

УДК 621.039.574.3

© 2008

МЕТОДИКА РЕКОНСТРУКЦИИ РАДИОНУКЛИДНОГО СОСТАВА И АКТИВНОСТИ ОСКОЛКОВ ДЕЛЕНИЯ, НАКАПЛИВАЮЩИХСЯ В ОБЛУЧЕННОМ УРАНЕ НА МОМЕНТ ЕГО РАДИОХИМИЧЕСКОЙ ПЕРЕРАБОТКИ НА ЗАВОДЕ "Б" ПО "МАЯК" В НАЧАЛЕ 1950-х гг.

Ю.В. Глаголенко, Е.Г. Дрозко, Ю.Г. Мокров, С.И. Ровный, А.В. Лысков
Россия, г. Озерск, ФГУП "ПО "Маяк"

Л.Р. Англо

США, Солт Лейк Сити, Университет штата Юта

Б.А. Нанье

США, г. Ричланд, штат Вашингтон, Северо-Западная Тихоокеанская лаборатория

Предложена расчетная методика реконструкции радионуклидного состава и активности осколков деления, накапливающихся в облученном уране промышленных уран-графитовых реакторов ПО "Маяк" на момент окончания облучения и на момент передачи урана на радиохимическую переработку (завод "Б") в начале 1950-х гг. Методика включает реакторную модель и модель бассейна выдержки и основана на использовании архивных данных о помесечной выгрузке и загрузке урана в реактор и в бассейн выдержки каждого реактора. Реконструкция подлжжит: последовательность ежесуточной перегрузки урана в зависимости от радиуса его расположения в активной зоне реактора; продолжительность облучения и радионуклидный состав осколков деления в каждом радиусе; последовательность извлечения урана из бассейна выдержки; эффективное время хранения урана в бассейне; радионуклидный состав и активность осколков деления в облученном уране, поступавшем на радиохимическую переработку посуточно и в среднем за каждый месяц. Модель предполагается использовать для восстановления параметров источников выброса радионуклидов в атмосферу и источника образования жидких радиоактивных отходов на радиохимическом заводе ПО "Маяк".

Производственное объединение (ПО) "Маяк" было создано в конце 1940-х гг. по специальному решению Правительства СССР для производства оружейного плутония.

В состав предприятия первоначально входили [1]:

- реакторное производство (завод "А");
- радиохимическое производство (завод "Б");
- химико-металлургическое производство (завод "В").

Технологический процесс получения оружейного плутония на ПО "Маяк" состоял из следующих основных этапов:

- облучение естественного урана в промышленных уран-графитовых реакторах

(ПУТР) с целью накопления в облученном уране плутония (^{239}Pu);

– промежуточное хранение облученного в ПУТР урана в бассейне выдержки с целью снижения активности образовавшихся в уране осколков деления (в результате естественного радиоактивного распада) и для завершения процесса накопления ^{239}Pu после распада ^{239}Np ;

– поставка полученного урана из бассейна выдержки на радиохимический завод "Б", где производилось его растворение и выделение/разделение плутония, урана и осколков деления;

– отправка концентрата плутония (состоящего, в основном, из фторидов плутония и лантана) на завод "Б" для получения высокочистого металлического плутония [2].

Процесс растворения облученного урана на радиохимическом заводе сопровождался выделением большого количества радионуклидов осколочного происхождения, часть из которых поступала с технологическими газовыми сдувками в атмосферу через большую (высотой 150 м) выбросную трубу, а остальная часть распределялась между различными технологическими растворами.

Образующиеся на заводе "Б" жидкие высокоактивные отходы (ВАО) направлялись на длительное хранение в специальные емкости (комплекс "С"), а низкоактивные отходы поступали на сброс в р. Теча.

В начальный период деятельности предприятия (1950-е гг.) в результате газоаerosольных выбросов в атмосферу и сбросов жидких радиоактивных отходов (ЖРО) в р. Теча произошло интенсивное радиоактивное загрязнение территории, прилегающей к ПО "Маяк", и прибрежных районов р. Теча, а население подверглось значительному радиационному воздействию.

На ПО "Маяк" регулярный штатный контроль сбросов ЖРО в р. Теча был организован в октябре 1951 г., а контроль выбросов радиоактивных веществ в атмосферу — в середине 1960-х гг.

В настоящее время на ПО "Маяк" проводится комплекс исследований, направленных на реконструкцию радиоактивного загрязнения территории и оценку радиационного воздействия на население в первые годы работы предприятия, когда контроль выбросов и сбросов не проводился.

Исходный (и наиболее ответственный) этап этих исследований связан с проблемой реконструкции параметров источника атмосферных выбросов и сбросов ЖРО в р. Теча. Основными реконструируемыми параметрами источника следует считать распределение во времени мощности выбросов/сбросов и радионуклидного состава активности, поступающей в воздушную среду через выбросные и сбросные трубы завода "Б". Очевидно, что указанные параметры источника образования жидких и газообразных отходов определяются соответствующими параметрами входного "сырья" — облученного урана, поступающего на радиохимическую переработку, и особенностями

технологической схемы процесса переработки (конструкцией аппаратов, используемыми химическими реагентами, наличием и эффективностью газоочистного оборудования и др.).

В данной работе основное внимание будет уделено вопросам разработки методики реконструкции радионуклидного состава и активности осколков деления, накапливающихся в облученном уране ПУТР, направляемом на радиохимический завод "Б".

1. РЕАКТОРНАЯ МОДЕЛЬ

Распределение плотности потока тепловых нейтронов (мощности) по объему активной зоны ядерного реактора цилиндрической формы, можно описать [3]:

$$\varphi(r, z) = \varphi_0 \cdot \Psi(r) \cdot \Theta(z), \quad \Psi(r) = J_0 \left(\frac{2,405 r}{R_0} \right),$$

$$\Theta(z) = \cos \left(\frac{\pi z}{z_0} \right), \quad (1)$$

где φ_0 — плотность потока тепловых нейтронов в центре активной зоны (при $r = 0$ и $z = 0$);

r и z — текущие координаты по радиусу и высоте, соответственно;

R_0 и z_0 — экстримированные радиус и высота активной зоны реактора, соответственно;

J_0 — функция Бесселя нулевого порядка.

Строго говоря, уравнение (1) справедливо (является точным решением) только для модели гомогенного реактора без отражателя в одностороннем приближении.

В гетерогенном реакторе при наличии бокового и торцевых отражателей и/или при использовании специальных режимов загрузки активной зоны распределение $\varphi(r, z)$ может существенно отличаться от (1), поскольку физические свойства материалов в различных частях активной зоны и отражателе неодинаковы для нейтронов разных энергий.

Анализ сохранившихся архивных данных показывает, что распределение мощности по радиусу активной зоны промышленных уран-графитовых реакторов (ПУТР) ПО "Маяк" в начале 1950-х гг. можно, в первом приближении, представить в виде "бесселеподобной" функции

вида (1) с соответствующим выбором значения эффективного "экстраполированного" радиуса R_0 . Значение R_0 может быть выбрано расчетным образом исходя из экспериментально измеренного в 1950-х гг. значения коэффициента неравномерности, который определяется как отношение максимальной мощности технологического канала реактора (в центре активной зоны) к средней мощности всех каналов в реакторе. Краткое описание конструкции ПУТР приведено в работе [4].

ПУТР ПО "Маяк" предназначались для получения (наработки) в реакторе) плутония оружейного качества [2]. "Качество" плутония определяется отношением массы ненужного, "балластного" изотопа ^{240}Pu к массе "полезного" ^{239}Pu . Изотоп ^{240}Pu образуется в реакторе путем захвата теплового нейтрона изотопом ^{239}Pu , поэтому избежать наработки ^{240}Pu практически невозможно.

Отношение $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ возрастает с увеличением длительности облучения, поэтому в промышленных реакторах время облучения урана ограничивалось малыми сроками (несколько месяцев) [2].

В первом приближении (при небольшой продолжительности облучения) можно считать, что содержание ^{239}Pu в облученном уране пропорционально флюенсу тепловых нейтронов. Поскольку распределение плотности потока тепловых нейтронов по радиусу активной зоны реактора имеет неравномерный характер, то для накопления одного и того же количества ^{239}Pu в единице массы урана продолжительность облучения периферийных каналов должна быть больше, чем центральных [2].

Таким образом, для корректного определения усредненного радионуклидного состава осколков деления образующихся во всем объеме активной зоны ПУТР необходимо восстановить распределение относительной доли выгружаемого урана в зависимости от продолжительности облучения и плотности потока тепловых нейтронов. Для реконструкции такого распределения воспользуемся подходом, изложенным в работе [5].

Относительный радионуклидный состав продуктов деления накапливающихся в облученном уране заданного технологического канала на момент окончания облучения не зави-

сит от координаты z (по высоте активной зоны), а общая накопленная активность определяется только мощностью данного канала (средней по высоте плотностью потока тепловых нейтронов) и продолжительностью облучения данного канала в активной зоне. В свою очередь, мощность каждого канала (и время облучения в активной зоне реактора) определяется только местоположением (по радиусу r) канала в активной зоне реактора. Поэтому распределение мощности реактора по высоте активной зоны $\Psi(z)$ не влияет на радионуклидный состав осколков деления, содержащихся в извлекаемом из реактора уране.

Представим "цилиндрическую" активную зону ПУТР в виде набора из N соосных, вложенных друг в друга цилиндрических колец (втулок) с одинаковым поперечным сечением:

$$S_0 = \frac{\pi R^2}{N}, \quad (2)$$

где R — радиус активной зоны реактора.

Тогда внешний радиус — R и средний радиус — r_i , i -го кольца будет:

$$R_i = \sqrt{i \cdot \frac{S_0}{\pi}}, \quad r_i = \frac{R_{i-1} + R_i}{2}, \quad (3)$$

Если мощность всего реактора W_0 , то мощность i -го цилиндрического кольца (слоя) — W_i можно записать в виде:

$$W_i = W_0 \cdot \frac{\Psi(r_i)}{\sum_{i=1}^N \Psi(r_i)} = W_0 \cdot \tilde{\Psi}(r_i), \quad (4)$$

где

$$\tilde{\Psi}(r_i) = \frac{\Psi(r_i)}{\sum_{i=1}^N \Psi(r_i)}, \quad (5)$$

$$\Psi(r_i) = J_0 \left(\frac{2,405 r_i}{R_0} \right). \quad (6)$$

Для проведения практических расчетов функцию Бесселя $J_0(x)$ можно представить в виде суммы первых пяти членов ряда:

$$J_0(x) = 1 - \frac{x^2}{4} + \frac{x^4}{64} - \frac{x^6}{2304} + \frac{x^8}{147456}. \quad (7)$$

В первое время после пуска ПУТР в эксплуатацию из реактора выгружались и направлялись на радиохимическую переработку только центральные каналы, в которых было

достигнуто плавное накопление ^{239}Pu в облученном уране. В последующий период времени выгрузке из реактора подвергались каналы, расположенные на некотором удалении от центра активной зоны, время нахождения которых в реакторе возрастало по мере удаления от центральной части активной зоны. Спустя некоторое время (~1,5–2 года после пуска ПУТР в эксплуатацию) реактор переводился в стационарный режим регулярных плановых перегрузок урана, когда относительная доля урана, выгружаемая из каждого радиуса r_i , составляла некоторую фиксированную часть δ_i от общей массы выгруженного урана, при этом:

$$\sum_{i=1}^N \delta_i = 1. \quad (8)$$

В архивах ПО "Маяк" сохранилась информация о помесачной выгрузке (и загрузке) массы урана в каждый реактор за каждый j -ый месяц ΔM_j [6].

При стационарном режиме перегрузок $\Delta M_j = \Delta M_0 \cong \text{const}$, тогда среднее время облучения всего урана в реакторе можно оценить:

$$\bar{T} = \frac{M_0}{\Delta M_0}, \quad \delta_0 = \frac{\Delta M_j}{M_0} \cong \frac{\Delta M_0}{M_0}, \quad (9)$$

где M_0 – общая масса урана загруженного в реактор;

δ_0 – относительная доля выгрузки урана из реактора, месяц $^{-1}$.

Очевидно, что в режиме стационарных регулярных перегрузок урана должны выполняться следующие соотношения:

$$\bar{T} = \sum_{i=1}^N T(r_i) \cdot \delta_i = \frac{T_0 N}{\sum_{i=1}^N \Psi(r_i)} = T_0 \cdot K, \quad (10)$$

$$T(r_i) = \frac{T_0}{\Psi(r_i)}, \quad (11)$$

$$\delta_i = \frac{\Psi(r_i)}{\sum_{i=1}^N \Psi(r_i)} = \tilde{\Psi}(r_i), \quad (12)$$

где T_0 – регламентированное время облучения урана в центре реактора ($i=0$);

$\Psi(r_i)$ – продолжительность облучения урана в реакторе на радиусе r_i ;

K – коэффициент неравномерности распределения мощности реактора

по радиусу активной зоны (Power Peaking Factor) [5].

Если мощность реактора $W_r = 1$ кВт, то в реакторе происходит $G_0 = 3,1 \cdot 10^{13}$ делений в секунду, а активность k -го осколка деления в облученном уране (на момент окончания облучения) можно записать:

$$A_k = G_0 \cdot \gamma_k \cdot \delta_k \cdot N \cdot \sum_{i=1}^N (\tilde{\Psi}(r_i))^2 \cdot (1 - e^{-\lambda_k T(r_i)}), \quad (13)$$

где γ_k – кумулятивный (накопленный) выход k -го осколка на одно деление ядра урана;

λ_k – постоянная распада k -го нуклида.

Таблица 1

Значения периода полураспада $T_{1/2}$ и кумулятивный выход γ_k основных осколков при делении ^{235}U на тепловых нейтронах

| Радио-нуклид | Период полураспада $T_{1/2}$ | Кумулятивный выход γ_k , % |
|--------------------------------------|------------------------------|-----------------------------------|
| ^{90}Sr | 50,50 сут | 4,78±0,35 |
| $^{90}\text{Sr} / ^{90}\text{Y}$ | 29,14 лет / 64 ч | 5,85±0,19 |
| ^{91}Y | 58,51 сут | 5,88±0,08 |
| ^{92}Zr | 63,98 сут | 6,56±0,24 |
| ^{93}Nb | 35,15 сут | 6,56±0,24 |
| $^{101}\text{Ru} / ^{101m}\text{Rh}$ | 39,35 сут / 56 мин | 3,02±0,23 |
| $^{109}\text{Ru} / ^{109}\text{Rh}$ | 1,0088 лет / 30 с | 0,407±0,015 |
| ^{131}I | 8,04 сут | 2,89±0,19 |
| $^{137}\text{Cs} / ^{137m}\text{Ba}$ | 30,021 лет / 2,55 мин | 6,24±0,54 |
| ^{140}Ba | 12,74 сут | 6,28±0,07 |
| ^{140}La | 1,678 лет | 6,28±0,07 |
| ^{141}Ce | 32,50 сут | 5,85±0,31 |
| $^{144}\text{Ce} / ^{144}\text{Pr}$ | 284,9 сут / 17,3 мин | 5,46±0,16 |
| ^{145}Pr | 13,58 сут | 5,94±0,43 |
| ^{147}Nd | 10,98 сут | 2,27±0,19 |
| $^{147}\text{Pm}^*$ | 958,1 сут | 2,27±0,19 |
| $^{152}\text{Sb}^*$ | 2,73 лет | 0,0278±0,0016 |
| $^{151}\text{Sm}^*$ | 88,79 лет | 0,416±0,0066 |
| $^{155}\text{Eu}^*$ | 4,96 лет | 0,0324±0,00096 |

Примечание. * Относительная активность указанных радионуклидов становится значимой только при длительной (> 500 сут) выдержке облученного урана.

Значения параметров γ_i и λ_i (периода полураспада) для основных рассматриваемых осколков деления приведены в табл. 1 по данным компьютерных файлов (библиотек) "JEF 2.2 library" и "Nuclides-2000".

Распределение мощности по радиусу активной зоны для каждого реактора задавалось путем выбора соответствующего значения R_0 (см. уравнение (6)), таким образом, чтобы результирующее (расчетное) значение коэффициента неравномерности K (см. уравнение (10)) соответствовало архивным данным. В период с 1948 по 1953 гг. значение коэффициента неравномерности мощности по радиусу активной зоны принято равным: для реактора "А" — $K=1,5$, а для реактора "АВ-1" — $K=1,4$.

В табл. 2 приведены сохранившиеся архивные данные об относительной ежемесячной доле выгружаемого урана из этих реакторов за период 1950–1953 гг.

Анализ данных, приведенных в табл. 2, показывает, что первые 1–1,5 года после пуска реакторов в эксплуатацию разгрузка (и загрузка) урана в реактор характеризовалась высокой неравномерностью (δ_0 изменялось от 4 до 40 %),

а в последующий период времени установился "стационарный" режим перегрузки урана, когда из активной зоны ежемесячно выгружалось от 19 до 25 % от всего урана, загруженного в активную зону. Среднее за 1950–1951 гг. значение доли ежемесячного перегружаемого урана составило для реактора "А" — $\delta_0 = 0,174$ мес⁻¹ (среднее время облучения $T = 175$ сут), а для реактора "АВ-1" — $\delta_0 = 0,21$ мес⁻¹ (среднее время облучения $T = 145$ сут). В период 1952–1953 гг. соответствующие значения для реакторов "А" и "АВ-1" составляли: $\delta_0 = 0,19$ мес⁻¹ ($T = 160$ сут) и $\delta_0 = 0,25$ мес⁻¹ ($T = 120$ сут).

2. СТАЦИОНАРНЫЙ РЕЖИМ ПЕРЕГРУЗКИ УРАНА В РЕАКТОРЕ

В период с 1948 по 1951 гг. на радиохимическую переработку поступало облученное топливо только из двух ПУТР — "А" и "АВ-1". В период с 20 января 1949 г. по 26 марта 1949 г. реактор "А" был остановлен на капитальный ремонт [2] для замены всех труб технологических каналов. При этом несколько тысяч урановых блоков было повторно загружено в реактор [2].

Таблица 2

Относительная ежемесячная доля извлекаемого урана из реакторов "А" и "АВ-1" за период 1950–1953 гг.

в долях от общей массы загруженного в активную зону

| Месяц | 1950 год | | 1951 год | | 1952 год | | 1953 год | |
|---------|----------|--------|----------|--------|----------|--------|----------|--------|
| | "А" | "АВ-1" | "А" | "АВ-1" | "А" | "АВ-1" | "А" | "АВ-1" |
| 1 | 0,221 | — | 0,165 | 0,417 | 0,198 | 0,292 | 0,171 | 0,291 |
| 2 | 0,197 | — | 0,039 | 0,177 | 0,276 | 0,306 | 0,218 | 0,134 |
| 3 | 0,171 | — | 0,208 | 0,190 | 0,115 | 0,177 | 0,145 | 0,256 |
| 4 | 0,122 | — | 0,201 | 0,048 | 0,191 | 0,110 | 0,218 | 0,346 |
| 5 | 0,233 | — | 0,159 | 0,280 | 0,206 | 0,364 | 0,198 | 0,229 |
| 6 | 0,038 | — | 0,161 | 0,301 | 0,193 | 0,281 | 0,259 | 0,231 |
| 7 | 0,191 | — | 0,206 | 0,183 | 0,174 | 0,134 | 0,138 | 0,298 |
| 8 | 0,166 | 0,281 | 0,195 | 0,108 | 0,221 | 0,229 | 0,195 | 0,245 |
| 9 | 0,116 | 0,175 | 0,191 | 0,263 | 0,147 | 0,322 | 0,193 | 0,214 |
| 10 | 0,275 | 0,327 | 0,179 | 0,308 | 0,200 | 0,191 | 0,181 | 0,291 |
| 11 | 0,168 | 0,089 | 0,183 | 0,180 | 0,202 | 0,129 | 0,200 | 0,259 |
| 12 | 0,200 | 0,149 | 0,185 | 0,111 | 0,163 | 0,380 | 0,178 | 0,253 |
| Среднее | 0,175 | 0,204 | 0,173 | 0,214 | 0,191 | 0,243 | 0,191 | 0,254 |

Поэтому весной и летом 1949 г. из реактора "А" извлекались, в основном, повторно загруженные урановые блоки с временем дополнительного облучения ~50–100 сут. В последующий период времени повторная загрузка уже облученного в реакторе урана никогда не проводилась.

В табл. 3, для примера, приведены основные параметры цилиндрической модели реак-

тора "АВ-1" для 30 цилиндрических слоев. При проведении этих расчетов предполагалось, что среднее время облучения урана в активной зоне (за период 1950–1953 гг.) составляло $T=135$ сут (см. табл. 2).

В табл. 4 и 5, для примера, приведены удельные (нормировано на 1 кВт мощности) и относительные (нормированные на суммарную

Таблица 3

Основные параметры цилиндрической модели реактора "АВ-1" (с 1950 по 1953 гг.)

| Номер цилиндрического кольца, l | Средний радиус r_l | Эффективное (среднее) время облучения урана, сут | Относительное распределение мощности по радиусу $\bar{Y}(r_l)$ |
|-----------------------------------|----------------------|--|--|
| 1 | 0,091 | 96,4 | 0,0467 |
| 2 | 0,220 | 98,9 | 0,04549 |
| 3 | 0,287 | 101,2 | 0,04448 |
| 4 | 0,341 | 103,5 | 0,04349 |
| 5 | 0,387 | 105,8 | 0,04252 |
| 6 | 0,428 | 108,3 | 0,04156 |
| 7 | 0,465 | 110,8 | 0,04061 |
| 8 | 0,500 | 113,4 | 0,03967 |
| 9 | 0,532 | 116,2 | 0,03874 |
| 10 | 0,563 | 119,0 | 0,03782 |
| 11 | 0,591 | 121,9 | 0,03691 |
| 12 | 0,619 | 124,9 | 0,03602 |
| 13 | 0,645 | 128,1 | 0,03513 |
| 14 | 0,671 | 131,4 | 0,03425 |
| 15 | 0,695 | 134,8 | 0,03339 |
| 16 | 0,719 | 138,3 | 0,03253 |
| 17 | 0,742 | 142,0 | 0,03168 |
| 18 | 0,764 | 145,9 | 0,03084 |
| 19 | 0,785 | 149,9 | 0,03001 |
| 20 | 0,806 | 154,1 | 0,0292 |
| 21 | 0,827 | 158,5 | 0,02839 |
| 22 | 0,847 | 163,1 | 0,02759 |
| 23 | 0,866 | 167,9 | 0,0268 |
| 24 | 0,885 | 173,0 | 0,02601 |
| 25 | 0,904 | 178,3 | 0,02524 |
| 26 | 0,922 | 183,8 | 0,02448 |
| 27 | 0,940 | 189,7 | 0,02373 |
| 28 | 0,957 | 195,8 | 0,02298 |
| 29 | 0,975 | 202,3 | 0,02225 |
| 30 | 0,992 | 209,1 | 0,02152 |

Таблица 4

Удельный и относительный нуклидный состав осколков деления образующихся за время облучения в центре, на краю и в среднем по всей активной зоне реактора "АВ-1" при стационарном режиме перегрузки топлива (1950–1953 гг.) в сравнении с соответствующими данными для гипотетического реактора

| № | Нуклид | В центре ($T(r_c) = 96,4$ сут) | | На краю ($T(r_{sp}) = 209,1$ сут) | | Средний (стационарный режим перегрузки) | | Гипотетический реактор ($T = 135$ сут) | |
|-------|-------------------|------------------------------------|--------|---------------------------------------|--------|---|--------|---|--------|
| | | Ки/кВт | % | Ки/кВт | % | Ки/кВт | % | Ки/кВт | % |
| 1 | ⁹² Zr | 49,891 | 9,086 | 31,799 | 10,534 | 42,741 | 9,689 | 42,231 | 9,856 |
| 2 | ⁹⁵ Nb | 30,879 | 5,624 | 28,01 | 9,279 | 30,848 | 6,993 | 31,385 | 7,325 |
| 3 | ¹⁴⁰ Ba | 73,321 | 13,353 | 33,966 | 11,252 | 55,146 | 12,501 | 52,582 | 12,272 |
| 4 | ¹⁴⁰ La | 73,262 | 13,343 | 33,966 | 11,252 | 55,13 | 12,498 | 52,577 | 12,271 |
| 5 | ⁸⁹ Sr | 41,157 | 7,496 | 24,388 | 8,079 | 34,346 | 7,786 | 33,77 | 7,882 |
| 6 | ⁹⁰ Sr | 0,43 | 0,078 | 0,428 | 0,142 | 0,429 | 0,097 | 0,429 | 0,1 |
| 7 | ⁹⁵ Y | 46,979 | 8,556 | 29,133 | 9,651 | 39,854 | 9,035 | 39,311 | 9,175 |
| 8 | ¹⁰⁷ Ru | 28,955 | 5,273 | 15,924 | 5,275 | 23,496 | 5,326 | 22,956 | 5,358 |
| 9 | ¹⁰⁶ Ru | 0,793 | 0,144 | 0,716 | 0,237 | 0,766 | 0,174 | 0,765 | 0,179 |
| 10 | ¹³⁷ Cs | 0,445 | 0,081 | 0,444 | 0,147 | 0,445 | 0,101 | 0,445 | 0,104 |
| 11 | ¹⁴² Ce | 59,87 | 10,904 | 31,275 | 10,361 | 47,606 | 10,792 | 46,26 | 10,797 |
| 12 | ¹⁴⁴ Ce | 13,394 | 2,439 | 11,776 | 3,901 | 12,818 | 2,906 | 12,807 | 2,989 |
| 13 | ¹⁴⁷ Nd | 26,583 | 4,841 | 12,278 | 4,067 | 19,956 | 4,524 | 19,015 | 4,438 |
| 14 | ¹⁴⁹ Pr | 69,208 | 12,604 | 32,127 | 10,643 | 52,116 | 11,814 | 49,717 | 11,603 |
| 15 | ¹⁵¹ Pr | 33,912 | 6,176 | 15,631 | 5,178 | 25,425 | 5,764 | 24,213 | 5,651 |
| Сумма | | 549,079 | 100 | 301,861 | 100 | 441,123 | 100 | 428,465 | 100 |

активность) радионуклидные составы основных (с периодом полураспада больше ~10 сут) осколков деления, образующихся на момент окончания облучения в центре активной зоны ($i=1$), на периферии активной зоны ($i=N$) и в среднем по реактору (стационарный режим перегрузки урана для различных по радиусу участков активной зоны). В последней колонке табл. 4 и 5, для сравнения, приведены соответствующие данные для гипотетического ядерного реактора ($P_0 = 1$ кВт), который характеризуется постоянным распределением мощности по радиусу активной зоны и постоянным временем облучения всего урана (продолжительность кампании T).

Анализ расчетных результатов, приведенных в табл. 4 и 5, позволяет сделать следующие выводы:

– значения удельной активности (Ки/кВт) долгоживущих осколков деления (⁹⁰Sr, ¹³⁷Cs и др.) оказались практически одинаковыми для всех режимов облучения;

– для короткоживущих осколков деления (¹⁵¹Pr, ¹⁴⁹Pr, ¹⁴⁷Nd и др.) удельная активность (Ки/кВт) в центре активной зоны больше, чем на периферии примерно в 2–3 раза (пропорционально распределению мощности по радиусу активной зоны);

– при стационарном режиме перегрузки урана средний радионуклидный состав осколков деления в выгружаемом уране практически не отличается от соответствующего радионуклидного состава для гипотетического реактора. Незначительные различия могут наблюдаться только для самых короткоживущих осколков деления. Так, например, для реактора "АВ-1"

Таблица 5

Удельный и относительный нуклидный состав осколков деления образующихся за время облучения в центре, на краю и в среднем по всей активной зоне реактора "А" при стационарном режиме перегрузки топлива (1950–1953 гг.) в сравнении с соответствующими данными для гипотетического реактора

| № | Нуклид | В центре ($T(r_c) = 111,3$ сут) | | На краю ($T(r_{so}) = 284,2$ сут) | | Средний (стационарный режим перегрузки) | | Гипотетический реактор ($T = 165$ сут) | |
|-------|-------------------|-------------------------------------|--------|---------------------------------------|--------|---|--------|---|--------|
| | | Ки/кВт | % | Ки/кВт | % | Ки/кВт | % | Ки/кВт | % |
| 1 | ⁹⁵ Zr | 57,092 | 9,436 | 30,442 | 10,763 | 46,828 | 10,006 | 45,763 | 10,218 |
| 2 | ⁹⁵ Nb | 38,397 | 6,346 | 28,795 | 10,181 | 36,494 | 7,798 | 37,137 | 8,292 |
| 3 | ¹⁴⁰ Ba | 77,850 | 12,866 | 30,548 | 10,800 | 56,335 | 12,038 | 52,61 | 11,747 |
| 4 | ¹⁴⁰ La | 77,822 | 12,862 | 30,548 | 10,800 | 56,328 | 12,036 | 52,609 | 11,746 |
| 5 | ⁸⁹ Sr | 46,496 | 7,684 | 22,781 | 8,054 | 37,028 | 7,912 | 35,889 | 8,013 |
| 6 | ⁹⁰ Sr | 0,525 | 0,087 | 0,522 | 0,185 | 0,524 | 0,112 | 0,524 | 0,117 |
| 7 | ⁹¹ Y | 53,507 | 8,843 | 27,615 | 9,763 | 43,400 | 9,274 | 42,289 | 9,442 |
| 8 | ¹⁰³ Ru | 32,239 | 5,328 | 14,592 | 5,159 | 24,922 | 5,325 | 23,919 | 5,341 |
| 9 | ¹⁰⁰ Ru | 0,956 | 0,158 | 0,820 | 0,290 | 0,912 | 0,195 | 0,91 | 0,203 |
| 10 | ¹³⁷ Cs | 0,544 | 0,090 | 0,541 | 0,191 | 0,543 | 0,116 | 0,543 | 0,121 |
| 11 | ¹⁴¹ Ce | 65,914 | 10,894 | 28,390 | 10,037 | 49,934 | 10,670 | 47,561 | 10,619 |
| 12 | ¹⁴⁴ Ce | 16,089 | 2,659 | 13,257 | 4,687 | 15,154 | 3,238 | 15,126 | 3,377 |
| 13 | ¹⁴⁷ Nd | 28,181 | 4,657 | 11,042 | 3,904 | 20,373 | 4,353 | 19,018 | 4,246 |
| 14 | ¹⁴³ Pr | 73,556 | 12,156 | 28,894 | 10,215 | 53,264 | 11,382 | 49,757 | 11,11 |
| 15 | ¹³¹ I | 35,908 | 5,934 | 14,058 | 4,970 | 25,944 | 5,544 | 24,213 | 5,406 |
| Сумма | | 605,074 | 100 | 282,844 | 100 | 467,983 | 100 | 447,868 | 100 |

удельная активность ¹³¹I (период полураспада 8,04 сут) в выгружаемом уране при стационарном режиме перегрузок превышает соответствующие значения активности для гипотетического реактора на 5 %, а для ⁹⁰Sr (период полураспада 50,5 сут) – всего на 1,7 % (табл. 4).

Таким образом, для проведения практических расчетов радионуклидного состава осколков деления в выгружаемом уране реального реактора, эксплуатируемого в режиме стационарных перегрузок, можно пользоваться более простыми вычислительными процедурами для гипотетического ядерного реактора, который характеризуется постоянным распределением мощности по радиусу активной зоны и постоянным временем облучения урана (T).

3. ПЕРЕХОДНЫЙ (НАЧАЛЬНЫЙ) РЕЖИМ ПЕРЕГРУЗКИ УРАНА В РЕАКТОРЕ

Для реконструкции радионуклидного состава осколков деления, образующихся в уране ядерного реактора в начальный период его эксплуатации, была создана специальная компьютерная модель, которая позволяет проследить "историю" облучения каждого технологического канала в реакторе. Модель основана на следующих предположениях:

1. Активная зона реактора разбивается на 30 цилиндрических соосных слоев с одинаковым объемом, в каждом из которых содержится $1/30 = 0,0333 \dots$ каналов от их общего количества в реакторе.

2. Распределение мощности по радиусу активной зоны $\Psi(r_i)$ и среднее эффективное время облучения урана в каждом радиусе $T(r)$ рассчитывается по уравнениям (10)–(12).

3. В момент пуска реактора в эксплуатацию время облучения урана, находящегося во всех радиусах, равно нулю.

4. Временной шаг проведения расчетов равен одним суткам.

5. В момент, когда время эксплуатации реактора достигает расчетного значения эффективного времени облучения урана в i -м радиусе активной зоны, начинается процесс перегрузки урана. Процесс перегрузки урана начинается с центральной части активной зоны ($i = 1$), а затем распространяется на периферийные участки ($i = 2, i = 3$ и т.д.). В пределах каждого месяца ежесуточная скорость перегрузки урана постоянна и определяется числом дней в месяце и долей перегружаемого урана за рассматриваемый месяц (см. табл. 2).

6. В любой момент времени, когда условиям перегрузки урана удовлетворяли сразу несколько каналов, расположенных в разных радиусах, предпочтение для перегрузки отдавалось каналам с меньшим радиусом.

7. После перегрузки каждого канала время облучения урана в рассматриваемом канале "обнуляется", и начинается новый отсчет времени облучения.

В табл. 6, для примера, приведен фрагмент результатов реконструкции помесечной перегрузки массы урана в реакторе "АВ-1" за период 1950–1951 гг. Следует отметить, что физический пуск реактора "АВ-1" состоялся 04.04.1950, на проектную мощность реактор был выведен в июне 1950 г., а первые партии урана были выгружены в августе 1950 г.

Данные табл. 6 определяют долю урана, выгружаемого из каждого условного радиуса реактора "АВ-1" за каждый месяц в период с момента его пуска в эксплуатацию в 1950 г. Указанная информация позволяет оценить средний радионуклидный состав осколков деления в облученном уране за любой месяц рассматриваемого периода времени.

Следует иметь в виду, что при определении приоритета, периодичности и массы перегружаемого урана специалисты реакторного

завода в 1950-х гг. учитывали также следующие дополнительные факторы:

- необходимость внеплановой перегрузки дефектных урановых блоков в реакторе, которые диагностировались с использованием системы контроля расхода воды в каналах;

- необходимость внеплановой перегрузки урана в дефектных алюминиевых каналах (трубах), которые выявлялись путем контроля влажности газа, продуваемого через кладку;

- плановыми заданиями по поставке необходимого количества плутония на радиохимический завод;

- наличием на складе необходимого количества "свежих" (необлученных) урановых блоков для загрузки в реактор и др.

Поэтому, реальный режим перегрузки урана в реакторе мог в какой-то степени отличаться от реконструированного режима (см. табл. 6). Тем не менее, можно полагать, что предложенная модель (алгоритм) в целом правильно учитывает основные тенденции по последовательности перегрузки урана в начальный (пусковой) период эксплуатации реакторного производства и позволяет корректно оценить радионуклидный состав осколков деления, накапливающихся в облученном уране.

Для примера, в табл. 7 приведены результаты расчета активности ^{131}I , ^{90}Sr и ^{90}Sr в выгружаемом топливе реактора "АВ-1" за период с августа 1951 г. по декабрь 1953 г. при эксплуатации реактора на мощности 1 кВт.

Анализ информации, приведенной в табл. 7, позволяет сделать следующие выводы:

- в различные периоды времени активность осколков деления, содержащаяся в извлекаемом из реактора уране, изменялась в широком диапазоне значений (до шести раз), в зависимости от общей массы извлеченного в данный месяц урана и его положения в активной зоне реактора;

- в начальный (пусковой) период эксплуатации реактора отношение активности $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Sr}$ в извлеченном уране изменялось от 72,8 (в январе 1951 г.) до 91,8 (ноябрь 1950 г.);

- в последующий период времени, при эксплуатации реактора в режиме регулярных перегрузок, отношение активности $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Sr}$ приближается к теоретическому значению ~80 (см. табл. 4).

ДОЗИМЕТРИЯ НАСЕЛЕНИЯ ЮЖНОГО УРАЛА

Таблица 6

Фрагмент реконструкции помесечной перегрузки массы урана
в реакторе "АВ-1" за 1950 по 1951 гг.

в процентах от общей массы урана в активной зоне

| Радиус | 1950 год | | | | | | 1951 год | | | |
|--------|----------|--------|----------|---------|--------|---------|----------|---------|-------|--------|
| | Июль | Август | Сентябрь | Октябрь | Ноябрь | Декабрь | Январь | Февраль | Март | Апрель |
| 1 | 0,0 | 3,33 | 0,0 | 0,0 | 3,33 | 0,0 | 0,0 | 3,33 | 0,0 | 0,0 |
| 2 | 0,0 | 3,33 | 0,0 | 0,0 | 3,33 | 0,0 | 0,0 | 1,61 | 1,72 | 0,0 |
| 3 | 0,0 | 3,33 | 0,0 | 0,0 | 1,15 | 2,19 | 0,0 | 0,0 | 3,33 | 0,0 |
| 4 | 0,0 | 3,33 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 3,33 | 0,0 | 0,0 | 3,33 | 0,0 |
| 5 | 0,0 | 3,33 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 3,33 | 0,0 | 0,0 | 1,98 | 1,35 |
| 6 | 0,0 | 3,33 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 3,33 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 3,33 |
| 7 | 0,0 | 3,33 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 2,60 | 0,73 | 0,0 | 0,0 | 0,10 |
| 8 | 0,0 | 3,33 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 3,33 | 0,0 | 0,0 | 0,0 |
| 9 | 0,0 | 1,25 | 2,08 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 3,33 | 0,0 | 0,0 | 0,0 |
| 10 | 0,0 | 0,0 | 3,33 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 3,33 | 0,0 | 0,0 | 0,0 |
| 11 | 0,0 | 0,0 | 3,33 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 3,33 | 0,0 | 0,0 | 0,0 |
| 12 | 0,0 | 0,0 | 3,33 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 3,33 | 0,0 | 0,0 | 0,0 |
| 13 | 0,0 | 0,0 | 3,33 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 2,66 | 0,68 | 0,0 | 0,0 |
| 14 | 0,0 | 0,0 | 1,82 | 1,51 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 3,33 | 0,0 | 0,0 |
| 15 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 3,33 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 3,33 | 0,0 | 0,0 |
| 16 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 3,33 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 3,33 | 0,0 | 0,0 |
| 17 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 3,33 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 1,87 | 1,46 | 0,0 |
| 18 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 3,33 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 3,33 | 0,0 |
| 19 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 3,33 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 3,33 | 0,0 |
| 20 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 3,33 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 0,42 | 0,0 |
| 21 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 3,33 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 0,0 |
| 22 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 3,33 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 0,0 |
| 23 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 3,33 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 0,0 |
| 24 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 0,94 | 1,04 | 0,0 | 1,35 | 0,0 | 0,0 | 0,0 |
| 25 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 3,33 | 0,0 | 0,0 | 0,0 |
| 26 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 3,33 | 0,0 | 0,0 | 0,0 |
| 27 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 3,33 | 0,0 | 0,0 | 0,0 |
| 28 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 3,33 | 0,0 | 0,0 | 0,0 |
| 29 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 3,33 | 0,0 | 0,0 | 0,0 |
| 30 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | 3,33 | 0,0 | 0,0 | 0,0 |
| Всего | 0,0 | 27,92 | 17,24 | 32,45 | 8,85 | 14,79 | 41,41 | 17,50 | 18,91 | 4,79 |

4. МОДЕЛЬ БАССЕЙНА ВЫДЕРЖКИ

В 1950-х гг. режим облучения в ПУТР и последующей переработки урановых блоков был следующим:

- продолжительность облучения урановых блоков в ПУТР составляла 3-7 месяцев (см. табл. 3);

- спустя 1,5-2,0 года после пуска ПУТР в эксплуатацию реактор переводился в режим

ДОЗИМЕТРИЯ НАСЕЛЕНИЯ ЮЖНОГО УРАЛА

Таблица 7

Расчетные значения активности ^{131}I , ^{90}Sr и ^{89}Sr в выгружаемом топливе реактора "АБ-1" за период с августа 1950 г. по декабрь 1953 г. (нормировано на мощность реактора 1 кВт)

| Год | Месяц | Активность, Ки | | | Отношение $^{89}\text{Sr}/^{90}\text{Sr}$ |
|---------|-------|------------------|------------------|------------------|---|
| | | ^{131}I | ^{90}Sr | ^{89}Sr | |
| 1950 | 8 | 8,69 | 10,94 | 0,119 | 91,6 |
| | 9 | 4,57 | 6,15 | 0,074 | 83,5 |
| | 10 | 7,10 | 10,20 | 0,139 | 73,5 |
| | 11 | 2,80 | 3,47 | 0,038 | 91,8 |
| | 12 | 4,55 | 5,75 | 0,063 | 91,2 |
| 1951 | 1 | 9,13 | 12,88 | 0,177 | 72,8 |
| | 2 | 4,69 | 6,25 | 0,075 | 83,4 |
| | 3 | 5,23 | 6,85 | 0,081 | 85,0 |
| | 4 | 1,45 | 1,85 | 0,021 | 90,3 |
| | 5 | 7,59 | 10,04 | 0,119 | 84,6 |
| | 6 | 7,46 | 10,13 | 0,127 | 79,5 |
| | 7 | 4,51 | 6,16 | 0,078 | 79,3 |
| | 8 | 3,02 | 3,92 | 0,046 | 85,9 |
| | 9 | 7,25 | 9,52 | 0,111 | 85,8 |
| | 10 | 6,96 | 9,68 | 0,131 | 74,1 |
| | 11 | 4,38 | 5,98 | 0,076 | 78,7 |
| | 12 | 3,32 | 4,22 | 0,047 | 89,9 |
| 1952 | 1 | 7,98 | 10,57 | 0,125 | 84,7 |
| | 2 | 7,26 | 10,01 | 0,131 | 76,6 |
| | 3 | 4,49 | 6,05 | 0,075 | 80,2 |
| | 4 | 3,18 | 4,13 | 0,047 | 87,3 |
| | 5 | 8,52 | 11,78 | 0,156 | 75,7 |
| | 6 | 7,59 | 10,06 | 0,120 | 83,8 |
| | 7 | 3,22 | 4,43 | 0,057 | 77,4 |
| | 8 | 5,80 | 7,86 | 0,098 | 80,3 |
| | 9 | 8,65 | 11,44 | 0,138 | 83,1 |
| | 10 | 4,80 | 6,54 | 0,082 | 80,1 |
| | 11 | 2,97 | 4,12 | 0,055 | 74,6 |
| | 12 | 9,82 | 13,11 | 0,162 | 80,9 |
| 1953 | 1 | 7,09 | 9,73 | 0,124 | 78,1 |
| | 2 | 3,60 | 4,80 | 0,058 | 83,4 |
| | 3 | 6,72 | 8,93 | 0,110 | 81,5 |
| | 4 | 9,02 | 12,10 | 0,148 | 82,0 |
| | 5 | 5,56 | 7,60 | 0,098 | 77,9 |
| | 6 | 5,81 | 7,82 | 0,099 | 79,4 |
| | 7 | 7,61 | 10,26 | 0,127 | 80,5 |
| | 8 | 6,23 | 8,42 | 0,104 | 80,7 |
| | 9 | 5,70 | 7,57 | 0,092 | 82,7 |
| | 10 | 7,49 | 10,07 | 0,125 | 80,9 |
| | 11 | 6,34 | 8,66 | 0,111 | 78,3 |
| | 12 | 6,28 | 8,51 | 0,108 | 78,8 |
| Сумма | — | 244,44 | 328,54 | 4,066 | — |
| Средняя | — | 6,0 | 8,0 | 0,010 | 80,8 |

регулярной (плановой) перегрузки. При этом, каждый день из активной зоны реактора выгружалось (и загружалось) от 0,5 до 1,0 % урановых блоков (технологических каналов) от общего количества, находящегося в активной зоне;

– разгруженные урановые блоки поступали на временное хранение (от 30 до 80 сут) в бассейн выдержки для распада короткоживущих радионуклидов [6];

– из бассейна выдержки облученные блоки ежедневно в специальных вагонах-контейнерах железнодорожным транспортом направлялись на радиохимическую переработку на завод “Б” (“ДБ”).

В архивах ПО “Маяк” удалось найти ежемесячную информацию о следующих составляющих баланса массы облученного урана (числа блоков) по каждому уран-графитовому реактору:

– масса урана, находящаяся в активной зоне реактора на начало и конец каждого календарного месяца;

– масса урана, поступившего из реактора в бассейн выдержки за каждый месяц;

– масса урана, хранящегося в бассейне выдержки на начало и конец каждого месяца;

– масса урана, отправленная на радиохимический завод за каждый месяц.

К сожалению, до настоящего времени не удалось обнаружить в архивах предприятия соответствующих посуточных данных.

4.1. Модель “последовательной очереди”

При отсутствии вышеуказанной посуточной информации для решения задачи по реконструкции радионуклидного состава осколков деления в облученном уране можно использовать различные детерминистические или вероятностные модели. В работе [6] был использован детерминистический подход, который будем условно называть моделью “последовательной очереди”. Эта модель предполагает, что в пределах каждого календарного месяца посуточная скорость поступления массы облученного урана из реактора в бассейн выдержки и скорость отправки массы урана из бассейна выдержки на радиохимическую переработку были постоянными. При этом, отправка на переработку каждой очередной партии облученного урана

была возможна только после того, как на завод “Б” будет отправлен весь уран, поступивший в бассейн выдержки раньше рассматриваемой партии урана. Другими словами, поступление урана из бассейна выдержки на радиохимическую переработку происходило в той же последовательности, в которой осуществлялась разгрузка урана из реактора, то есть в порядке “последовательной очереди”.

Для примера, в табл. 8 представлены результаты расчетов по модели “последовательной очереди” эффективного времени выдержки облученного урана, поступившего на радиохимическую переработку из бассейна выдержки реактора “А” в период с 1948 по 1954 гг. [6].

Эффективное время выдержки $T_{\text{эфф}}$ рассчитано по формуле:

$$T_{\text{эфф}} = -\ln \left(\frac{\sum N_j e^{-\lambda_j t_j}}{\sum N_j} \right) / \lambda, \quad (14)$$

где λ – постоянная распада ^{235}U , сут $^{-1}$;

N_j – число урановых блоков, поступивших на радиохимическую переработку (завод “Б”) в j -м месяце с временем хранения в бассейне выдержки реактора “А” равным T_j .

Выполненные расчеты показывают, что эффективное время выдержки для других радионуклидов (например ^{90}Sr) существенно не отличается от приведенного в табл. 8.

Для примера, на рис. 1 показана относительная доля отдельных партий блоков с различными временами хранения в бассейне выдержки от общего числа блоков, облученных в реакторе “А” с 1948 по 1951 гг.

В различные периоды времени (1950–1954 гг.) эффективное время выдержки облученного урана, поступившего на радиохимическую переработку с других ядерных реакторов noticeably отличается от данных табл. 8.

Для определения границ возможной неопределенности результатов расчетов, выполненных по детерминистической модели “последовательной очереди”, необходимо использовать альтернативные модели расчетов.

4.2. Модель “минимальной активности”

В соответствии с инструкцией, действовавшей на ПО “Маяк” в 1954 г., при комплек-

Таблица 8

Эффективное время выдержки – $T_{\text{эф}}$ облученного урана (для ^{131}I), поступавшего из бассейна выдержки реактора "А" на радиохимическую переработку за каждый месяц в период с 1948 по 1954 гг.

| Месяц | Год | | | | | | |
|----------|------|------|------|------|-------|------|------|
| | 1948 | 1949 | 1950 | 1951 | 1952 | 1953 | 1954 |
| Январь | – | 20,7 | 45,4 | 53,4 | 73,5 | 84,6 | 84,5 |
| Февраль | – | 35,6 | 47,0 | 57,1 | 67,2 | 78,4 | 81,2 |
| Март | – | 57,2 | 47,7 | 61,0 | 82,4 | 72,6 | 65,0 |
| Апрель | – | 80,4 | 51,1 | 49,5 | 86,8 | 71,4 | 53,8 |
| Май | – | 37,4 | 58,9 | 56,2 | 86,4 | 82,7 | 49,2 |
| Июнь | – | 23,4 | 65,1 | 62,4 | 82,5 | 83,2 | 45,4 |
| Июль | – | 26,3 | 61,0 | 65,3 | 87,0 | 79,2 | 42,3 |
| Август | – | 29,5 | 65,8 | 61,7 | 93,8 | 79,1 | 43,5 |
| Сентябрь | – | 31,8 | 63,1 | 55,5 | 0,0* | 81,5 | 44,1 |
| Октябрь | – | 34,4 | 62,5 | 62,9 | 120,7 | 78,0 | 0,0* |
| Ноябрь | – | 35,4 | 58,1 | 81,8 | 114,3 | 81,6 | 68,9 |
| Декабрь | 25,5 | 38,3 | 55,9 | 92,4 | 100,3 | 85,5 | 50,1 |

в сут

Примечание. * Поступления не было.

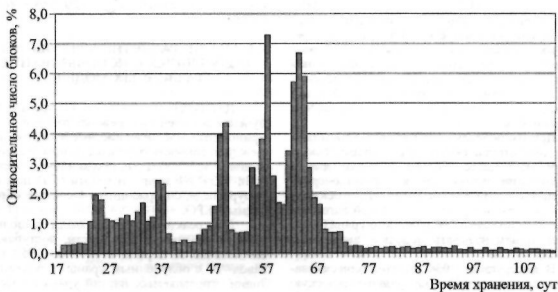


Рис. 1. Распределение по времени выдержки урана, поступавшего из реактора "А" на радиохимическую переработку с 1948 по 1951 гг.

тации партий облученного урана для отправки из бассейна выдержки реакторного завода на радиохимический завод необходимо было обеспечить выполнение следующих главных условий:

— время выдержки облученного урана должно было быть не менее 20–25 сут для того, чтобы весь ^{237}Np (период полураспада 2,3 сут) распался и превратился в ^{239}Pu ;

— суммарная активность бета-излучающих осколков деления в подготовленной для отправки на завод “Б” партии облученного урана должна была быть минимальной.

В начале 1950-х гг. суммарная активность бета-излучающих осколков деления в облученном уране в зависимости от времени облучения T и времени выдержки t определялась с использованием уравнения

$$A(T(r_1), t) = C \cdot \Psi(r_1) \cdot [1 - e^{-\lambda t} - (1 + T(r_1))^{-\lambda t}], \quad (15)$$

где C — нормировочная константа;

$T(r_1)$ — время облучения урана в радиусе r_1 (см. уравнение (11)).

Уравнение (16) получено на основе известного соотношения стада активности осколков “мгновенного” деления

$$A(t) \cong A_0 \cdot t^{-1.2}. \quad (16)$$

Анализ уравнения (15) показывает, что хотя продолжительность облучения периферийных каналов в реакторе была в 2–3 раза больше, чем центральных каналов, суммарная активность бета-излучающих осколков деления для периферийных каналов (при одной и той же выдержке t) будет существенно меньше, чем центральных.

Другими словами, при комплектации партий урана, отправленных на радиохимическую переработку, целесообразно (с точки зрения минимизации активности) в первую очередь направлять периферийные каналы, имеющие время выдержки $t \geq 20$ –25 сут. Такой алгоритм комплектации партий облученного урана будем в дальнейшем называть моделью “минимальной активности”.

В инструкции 1954 г. категорически запрещалось направлять на радиохимическую переработку уран с выдержкой менее 20 сут. В период времени до 1954 г. вышеуказанные условия комплектации партий урана выполнялись

не всегда, и на завод “Б” могли направляться отдельные партии урана с временем выдержки меньше 20 сут. В 1949–1952 гг. на радиохимическом заводе даже существовали специальные емкости, в которых растворенный уран подвергался дополнительной выдержке для распада ^{237}Np [2].

На рис. 2, для примера, приведены результаты расчетов изменения относительной активности осколков деления, накапливающихся в облученном уране реактора “А” в 1, 10, 20 и 30 радиусах для времени выдержки 20–120 сут. Расчеты были выполнены по уравнению (15), с использованием заданного распределения мощности по радиусу активной зоны и времени облучения в реакторе.

Анализ данных, приведенных на рис. 2, показывает, что через 20 сут после извлечения урана из реактора суммарная активность осколков деления в 30-м радиусе в 1,91 раза меньше, чем в первом радиусе, то есть, $A(T(r_1), t=20 \text{ сут}) = 1,91 \cdot A(T(r_{30}), t=20 \text{ сут})$.

При этом суммарная активность осколков деления в уране, извлеченном из 30-го радиуса при выдержке $t = 20$ сут, будет равна активности осколков деления в уране, извлеченном из первого радиуса при выдержке $t = 55$ сут, то есть $A(T(r_{30}), t=20 \text{ сут}) = A(T(r_1), t=55 \text{ сут})$.

5. АНАЛИЗ РАСЧЕТНЫХ РЕЗУЛЬТАТОВ, ПОЛУЧЕННЫХ С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ РАЗЛИЧНЫХ МОДЕЛЕЙ

Для реконструкции доз внутреннего облучения жителей прибрежных районов р. Теча принципиальное значение имеет соотношение между активностью долгоживущих радионуклидов (^{90}Sr , ^{137}Cs) и радионуклидов со средним (^{90}Sr , ^{90}Zr , ^{90}Nb и др.) и малым (^{131}I) периодом полураспада, содержащихся в составе сбрасываемых ЖРО.

Для реактора “АВ-1” были выполнены расчеты по оценке активности, поступающей ежемесячно за период с 1950 по 1953 гг. на завод “Б” с облученным ураном при комплектации отправляемых партий урана по модели “последовательной очереди” и по модели “минимальной активности”.

Результаты сравнительных расчетов поз-

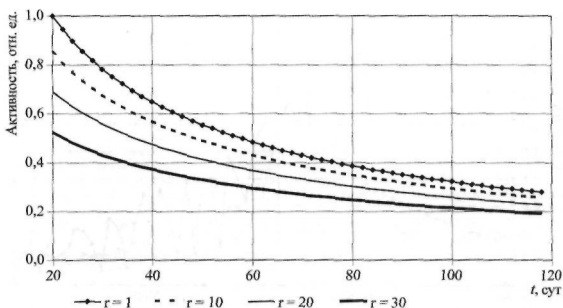


Рис. 2. Изменение относительной активности урана, облученного в различных радиусах активной зоны реактора "А" ($r = 1, 10, 20, 30$) в зависимости от времени выдержки t (20–120 сут). Результаты нормированы на активность первого радиуса ($r = 1$) при $t = 20$ сут.

воляют сделать следующие выводы:

— активность осколков деления с большим (^{86}Sr , ^{137}Cs , ^{144}Ce , ^{106}Ru и др.) и средним (^{90}Sr , ^{95}Zr , ^{91}Y и др.) периодом полураспада в облученном уране, поступающем на радиохимическую переработку, при комплектации партий по обеим моделям практически одинаковы (отличаются не более, чем на 1–2 %);

— ежемесячная активность короткоживущих осколков деления (^{131}I , ^{140}Ba , ^{147}Nd и др.) в облученном уране, скомплектованном по модели "минимальной активности", больше, чем по модели "последовательной очереди" в среднем на 10–20 %, но в отдельные периоды времени могла возрастать в 1,5–2,2 раза (рис. 3).

На рис. 4, для примера, приведены результаты расчетов по изменению отношения активностей $^{90}\text{Sr}/^{95}\text{Zr}$ в облученном уране, передаваемом из реактора "АВ-1" на завод "Б" за период 1950–1952 гг., выполненных по моделям "последовательной очереди" и "минимальной активности". Анализ данных, приведенных на

рис. 4, позволяет заключить, что результаты расчетов, выполненные по моделям "последовательной очереди" и "минимальной активности", хорошо (в пределах 1–2 %) совпадают между собой.

ВЫВОДЫ

1. Предложены математические модели расчета "теоретического" радионуклидного состава осколков деления, накапливающихся в облученном уране ядерного реактора (на момент окончания облучения), в бассейне выдержки облученного урана (на момент его передачи на радиохимический завод).

2. С использованием реакторной модели проведена реконструкция режима перегрузки урана в ядерных реакторах "А" и "АВ-1" в зависимости от распределения мощности по радиусу активной зоны. Приведены результаты расчетов радионуклидного состава осколков деления, накапливающихся в облученном уране для типичных режимов эксплуатации реакторов

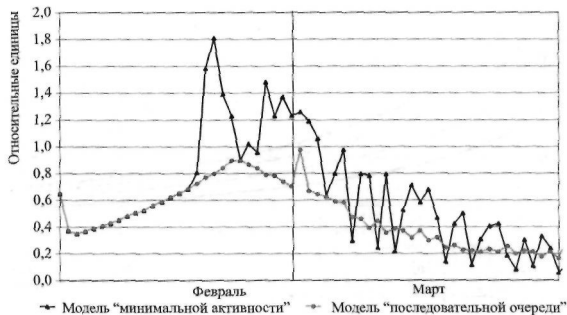


Рис. 3. Фрагмент реконструкции посуточной поставки с облученным ураном ^{131}I из бассейна выдержки реактора "АВ-1" на радиохимический завод в феврале-марте 1951 г.

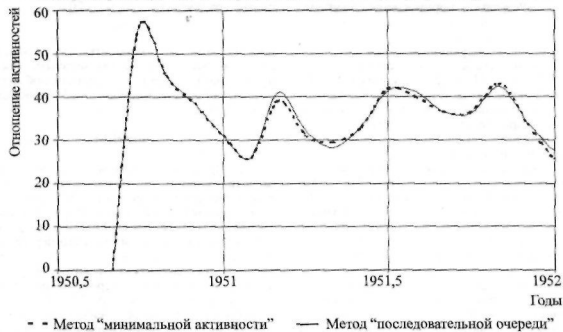


Рис. 4. Отношение активностей $^{89}\text{Sr}/^{90}\text{Sr}$ в облученном уране, поставляемом на завод "Б" из реактора "АВ-1" в период 1950–1952 гг. Расчеты выполнены по моделям "последовательной очереди" и "минимальной активности"

"А" и "АВ-1", существовавших в 1948–1953 гг. Расчеты выполнены для переходного (начального) режима эксплуатации реактора и для режима регулярных (стационарных) перегрузок урана в реакторе.

3. Расчеты времени выдержки облученного урана в бассейне выдержки выполнены с использованием математической модели "последовательной очереди" и модели "минимальной активности". Модель "последовательной очереди" предполагает, что поступление урана из бассейна выдержки на радиохимическую переработку проходило в той же последовательности, в которой осуществлялась разгрузка облученного урана из реактора. Модель "минимальной активности" предполагает, что в каждый конкретный момент времени на радиохимическую переработку направлялся уран, имеющий минимальную активность накопленных осколков деления.

4. Показано, что результаты расчетов, выполненных по модели "последовательной очереди", хорошо совпадают с соответствующими результатами, полученными при расчетах по модели "минимальной активности".

5. Предложенные модели предполагаются использовать для восстановления параметров источников поступления радионуклидов в окружающую среду в жидкими и газообразными радиоактивными отходами.

Работа выполнена в рамках проекта 1.4 JCCREK.

ЛИТЕРАТУРА

1. Фетисов В.И. Производственное объединение "Маяк" – из истории развития // Вопросы радиационной безопасности. – 1996. – № 1. – С. 5–10.
2. Круглов А.К. Как создавалась атомная промышленность в СССР. – 2-е изд., испр. – М.: ЦНИИ атоминформ, 1995. – 380 с.
3. Стефенсон Р. Введение в ядерную технику. – пер. с англ. – М.: Изд-во Техинико-теоретической литературы, 1956. – 536 с.
4. Глаголенко Ю.В., Дрожко Е.Г., Мокров Ю.Г. и др. Методика и результаты реконструкции выбросов инертных радиоактивных газов из труб графитовых реакторов ЛО "Маяк" за весь период их эксплуатации // Вопросы радиац. безопасности. – 2008. – Спецвыпуск. – С. 6–21.
5. Iodine-131 Releases From the Hanford Site, 1944 Through 1947, C.M. Heeb, PNWD-2033 HEDR, V. 1, 1993.
6. Глаголенко Ю.В., Дрожко Е.Г., Мокров Ю.Г. и др. Оценка эффективного времени хранения облученного урана в бассейне выдержки реактора "А" за период 1948–1954 гг. // Вопросы радиац. безопасности. – 2006. – № 3. – С. 75–79.