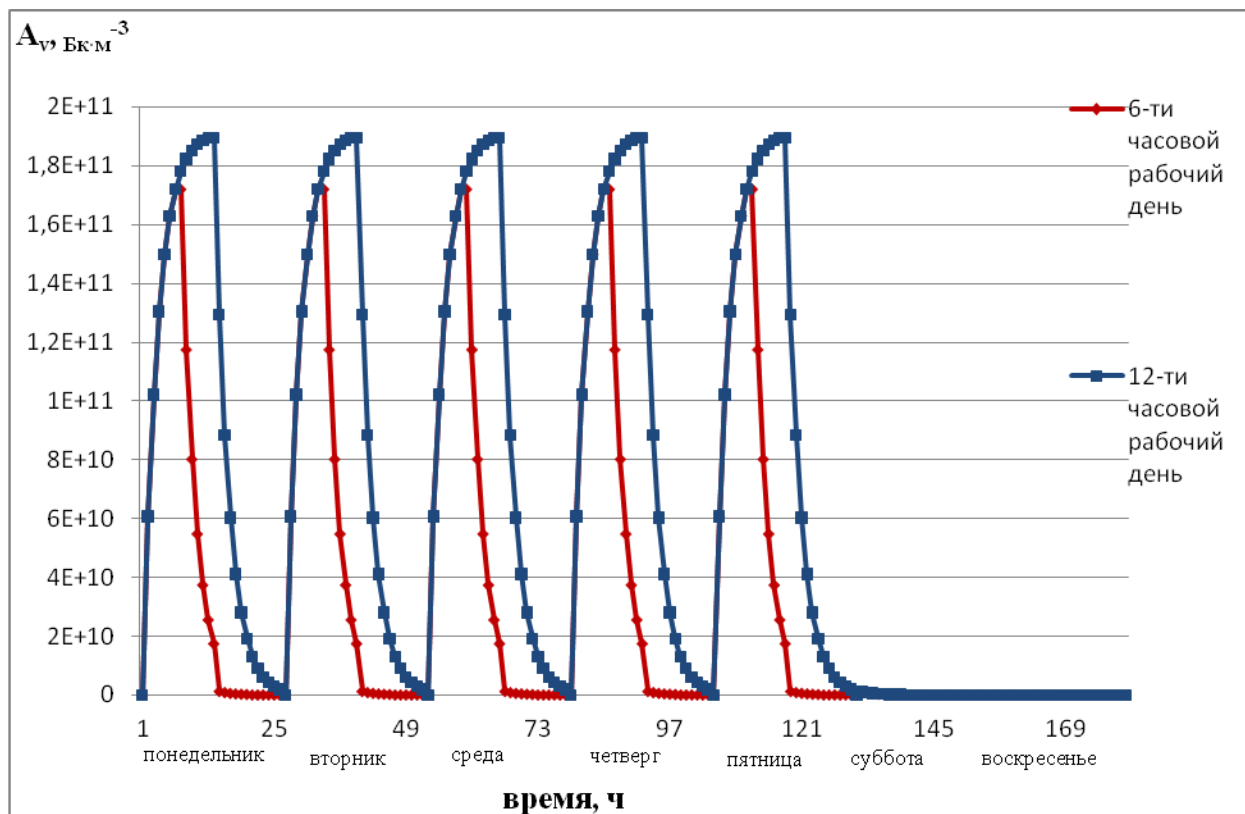


Рисунок 7 – Изменение удельной активности воздуха центрального экспериментального канала при 6-ти и 12-ти часовом рабочем дне в течение недели

Как видно из рис. 7 характер изменения кривой удельной активности воздуха по сменам одинаков. То есть в течение недели ежедневно за 12-часовую смену удельная активность воздуха, наводимая аргоном-41 достигает значения $1,8937 \cdot 10^{11}$ Бк·м⁻³, после чего, согласно закона радиоактивного распада, снижается на 4 порядка. При 6-часовом рабочем дне картина выглядит немного иначе: за смену максимальная удельная активность воздуха, наводимая аргоном-41 достигает $1,7195 \cdot 10^{11}$ Бк·м⁻³,

затем, согласно закону радиоактивного распада, снижается на 3 порядка менее чем за 6 часов стоянки и к началу следующей смены - на 6 порядков. За субботу и воскресенье, при остановленном реакторе, аргон-41, накопившийся за рабочую неделю, распадается полностью.

Однако при вскрытии экспериментального канала после облучения для извлечения образцов, облученный воздух попадает в надреакторное помещение и, согласно законам диффузии, распространяется в нижнем слое атмосферы помещения и с вентиляционными выбросами поступает в окружающую среду, создавая реальную угрозу облучения биообъектов.

[37] не учитывают значения по аргону-41. Так как в основу нормативных актов в части регламентации воздействия радиоактивных веществ на персонал, население и окружающую среду, были положены советские нормы, то можно принять за достоверное значение допустимой удельной активности по аргону-41 в рабочих помещениях и на открытой местности последнего документа. С учетом коррекции общей дозы в соответствии с [21] и ужесточением норм РФ, допустимая удельная активность в воздухе составляет $2,08 \cdot 10^{-8} \text{ Ки} \cdot \text{л}^{-1}$, или $7,696 \cdot 10^5 \text{ Бк} \cdot \text{м}^{-3}$.

Тогда, сравнивая полученные данные удельной активности воздуха в центральном экспериментальном канале с допустимой концентрацией в воздухе рабочих помещений для категории А, получаем превышение в 246059 раз. Но это гипотетический вариант сравнения, так как в канале биообъектов находиться не может. При вскрытии канала существует реальная угроза выброса радиоактивности в окружающую среду с вентиляцией. Удельная активность разбавленного в надреакторном помещении воздуха составляет $5,47 \cdot 10^5 \text{ Бк} \cdot \text{м}^{-3}$, что ниже допустимых уровней в 1,5 раза.

Анализ генерации аргона-41 в вертикальных экспериментальных каналах 1-8 отражен графиками на рис. 8 – 11.

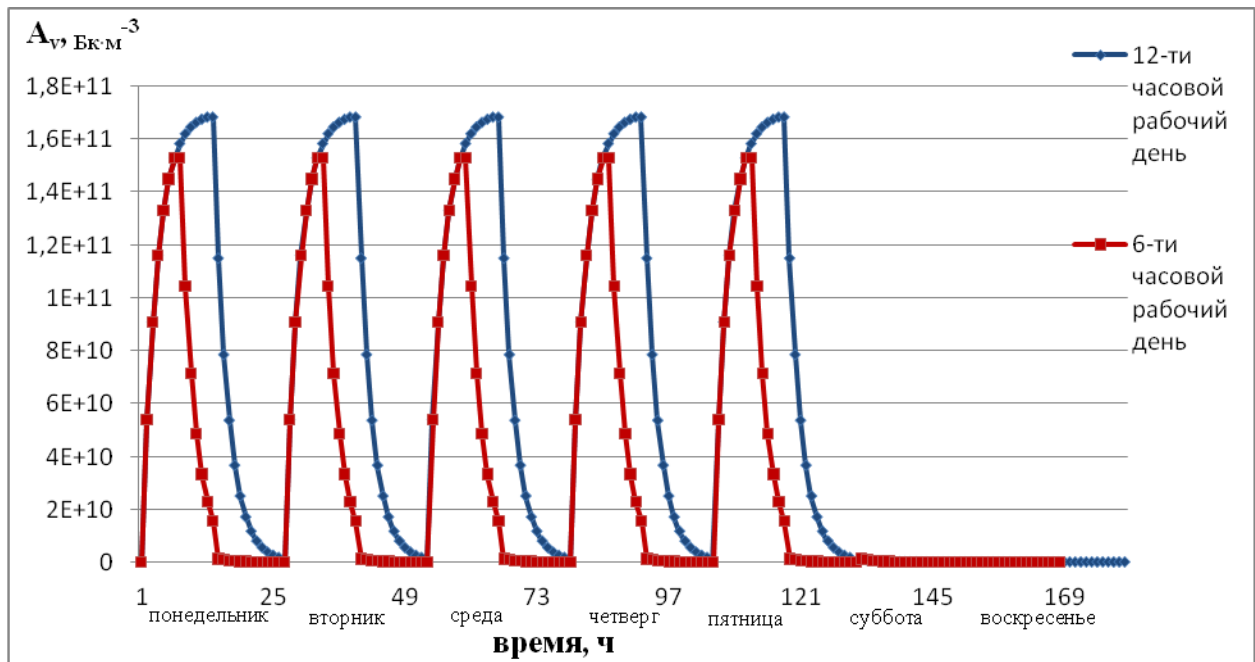


Рисунок 8 - Изменение удельной активности воздуха вертикальных экспериментальных каналов ВЭК -1, 2, 5 при 6- и 12-часовом рабочем дне в течение недели

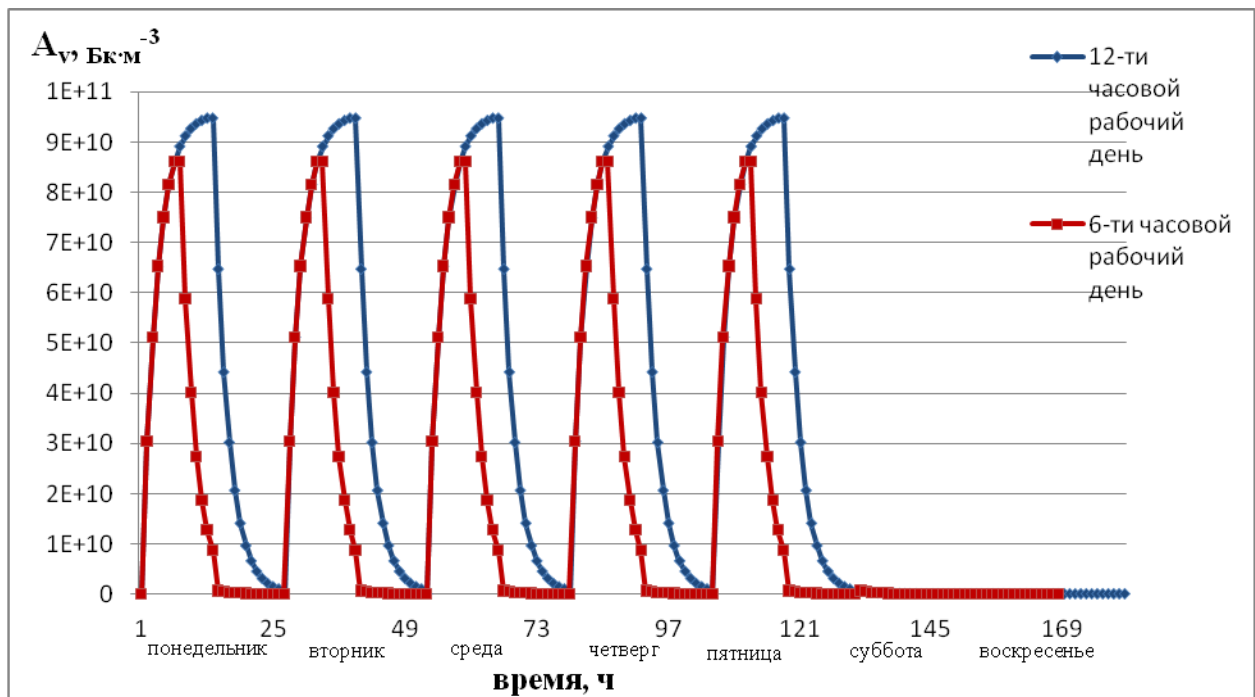


Рисунок 9 - Изменение удельной активности воздуха вертикального экспериментального канала ВЭК-4 при 6- и 12-часовом рабочем дне в течение недели

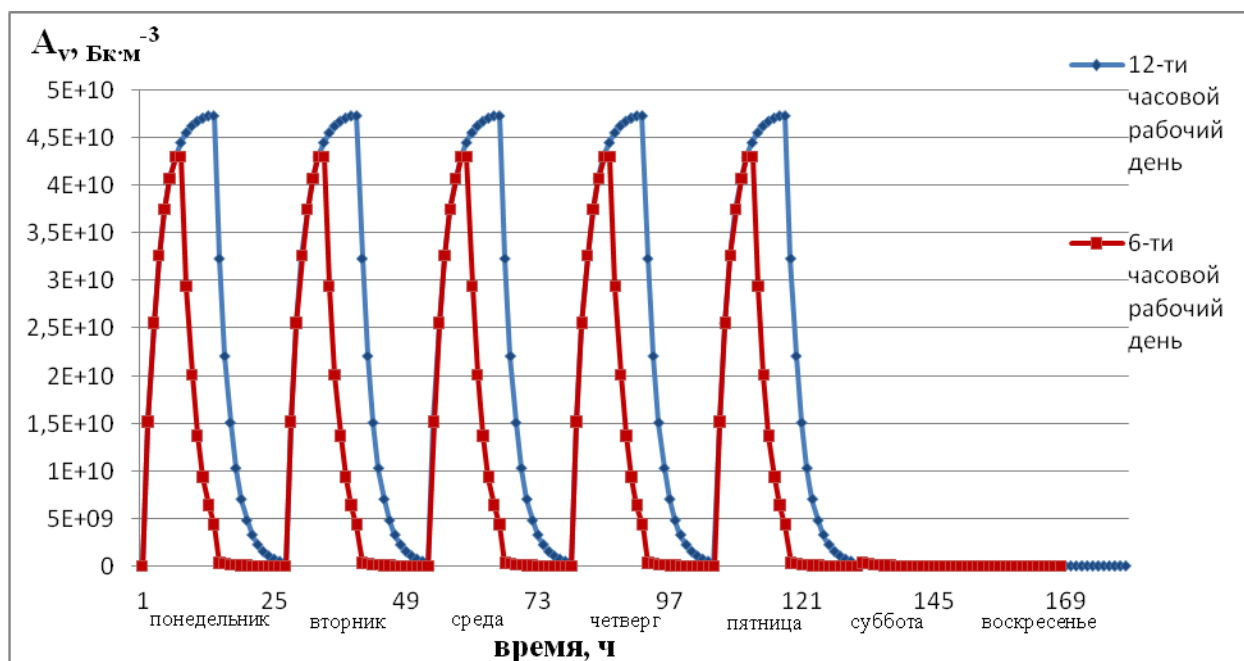


Рисунок 10 - Изменение удельной активности воздуха вертикальных экспериментальных каналов ВЭК-3, 7, 8 при 6- и 12-часовом рабочем дне в течение недели

Активность воздуха в вертикальных экспериментальных каналах ВЭК-1, 2, 5 на конец смены достигает $3,77\cdot 10^8$ Бк, ВЭК-3, 7, 8 - $1,06\cdot 10^8$ Бк, ВЭК-4 - $2,122\cdot 10^8$ Бк, при вскрытии пробок и выходе облученного воздуха в надреакторное помещение удельная активность атмосферного воздуха будет равна $4,99\cdot 10^5$ $\text{Бк}\cdot\text{м}^{-3}$, $1,4\cdot 10^5$ $\text{Бк}\cdot\text{м}^{-3}$ и $2,8\cdot 10^5$ $\text{Бк}\cdot\text{м}^{-3}$ соответственно, что значительно ниже допустимых концентраций в воздухе рабочих помещений, а, соответственно, ниже допустимых концентраций в воздухе для категории В. Но это при условии, что пробки экспериментальных каналов одновременно вскрываться не будут.

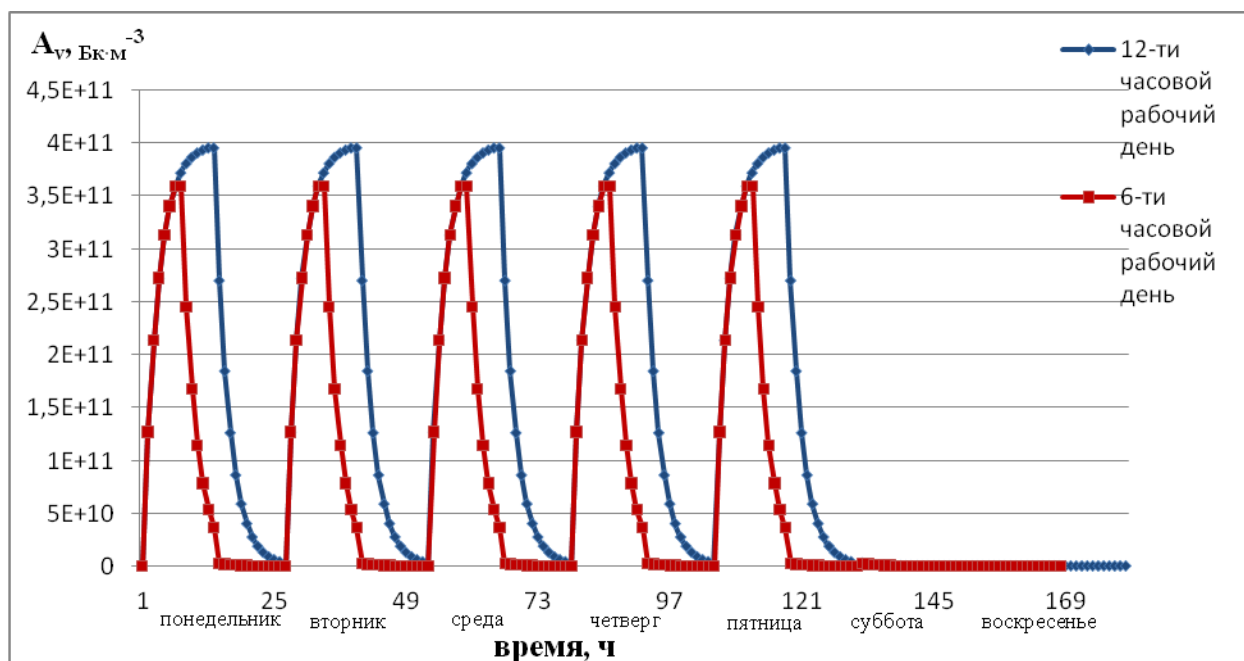


Рисунок 11 - Изменение удельной активности воздуха вертикального экспериментального канала ВЭК-6 при 6- и 12-часовом рабочем дне в течение недели

Активность воздуха в вертикальном экспериментальном канале ВЭК-6 на конец смены достигает $8,87 \cdot 10^8$ Бк, а при вскрытии пробки и выходе облученного воздуха в надреакторное помещение удельная активность атмосферного воздуха будет равна $1,12 \cdot 10^6$ Бк·м⁻³, что в 1,5 раза превышает допустимые концентрации в воздухе рабочих помещений, а при выбросе в окружающую среду на территории санитарно-защитной зоны удельная активность атмосферного воздуха, наводимая аргон-41, будет равна $70,58$ Бк·м⁻³, что по сравнению с допустимым уровнем для открытой местности в $3,4 \cdot 10^3$ Бк·м⁻³, незначительно.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Выполнен анализ генерации основных биологически значимых нуклидов в различных средах исследовательского реактора ИР-100. Проведенный анализ показал, что в целом превышений допустимых концентраций радионуклидов в атмосферном воздухе реакторных помещений при вскрытии экспериментальных каналов нет. Отдельные случаи превышения удельной активности по радиоуглероду и аргону-41 отмечаются при вскрытии канала ВЭК-6, однако работа в средствах индивидуальной защиты и при включенной принудительной вентиляции позволяют проводить работы без вреда для здоровья, но при условии вскрытия только одного канала. Не смотря на превышение допустимых концентраций в воздухе рабочих помещений для лиц категории А, при поступлении воздуха, зараженного радионуклидами из надреакторного помещения по вентиляционной трубе в окружающую среду, допустимые концентрации радионуклидов в воздухе для категории В (окружающей среды) не наблюдается. То есть работа реактора ИР-100 возможна в новых условиях эксплуатации без причинения вреда окружающей среде и населению.

ИСПОЛЬЗОВАННЫЕ ИСТОЧНИКИ

1. Метрология нейтронных измерений на ядерно-физических установках (рекомендуемые справочные данные и методики измерений) Материалы I Всесоюзной школы. Т. 1 и 2. Под ред. Р.Д. Васильева. М., ЦНИИАтоминформ, 1976. – 253 с.

2. Физические основы эксплуатации ядерных паропроизводящих установок [Текст] / А. А. Саркисов, В. Н. Пучков. - М. : Энергоатомиздат, 1989. - 503, [1] с. : ил. - Библиогр.: с. 500-501 (45 назв.). - Алф.-предм. указ.: с. 497-500. - ISBN 5-283-03764-9 : Б. ц.

3. Измерение плотности потока тепловых нейтронов в экспериментальных каналах реактора ИР-100 [Текст] : отчет о НИР / П.А. Пономаренко. - Севастополь : СНУЯЭиП, 2006. - 38 с.

4. Крамер-Агеев, Евгений Александрович. Активационные методы спектрометрии нейтронов [Текст] / Е. А. Крамер-Агеев, В. С. Трошин, Е. Г. Тихонов. — М.: Атомиздат, 1976. - 232 с.

5. Колесов Г.М. Реакторный нейтронно-активационный анализ в системе контроля объектов окружающей среды // Журн. аналит. химии. 1996. Т.51. №1. - С.124-130.

6. Kolesov G.M., Sapozhnikov D.Y. (1995) Neutron activation determination of noble metals in samples of terrestrial and cosmic origin using microfire assay concentration. Analyst 120, № 5, 1461–1464.

7. Активационный анализ [Текст] / Р.А. Кузнецов. - 2-е изд., перераб. и доп. - М. : Атомиздат, 1974. - 343 с.

8. Свидетельство о метрологической аттестации набора активационных комплектов нейтронных тепловых АКН-Т-3 №617. - Всесоюзный ордена трудового красного знамени научно-исследовательский институт физико-технических и радиотехнических измерений, 1986. – 10 с.

9. Измерение плотности потока тепловых нейтронов с помощью аттестованного набора АКН-Т (методические рекомендации) [Текст] : отчет о НИР / П.А. Пономаренко. – Севастополь : СКУЯЭиП, 2008. – 27 с.

10. Дозиметрия и радиационная безопасность [Текст] : Учебник / Ю. Н. Шаров, Н. В. Шубин. – М. : Энергоатомиздат, 1991. - 280 с. : ил.

11. Вопросы дозиметрии и радиационная безопасность на атомных электрических станциях: учеб. пособие / Под ред. А.В. Носовского. - Славутич: Укратомиздат, 1998.

12. Определение нейтронно-физических характеристик активной зоны реактора ИР-100 [Текст] : отчет о НИР / М.М. Дивизинюк, П.А. Пономаренко, В.Н. Подтынних. - Севастополь : СКУЯЭиП, 2003. - 25 с.

13. Наборы активационных комплектов нейтронные тепловые. АКН-Т-3. Номер по Госреестру 6399-77.

14. Золото та сплави на його основі. Марки : ДСТУ ГОСТ 6835:2004. – [Чинний від 2004-07-01]. – К. : Держспоживстандарт України, 2004. – 6 с. – (Національні стандарти України).

15. Золото и серебро сусальное. Технические условия : ГОСТ 6902-75. – [Введен в действие 1977-01-01]. - М. : Издательство стандартов, 2001. – 5с. – (Межгосударственный стандарт).

16. Патент Украины №49737, 11.05.2010.

П.А. Пономаренко, М.А. Фролова, А.А. Жиганова Активационный детектор для измерения плотности потока тепловых нейтронов // Патент на полезную модель Украины. Заявитель и патентообладатель ПАТ СКУЯЭиП – № и 2009 11643; заявл. 16.11.2009; опубл. 11.05.2010, Бюл. № 9.

17. Расчетная оценка нейтронно-физических характеристик активной зоны реактора ИР-100 при помощи пакета программ SCALE 4.4A [Текст] : отчет о НИР / П.А. Пономаренко. – Севастополь : СКУЯЭиП, 2006. - 40 с.

18. Техническое обоснование безопасности эксплуатации исследовательского реактора ИР-100. - ТОБ-ИР-100 [Текст] : отчёт о НИР / Севастополь : СКУЯЭиП, 2002. – 180 с.

19. Результаты экспериментального исследования эффективности центральной нейтронной ловушки в аппарате ИР-100 [Текст] : отчёт о НИР / НИКИЭТ. - 12.148 От; Инв №Е12.58-1919 .- М.,1976. – 4 с.

20. Определение нейтронно-физических характеристик активной зоны реактора ИР-100 [Текст] : отчет о НИР / М.М. Дивизинюк, П.А. Пономаренко, В.Н. Подтынных. - Севастополь : СНУЯЭиП, 2003. - 25 с.

21. Радиационная безопасность : Публ. 60, ч. 1, 61 МКРЗ : Приняты МКРЗ в ноябре 1990 / Пер. с англ. Т.Д. Кузьминой, под редакцией И.Б. Кеирим-Маркуса. – М. : Энергоатомиздат, 1994. – 190, [1] с. : (Рекомендации МКРЗ).; ISBN 5-283-03161-6.

22. Справочник по ядерной физике / Перевод с английского под редакцией Л.А.Арцимовича. – М.: Гос.издат физико-математической литературы, 1963. – 632 с.

23. _Воздух: [Электронный ресурс] // Википедия. Свободная энциклопедия. URL: <http://ru.wikipedia.org/>. (Дата обращения: 10.02.2019). Подробнее: <http://ru.wikipedia.org/wiki/Воздух>.

24. Молекулярный вес сухого воздуха: [Электронный ресурс] // Метео энциклопедия, 2003. URL: <http://meteorologist.ru/>. (Дата обращения: 10.02.2019). Подробнее: <http://meteorologist.ru.molekulyarnyy-ves-suhogo-vozduha.html>.

25. Природа,1992, № 12, стр. 59-65. Радиоактивный углерод, И.Я.Василенко, В.А.Осипов, В.П.Рублевский.

26. <http://www.microelements.ru/C>, МИКРОЭЛЕМЕНТЫ В МЕДИЦИНЕ TRACE ELEMENTS IN MEDICINE, ISSN 1607 – 9957, Индекс 39077 (каталог "Пресса России") , Журнал основан и издается при поддержке АНО "Центр биотической медицины".

27. http://ru.wikipedia.org/wiki/Изотопы_углерода, CARBON-14 SYSTEMATICS (Oceanography 540 Pages Pages Maintained by Russ McDuff (mcduff@ocean.washington.edu), Copyright (©) 1994-2001.

28. Calvin, M., and A. A. Benson. 1948., The path of carbon in photosynthesis. *Science* v.107 pp.476-80.
29. Coleman, David, and Brian Fry. 1991., Carbon Isotope Techniques. Academic Press/Harcourt Brace Jovanovich, New York.
30. De Niro, M. J., and S. Epstein. 1978. , Influence of diet on the distribution of carbon isotopes in animals. *Geochim. et Cosmochim. Acta* v.42 pp.495-506.
31. Ehleringer, J. R. and P.W. Rundel. 1989. , Stable Isotopes: History, Units, and Instrumentation. In Rundel, P. W., J. R. Ehleringer and K. A. Nagy, eds. *Stable Isotopes in Ecological Research*. Springer Verlag, New York.
32. Hall, R. L. 1967. , Those late corn dates: Isotopic fractionation as a source of error in carbon-14 dates. *Mich. Archaeol.* v.13 pp.171-79.
33. Hatch, M. D. and C. R. Slack. 1970. , The C₄ carboxylic acid pathway of photosynthesis. pp.35-106. In Reinhold L and Liwschitz Y, eds., *Progress in Phytochemistry*. Wiley-Interscience, New York.
34. Rounick, J. S. and M. J. Winterbourn. 1986. , Stable carbon isotopes and carbon flow in ecosystems. *BioScience* v.36 pp.171-176.
35. Rundel, P. W., J. R. Ehleringer and K. A. Nagy (eds.) 1989. , *Stable Isotopes in Ecological Research*. Springer Verlag, New York.
36. И.В. Меднис «Справочные таблицы для нейтронно-активационного анализа» издание второе, переработанное. Издательство «ЗИНАТНЕ» стр.178
37. Нормы радиационной безопасности (НРБ-99/2009): Санитарно-эпидемиологические правила и нормативы. М: Федеральный центр гигиены и эпидемиологии Роспотребнадзора, 2009. 100 с.
38. Основные санитарные правила обеспечения радиационной безопасности (ОСПОРБ-99) СП 2.6.1.799-99. Минздрав России. 2000.
39. *Левин В.И.* Получение радиоактивных изотопов : [техническая литература] / Валентин Ильич Левин. – Москва : Атомиздат, 1972. – 256 с.
40. *Барабанов С.А.* Основы радиационной безопасности / С.А. Барабанов, П.И. Залевский, П.А. Пономаренко – Военно-морской флот. 1973.

41. *Гордеев И.В.* Справочник по ядерно-физическим константам для расчета реакторов / И.В Гордеев, Д.А. Кардашев, А.В. Малышев. – Москва: Издательство государственного комитета совета министров СССР по использованию атомной энергии, 1960.

42. *Бартоломей Г.Г.* Основы теории и методы расчета ядерных энергетических реакторов / Г.Г. Бартоломей, Г.А. Бать, В.Д. Байбаков, М.С. Алхутов. - Москва: Энергоатомиздат, 1989. – 512 с.

43. *Гордеев И.В.* Справочник по ядерно-физическим константам для расчета реакторов / И.В Гордеев, Д.А. Кардашев, А.В.Малышев. – Москва : Издательство государственного комитета совета министров СССР по использованию атомной энергии, 1960.

44. Отчет о научно-исследовательской работе. Определение нейтронно-физических характеристик активной зоны реактора ИР-100. МинТопЭнергоУкраины. – Севастополь: СНУЯЭиП, 2003.

45. В.Ф.Козлов Справочник по радиационной безопасности, 4-е издание, переработанное и дополненное. – Москва : ЭНЕРГОАТОМИЗДАТ, 1991.

46. Гороновский И.Т., Назаренко Ю.П., Некряч Е.Ф.. Краткий справочник по химии. - Киев: Изд-во АН УССР, 1963. - стр. 314.

47. Журавлев В.Ф Токсикология радиоактивных веществ. - 2-е изд., перераб. и доп. – М. : Энергоатомиздат, 1990. - 336 с. - ISBN 5-283-03065-2.

48. Афанасьев А.В. Дозиметрические величины и единицы их измерения: учеб. пособие. - Севастополь: СНИЯЭиП, 2002. - 24 с.

**МЕТОДИКА РАСЧЕТА РАДИОАКТИВНЫХ ИЗОТОПОВ ХИМИЧЕСКИХ
ЭЛЕМЕНТОВ – СОСТАВЛЯЮЩИХ ВОЗДУШНОЙ СРЕДЫ НА ПРИМЕРЕ
ТРИТИЯ, РАДИОУГЛЕРОДА И АРГОНА-41**

Методические указания

Составитель: Фролова Мария Александровна

В авторской редакции

Изд. № 7/2020. Объем 3,75 п.л.

РИИЦМ ФГАОУ ВО «Севастопольский государственный университет»