

- АЭС. — Атомная энергия, 2006, т. 100, вып. 6, с. 423—428.
2. Основные правила учета и контроля ядерных материалов. Федеральные нормы и правила. НП-030-01, 2001.
3. Галанин А.Д. Введение в теорию реакторов на тепловых нейтронах. М.: Энергоатомиздат, 1990.
4. Кандиев Я.З., Серова Е.В. Меченые частицы в расчетах переноса излучения методом Монте-Карло по программе ПРИЗМА. — Атомная энергия, 2005, т. 98, вып. 5, с. 386—393.
5. Vasilyev A.P., Kuropatenko E.S., Lyutov V.D., Orlov A.I. Nuclear data library — BAS. The history of development and validation for criticality safety calculations. — In: Proc. Intern. Conf. of Nuclear Criticality Safety ICNC'95. Albuquerque, New Mexico, USA, September 17—21, 1995, p. 2.56—2.60.
6. RSICC Computer Code Collection, MCNP5. Monte-Carlo N-Particle Transport Code System. ORNL, Los Alamos, 2004.

Поступила в Редакцию 20.02.07

УДК 621.039.543.4

ПРОНИЦАЕМОСТЬ ФТОРА И НЕКОТОРЫХ ФТОРСОДЕРЖАЩИХ ГАЗОВ ЧЕРЕЗ НЕПОРИСТЫЕ ФТОРОСТОЙКИЕ ПОЛИМЕРЫ

Ежов В.К. (РНЦ «Курчатовский ин-т»)

В настоящее время интенсивно развивается мембранная технология разделения газовых смесей. Внимание к этой технологии в значительной степени обусловлено развитием химии и технологии полимерных материалов, позволяющей синтезировать полимерные материалы с заданными свойствами и получать различные изделия из них, в том числе пленки и волокна с тончайшим непористым диффузионным слоем, которые получили название асимметричных полимерных газовых мембран. Благодаря отсутствию пор в диффузионном слое полимерная мембрана сохраняет присущие полимеру разделительные свойства, а тонкость слоя (несколько микронов) определяет ее высокую удельную производительность.

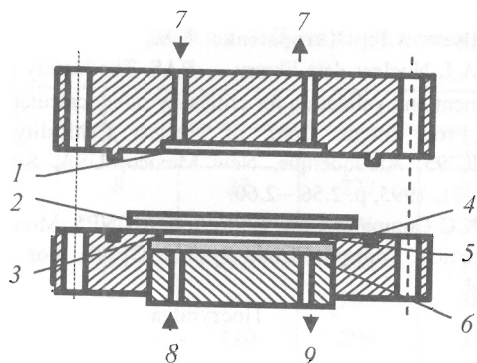
В справочной литературе, например, [1] приводятся коэффициенты проницаемости большого числа полимеров и блок-сополимеров для разных газов. Однако сведения о проницаемости фторостойких полимерных материалов, традиционных для атомной промышленности, относятся лишь к таким неагрессивным газам, как азот, кислород, гелий, пары воды и некоторые углеводороды [2]. По этой причине исследование проницаемости фторполимеров, широко применяемых в атомной индустрии, для газов, составляющих основные технологические потоки в сублиматном производстве и на заводах по разделению изотопов урана, представлялось интересным и полезным.

В качестве объекта исследований были выбраны одна из модификаций фторопласта-4 (Ф-4НА) и наиболее известные фторостойкие

блок-сополимеры на основе винилиденфторида Ф-42, -23 и -26, выпускаемые заводом «Полимер» Кирово-Чепецкого химического комбината. Образцы пленок из этих материалов предварительно откачивали в течение суток при давлении ~10 Па для удаления возможно присутствующих летучих органических веществ и проверяли на отсутствие пор измерением скорости проницаемости гелия.

В качестве газов были выбраны фтор, фторид водорода и гексафториды урана и вольфрама. Особый интерес представлял фторид водорода, поскольку очистка от него как фтора, получаемого электролизным способом в сублиматном производстве, так и гексафторида урана на разделительных заводах по-прежнему требует поиска оптимального решения. Все газы предварительно подвергали глубокой очистке методом ректификации. Фтор очищали на установке криогенной ректификации [3], остальные вещества ректифицировали при 80—100 °С на насадочной колонке, заполненной мелкой спиральной насадкой. Чистоту ректифицированных веществ проверяли спектральным способом, фторида водорода, гексафторидов вольфрама и молибдена дополнительно измерением давления насыщенных паров при разной температуре.

Коэффициенты газопроницаемости фтора и фторсодержащих газов определяли хроматографическим методом, который обладает наивысшей чувствительностью, точностью и малой инерционностью среди применяемых методов и позволяет исследовать газопроницаемость как отдельных газов, так и их смесей.



Р и с. 1. Ячейка для измерения газопроницаемости полимеров

Принципиальная схема ячейки для измерения проницаемости газов, применявшаяся в экспериментах, приведена на рис. 1. Исследуемый газ или смесь газов 7 подавали через регуляторы давления и расхода в полость высокого давления ячейки 1, между фланцами которой зажимали фторопластовую мембрану 2. Пройдя через мембрану, пенетрант попадал в полость низкого давления ячейки 5, откуда выводился газом-носителем гелием 8, 9 в хроматографическую колонку. Некоторая часть гелия вследствие диффузии попадала из полости низкого давления в полость высокого давления, снижая парциальное давление исследуемого газа. Подбором скорости постоянной продувки исследуемого газа через полость высокого давления удалось исключить влияние этого эффекта на получаемые результаты.

Защита тонкой полимерной мембраны от повреждений, которые могли быть вызваны перепадом давления, достигалась установкой под мембрану в полости низкого давления ячейки прочных пористых фторопластовой 3 и никелевой 6 подложек. Прокладка 4 позволяла изолировать полости низкого и высокого давления и избежать проникновения газа, диффундировавшего вдоль мембраны.

Толщина мембран, использованных в экспериментах, составляла 100 ± 2 мкм. Толщину и площадь мембран измеряли с погрешностью 1%. Давление исследуемых газов составляло от 0,01 (для гексафторида урана) до 0,1 МПа и стабилизировалось с погрешностью 0,1%. Температура ячейки поддерживалась постоянной на уровне 25 °С с погрешностью 0,05%.

Толщина и площадь мембраны, давление исходного газа были выбраны в ходе предварительных экспериментов с таким расчетом, чтобы

сигнал детектора был линейно связан с количеством проникшего газа в диапазоне наблюдаемых величин. Это позволило определять количество проникшего через мембрану газа по высоте хроматографического пика.

Коэффициенты газопроницаемости рассчитывали по формуле [4]

$$J = \frac{Q L}{S \tau \Delta p}, \quad (1)$$

где $Q = H/H_{\text{кал}}$ — количество проникшего газа; H — высота хроматографического пика; $H_{\text{кал}}$ — калибровочная высота хроматографического пика; L — толщина мембраны; S — площадь мембраны; $\tau = V_{\text{доз}}/V_{\text{об}}$ — время проникновения; $V_{\text{доз}}$ — дозированный объем хроматографа; $V_{\text{об}}$ — объемная скорость движения потока через дозированный объем; Δp — перепад парциального давления исследуемого газа на мембране. Поскольку парциальным давлением исследуемого газа в полости низкого давления можно пренебречь ($p_2 \sim 0$), то $\Delta p = p_1 - p_2 \approx p_1$.

Рассчитанная по уравнению (1) ошибка в определении коэффициента проницаемости газов в экспериментах не превышала 5% (табл. 1). Каждый из приведенных результатов является средним по 4—6 измерениям.

Таблица 1. Коэффициенты проницаемости фтора и паров некоторых фторидов элементов через непористые фторопласты при 25 °С, $\text{м}^3 \cdot \text{м} / (\text{м}^2 \cdot \text{с} \cdot \text{МПа}) 10^{12}$

Соединение	Фторопласт			
	Ф-42В	Ф-23	Ф-26	Ф-4НА
HF	0,048	0,048	0,065	0,034
F ₂	6	2	2,4	0,14
UF ₆	1,4	<3	<2,4	2,2
WF ₆	1,8	3,1	2,6	2,5

Эксперименты показали, что исследованные полимерные материалы обладают высокой по сравнению с другими использованными газами проницаемостью по фториду водорода. По современным представлениям проницаемость газа через непористую мембрану определяется поверхностной растворимостью газа в материале мембраны и концентрационной диффузией, т.е.

$$J = \delta D, \quad (2)$$

где δ — растворимость газа; D — коэффициент диффузии.

Поскольку фторид водорода, единственный из всех исследованных газов, склонен к образованию водородных связей [5], природа его высокой проницаемости может заключаться в образовании водородной связи между молекулами фторида водорода после их сорбции на поверхности полимерной мембраны и возникновении квазжидкого состояния фторида водорода, приводящего к росту концентрации в поверхностном слое и увеличению поперечного диффузионного потока. Аналогией этого явления может служить высокая проницаемость через углеводородные полимерные материалы паров воды [1], молекулы которой образуют многомолекулярные ассоциаты в жидком состоянии за счет возникновения водородных межмолекулярных связей.

Более высокая проницаемость фтора в сравнении с гексафторидами вольфрама и урана может быть следствием большой разницы между размерами их молекул и соответственно различной скорости диффузии. Ориентировочно ковалентный радиус фтора составляет 0,072 нм, в то время как расстояние между атомами урана и фтора в молекуле гексафторида урана равно 0,1994 нм [6].

Расчетные и экспериментальные коэффициенты разделения бинарных смесей газов, использованных в опытах, приведены в табл. 2. Расчетные коэффициенты разделения вычисляли по соотношению

$$\alpha_{12} = J_1/J_2,$$

где J_1, J_2 — коэффициент проницаемости газа с более и менее высокой проницаемостью соответственно.

Из табл. 2 видно хорошее совпадение расчетных и опытных коэффициентов проницаемости. Следует обратить внимание на то, что все

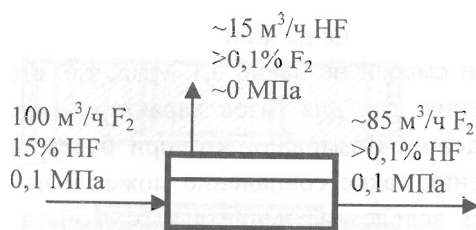
значения получены при давлении подаваемого газа и смесей не выше 0,1 МПа, т.е. в области давления, где для газов характерно идеальное поведение. Возможно, что при более высоком давлении такое совпадение может и не наблюдаться вследствие неидеальных свойств компонентов смеси в газообразном состоянии, возникновения капиллярной и поверхностной конденсации, а также появления конкуренции при диффузии молекул проникающих газов в мембране.

Ранее было показано [7], что если молярная доля легкопроникающего компонента, в данном случае, фторида водорода в остаточном потоке не превышает 0,01, приемлемая для технологии степень его извлечения $\eta > 0,9$ за одну ступень достигается только при $\alpha_{12} \geq 200$. Очевидно, что коэффициенты разделения изученных смесей, содержащих фторид водорода, достаточны для одноступенчатого отделения фторида водорода от фтора и гексафторидов металлов при использовании мембран из блок-сополимеров на основе винилиденфторида.

Оценим технические возможности реализации мембранного метода очистки газов от фторида водорода на примере фтора. Технический фтор, получаемый электролизным способом, содержит до 15% фторида водорода [6]. Параметры газовых потоков, принятые для оценки требуемой мембранной поверхности, приведены на рис. 2. В качестве мембраны была выбрана асимметричная мембрана из блок-сополимера Ф-26 с диффузионным слоем 1 мкм. Расчеты проводили с помощью методики, использованной в работе [7], при наиболее эффективном способе организации течения разделяемой смеси в мембранном элементе: противоток без продольного перемешивания компонентов, без по-

Таблица 2. Коэффициенты разделения бинарных смесей фтора и фторсодержащих газов на фторопластовых мембранах

Смесь	Фторопласт							
	Ф-42В		Ф-23		Ф-26		Ф-4НА	
	Расчет	Эксперимент	Расчет	Эксперимент	Расчет	Эксперимент	Расчет	Эксперимент
HF—F ₂	80	75±3	240	240±10	270	260±10	243	240±10
HF—UF ₆	343	350±10	>160	200±20	>275	300±20	155	160±10
F ₂ —F ₆	4,3	5±2	—	—	>1	—	6,4	5±2
HF—WF ₆	267	270±10	155	—	250	250±10	136	—
WF ₆ —F ₂	3,3	—	1,55	—	1,1	—	1,8	—
WF ₆ —UF ₆	1,3	—	—	—	—	—	1,14	—



Р и с. 2. Параметры газовых потоков на мембранной ячейке, принятые в расчете поверхности мембраны при разделении смеси F_2 —HF

тери давления в полости высокого давления и при близком к нулю давлению проникшего газа.

Оценки показали, что в рассматриваемом случае потребуется поверхность разделения около 450 м^2 . Отечественные мембранные газоразделительные аппараты с плоской мембраной, оформленной в виде диска, имеют плотность упаковки мембраны $300 \text{ м}^2/\text{м}^3$ [8]. Плотность упаковки мембраны в газоразделительных аппаратах волоконного типа может достигать $6 \cdot 10^5 \text{ м}^2/\text{м}^3$, но реально составляет $1,64 \cdot 10^5 \text{ м}^2/\text{м}^3$ [9]. Таким образом, для достижения рассматриваемого эффекта достаточен один аппарат волоконного типа объемом менее 1 м^3 .

Этот пример наглядно показывает привлекательность разработки мембранного метода разделения фторсодержащих газовых смесей для оптимизации технологии сублиматных и разделительных заводов атомной промышленности.

Автор приносит благодарность С.Э. Сахарову за помощь в создании установки и проведении экспериментов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Polymer Handbook. N.Y.: J. Wiley, 1975, v. III, p. 229—240.
2. Тульский М.Н. Газопроницаемость фторполимеров на основе винилиденфторида. Тезисы докл. IV Всес. конф. по мембранным методам разделения смесей. М., МХТИ, 1987, т. 2, с. 94.
3. Артюхов А.А., Ежов В.К., Рыжков А.В., Соколов В.Б. Ректификационная очистка жидкого фтора. Тезисы докл. VI Всес. симп. по химии неорганических фторидов. Новосибирск, ИНХ СО АН СССР, 1981, с. 256.
4. Рейтлингер С.А. Проницаемость полимерных материалов. М.: Химия, 1974.
5. Рысс И.Г. Химия фтора и его неорганических соединений. М.: Госхимиздат, 1956.
6. Галкин Н.П., Майоров А.А., Верятин У.Д. и др. Химия и технология фтористых соединений урана. М.: Госатомиздат, 1961.
7. Ежов В.К., Тюнин А.Н. Разделение фтора и кислорода мембранным методом. — Атомная энергия, 1990, т. 69, вып. 5, с. 326—327.
8. Чекалов Л.Н. Отечественные газоразделительные аппараты дискового типа. Тезисы докл. III Всес. конф. по мембранным методам разделения смесей. ВНИИСС, Владимир, 1981, ч. II, с. 165.
9. Волокна с особыми свойствами. Под ред. Л.А. Вольфа. М.: Химия, 1980.

Поступила в Редакцию 25.12.06

УДК 551.577.7

СОДЕРЖАНИЕ КОСМОГЕННОГО ^7Be В ПРИЗЕМНОМ СЛОЕ ВОЗДУХА УМЕРЕННЫХ ШИРОТ

Бураева Е.А., Давыдов М.Г., Зорина Л.В., Малышевский В.С., Стасов В.В.
(НИИ физики при Ростовском гос. ун-те)

Космогенный ^7Be ($T_{1/2} = 52,3$ сут) образуется в ядерных реакциях скалывания при взаимодействии протонов высокой энергии (~ 1 ГэВ) космического излучения с ядрами азота в стратосфере $^{14}\text{N} + p \rightarrow ^7\text{Be}$ (до 70—80%) и вторичных нейтронов с ядрами азота и кислорода тропосферы $^{14}\text{N} + n \rightarrow ^7\text{Be}$ и $^{16}\text{O} + n \rightarrow ^7\text{Be}$ (до 20—30%) [1, 2]. При изменении солнечной активности (числа пятен на солнце — числа Вольфа W) в пределах 11-летнего солнечного цикла и аperiodических вспышках активности Солнца изменяется геомагнитное поле, отклоняются кос-

мические лучи и соответственно изменяется скорость образования ^7Be [3]. При этом возрастанию солнечной активности (увеличению числа Вольфа) соответствует уменьшение скорости образования ^7Be и наоборот, т.е. имеет место антикорреляция между его содержанием в атмосферном воздухе и числом Вольфа с коэффициентом $k = -0,81$ по оценкам [4] и $k = -0,83 \pm 0,03$ по данным [5]. За 11-летний солнечный цикл среднегодовое содержание в максимуме и минимуме отличается примерно на 45%. Из-за влияния геомагнитного поля Земли на распре-

ление космического излучения скорость образования ^7Be зависит и от географических координат станции наблюдения.

Для надежного установления связи объемной активности ^7Be в приземном слое воздуха с солнечной активностью на фоне вариаций факторов иного происхождения необходимы длительные (более двух циклов солнечной активности) систематические измерения на глобальной сети станций. В работе [3] проанализированы результаты определения ^7Be в атмосфере в 1974—1999 гг. на 26 станциях. Установлено наличие указанной антикорреляции, которая объясняет примерно 54% всех временных вариаций ^7Be для станций в Австралии, Новой Зеландии и Северной Америки, и только 18% вариаций для станций Южной Америки и Антарктиды.

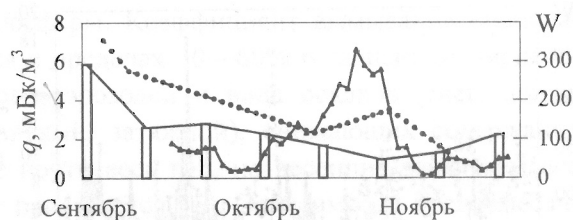
Длительные (1987—2003 гг.) измерения были проведены в последнее время на умеренных широтах ($40^\circ 38'$) [6]. В особо благоприятных условиях (регулярность измерения метеопараметров, отсутствие влияния некоторых из них и др.) можно уверенно установить связь между содержанием ^7Be и числом Вольфа. Так, измерения в условиях сухого и жаркого климата [7] выявили зависимость изменения среднегодовой объемной активности ^7Be от числа Вольфа (табл. 1). В иных, менее удобных условиях установить зависимость не удастся [8].

Таблица 1. Среднегодовая объемная активность ^7Be и число Вольфа в условиях сухого и жаркого климата

Год	W	q , МБк/м ³
1994	29,9	4,33
1995	17,5	5,86
1996	8,6	6,4
1997	21,5	5,01
1998	64,3	4,55

Кратковременные вспышки с наибольшим числом Вольфа иногда могут найти отражение в виде резкого уменьшения содержания ^7Be в атмосфере. Подобный эффект наблюдался в работе [6] (рис. 1).

Почти сразу после образования ядра ^7Be осаждаются на аэрозолях субмикронных размеров, и их дальнейшая судьба определяется процессами переноса с воздушными массами, осадения и вымывания осадками. Методы и резуль-



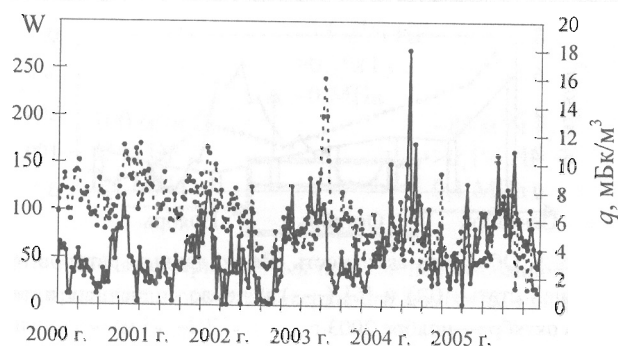
Р и с. 1. Объемная активность ^7Be по данным авторов настоящей статьи ($\square$) и [6] (---) и число солнечных пятен ($\triangle$) в октябре—ноябре 2003 г.

таты определения времени жизни аэрозолей (периода времени, в течение которого из атмосферы выводится половина исходного содержания аэрозолей) приведены в работе [9] вместе с данными для других пунктов наблюдения (Греция, Германия, Калифорния, Гонконг). Данные [9] предложено разделить на две группы: 2,6—15 сут (среднее 8,8 сут) для приземного слоя воздуха, 21—35,4 сут (среднее 28,2 сут) для тропосферы. По другим представлениям первая группа описывает тропосферные, вторая — стратосферные аэрозоли. Оценки по модели [10] дают для аэрозолей тропосферы $\tau_r = 24$ —30 сут, для стратосферы $\tau_r = 1$ год.

Вариации объемной активности ^7Be в приземном слое воздуха зависят от процессов обмена воздушных масс между резервуарами стратосферы и тропосферы, процессов сухих и мокрых выпадений, процессов в тропосфере (вертикальный перенос, адвекция) [3].

На аспирационной станции НИИ физики РГУ в 2001—2005 гг. в рамках мониторинга радиоактивности приземного слоя атмосферы в Ростове-на-Дону ($47^\circ 14'$ с.ш.; $39^\circ 42'$ в.д.) измеряли содержание ^7Be в аэрозолях (1 раз в неделю) и осадках (1 раз в месяц). Особую значимость систематическому контролю ^7Be в атмосфере придает расположение станции на умеренной широте при умеренно-континентальном климате и сравнительно малом количестве осадков.

Для отбора проб была использована вентиляционная установка с фильтром из ткани Петрянова ФПП-15-1.7 общей площадью $0,56 \text{ м}^2$ и микроанометр ММН-240. По результатам измерений расход воздуха составлял около $630 \text{ м}^3/\text{ч}$ в начале экспозиции («свежий» фильтр) и около $510 \text{ м}^3/\text{ч}$ в конце 7-дневной экспозиции. Экспонированный фильтр просушивали на воздухе и запрессовывали в таблетки диаметром 35, высотой 10—30 мм. Через 3—4 сут после снятия



Р и с. 2. Корреляция содержания ^7Be (—) с числом Вольфа (---)

фильтра спектр γ -излучения измеряли в течение 12–24 ч на Ge(Li)- или особо чистом Ge-детекторе установки РЭУС-II-15. ^7Be определяли по пику энергии 477 кэВ. По разности массы экспонированного и чистого фильтра находили запыленность воздуха.

Анализ показал, что недостаточно данных для выявления антикорреляционной связи объемной активности ^7Be с солнечной активностью, как это сделано в работах [3, 5]. Пример влияния кратковременной яркой вспышки солнечной активности на уменьшение содержания ^7Be в атмосфере показан на рис. 1: после события 29 октября 2003 г. при $W_{\text{макс}} = 330$ наблюдалось последующее снижение содержания ^7Be 9 октября 2003 г. от 3 до $1,3 \pm 0,12$ МБк/м³ [6]. По нашим данным содержание ^7Be снизилось от $1,7$ до $0,9$ МБк/м³. Общая картина связи этих величин показана на рис. 2. Тем не менее установлена положительная корреляция объемной активности ^7Be с числом Вольфа при усреднении по недельным интервалам (табл. 2). При этом объемная активность ^7Be не реагирует на кратко- и долговременные вариации числа Вольфа и время жизни аэрозолей в тропосфере.

Таблица 2. Коэффициент корреляции между содержанием ^7Be и числом Вольфа, усредненный по сезонам и годам

Сезон	2001 г.	2002 г.	2003 г.	2004 г.	2005 г.
Зима	1	0,02	1	0,52	0,75
Весна		0,9	0,99	0,7	0,92
Лето	0,54	0,84	0,33	0,2	0,43
Осень	0,88	-0,29	0,92	-0,09	0,96
Весь год	0,8	0,37	0,81	0,33	0,76

Для второй половины 23-го цикла солнечной активности удалось установить зависимость

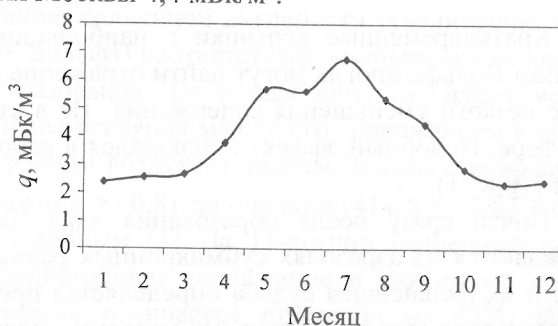
изменений объемной активности ^7Be — возрастание ее среднегодовых значений к концу цикла (табл. 3).

Таблица 3. Объемная активность ^7Be , усредненная по сезонам

Год	Зима	Весна	Лето	Осень	max/min	Среднее, МБк/м ³	$W_{\text{ср}}$
2001	1,53	2,98	4,88	2,12	3,2	2,88	116,8
2002	4,43	3,66	5,07	2,33	2,2	3,82	107
2003	2,01	3,12	5,83	4,02	2,9	3,7	84,8
2004	2,34	3,89	6,43	3,97	2,7	4,15	68,9
2005	3,32	5,72	6,41	3,38	1,9	5,27	54

Достаточно четко фиксируется известный для различных широт и климатических условий сезонный ход ^7Be в аэрозолях, связанный с весенней перестройкой атмосферы в системе стратосфера—тропосфера (см. табл. 3, рис. 3). Сезонный ход подтвержден также фурье-анализом всей совокупности данных за 5 лет — первая доминирующая гармоника имеет период 52 недели.

В сезонном ходе объемной активности ^7Be , как правило, имеется весенне-летний максимум и осенне-зимний минимум. Так, для умеренных широт (Греция) максимум летом $7,29$ — $6,96$ МБк/м³, минимум зимой $2,75$ — $4,09$ МБк/м³ [4], для нашей страны (Москва) весенне-летний максимум $4,3$ — $4,6$ МБк/м³, осенне-зимний минимум $2,6$ — $3,3$ МБк/м³ [8]. По нашим данным весенне-летний максимум объемной активности ^7Be в аэрозолях наблюдается как ежегодно (см. табл. 3), так и в среднем за последние 5 лет (см. рис. 3). Как видно, средние отношения максимума к минимуму среднего по сезонам содержания ^7Be примерно равны $2,1$ (для Москвы $1,6$ за 1996—2001 гг. [8]). Средняя за 5 лет объемная активность ^7Be в аэрозолях Ростова-на-Дону составляет $\sim 3,9$ МБк/м³ (2001—2005 гг.), для Москвы $4,4$ МБк/м³.



Р и с. 3. Сезонная концентрация ^7Be , усредненная за 5 лет

Особенности сезонного хода содержания ^7Be в аэрозолях от года к году связаны с изменениями метеоусловий (температуры и количества осадков). Для умеренных широт на концентрацию ^7Be влияет преимущественно количество осадков [7, 9], для экваториальных (тропических) — среднемесячная температура [7]. Наиболее четко температурная зависимость концентрации определена для условий сухого и жаркого климата ($29^{\circ}23'$, Кувейт) по определениям за 5 лет: от $1,5 \text{ мБк/м}^3$ в зимний период при $+15^{\circ}\text{C}$ в декабре она возрастает до $8\text{--}10 \text{ мБк/м}^3$ при 40°C в июле—августе [7]. Корреляция с температурой ($k = 0,46$) установлена и для умеренных широт в наиболее теплые месяцы (при $25\text{--}30^{\circ}\text{C}$) [4]. Влияние количества осадков проявляется менее четко.

Для умеренных широт должна существовать зависимость объемной активности ^7Be от средней температуры и количества выпавших осадков [4, 8]. Наибольшая степень корреляции по нашим данным имеет место весной и летом — $0,99$ и $0,61$ соответственно (табл. 4). Для холодных месяцев она либо низкая ($k = 0,29\text{--}0,51$), либо даже отрицательная в отдельные периоды (осень 2002 г., зима 2005 г.), но в среднем за 5 лет остается высокой ($0,6$). Данные для $47^{\circ}14'$ с.ш. подтверждают и существенно дополняют данные, полученные также для умеренной широты $40^{\circ}38'$ (для теплых месяцев $k = 0,46$) [4].

Таблица 4. Корреляционная связь между концентрацией ^7Be и температурой

Сезон	2001 г.	2002 г.	2003 г.	2004 г.	2005 г.
Зима	1	0,99	0,28	0,18	–1
Весна		0,98	0,99	0,99	0,99
Лето	0,94	0,72	0,97	1	–0,57
Осень	0,78	–0,95	0,97	0,76	0,99
Весь год	0,91	0,44	0,8	0,73	0,1

Данные о связи концентрации ^7Be с количеством выпавших осадков (табл. 5) показывают особо высокую положительную корреляцию для весенних месяцев ($k = 0,9\text{--}1$). В остальные месяцы, как правило, имеет место антикорреляция. В среднем за год корреляция значительна ($k = 0,55$). Мокрые осаднения являются наиболее эффективным механизмом выведения ^7Be из

атмосферы. Коэффициент вымывания оценивается в пределах $30\text{--}60\%$ и зависит от дисперсности аэрозолей и вида осадков (снег, дождь ливневый, затяжной), снижающих содержание ^7Be почти весь год, но весенний максимум все же проявляется [5]. Зависимость среднемесячной объемной активности ^7Be от температуры ($T, ^{\circ}\text{C}$) и количества осадков ($P, \text{мм/мес}$) для весеннего периода по результатам усреднения за 5 лет имеет вид, мБк/м^3 : $q = 0,2T + 1,6$; $q = 0,2P + 0,9$.

Таблица 5. Корреляционная связь между концентрацией ^7Be и количеством осадков

Сезон	2001 г.	2002 г.	2003 г.	2004 г.	2005 г.
Зима	–1	–0,67	0,6	0,42	–0,21
Весна		0,98	1	0,9	1
Лето	–0,18	0,38	–0,93	–1	0,62
Осень	0,3	0,72	–0,83	–1	0,12
Весь год	0,76	0,55	0,6	0,56	0,61

В среднем за 5 лет плотность выпадений ^7Be на земную поверхность наибольшая в весенне-летний период, как и сезонный максимум его содержания в аэрозолях (табл. 6).

Таблица 6. Плотность выпадений ^7Be на земную поверхность, $\text{мБк}/(\text{м}^2 \cdot \text{мес})$

Год	Зима	Весна	Лето	Осень	max/min	Средняя за год
2001	0,004	0,039	0,175	0,008	41,9	0,057
2002	0,029	0,014	0,034	0,037	2,7	0,028
2003	0,040	0,032	0,103	0,041	3,2	0,054
2004	0,021	0,122	0,058	0,024	5,9	0,056
2005	—	0,020	0,039	—	2	0,029
2001–2005	0,024	0,046	0,082	0,028	11,1	0,045

Обобщенные результаты анализа связи содержания ^7Be в аэрозолях и осадках показывают наличие антикорреляции с коэффициентом от $-0,61$ до $-0,66$ (по годам). Максимум количества осадков, приходящийся на июнь—июль, снижает концентрацию ^7Be в аэрозолях сразу после его летнего максимума в июле. В целом это согласуется с данными о влиянии осадков на содержание ^7Be в атмосфере для умеренных широт [4, 8].

Обратная зависимость между содержанием ^7Be в аэрозолях и осадках обусловлена селек-

тивным вымыванием из атмосферы осадками. После выпадения на земную поверхность ^7Be накапливается в почвенно-растительном покрове. В целом активность ^7Be распределяется в биосфере следующим образом, % общей активности: стратосфера 60, тропосфера 11, земная поверхность 8, океан (верхние слои) 20 [11]. Среднемировая объемная активность ^7Be в воздухе в приземном слое воздуха составляет 3 мБк/м³.

В целом результаты предварительного анализа содержания ^7Be в атмосферных аэрозолях и осадках позволяют выявить главные особенности вариации этих величин и их связи с климатическими характеристиками региона [12].

Заключительный этап работы поддержан РФФИ (проект № 05-08-01201).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Nagai H., Tada W., Kobayashi T. Production rates of ^7Be and ^{10}Be in the atmosphere. — Nucl. Instrum. Meth. B, 2000, v. 172, p. 796—801.
2. Yoshimori M. Production and behaviour of beryllium 7 radionuclide in the upper atmosphere. — Advances in Space Res., 2005, v. 36, p. 922—926.
3. Talpos S., Rumbu N., Borsan D. Solar forcing on the ^7Be -air concentration variability at ground level. — J. Atmos. Solar. Terrestrial Phys., 2005, v. 67, p. 1626—1631.
4. Ioannidou A., Manolopoulou M., Papastefanou C. Temporal changes of ^7Be and ^{210}Pb concentrations in surface air at temperate latitudes (40°N). — Applied Rad. Isot., 2005, v. 63, p. 277—284.
5. Stozhkov Y. The role of cosmic ray in the atmospheric processes. — J. Phys., 2002, v. 6, p. 2002.
6. Papastefanou C., Ioannidou A. Beryllium-7 and solar activity. — Applied Rad. Isot., 2004, v. 61, p. 1493—1495.
7. Al-Azmi D., Sayed A., Yatim H. Variations in ^7Be concentrations in the atmosphere of Kuwait during the period 1994 to 1998. — Ibid., 2001, v. 55, p. 413—417.
8. Петрова Т.Б., Охрименко С.Е., Власов В.К., Микляев П.С. Содержание бериллия-7 в атмосферном воздухе г. Москвы. — АНРИ, 2003, № 3, с. 22—29.
9. Papastefanou C. Residence time of tropospheric aerosols in association with radioactive nuclides. — Applied Rad. Isot., 2006, v. 64, p. 93—100.
10. Koch D., Jacob D., Graustein W. Vertical transport of tropospheric aerosols as indicated by ^7Be and ^{210}Pb in chemical traser model. — J. Geophys. Res., 1996, v. 18, p. 651—666.
11. Моисеев А.А., Иванов В.И. Справочник по дозиметрии и радиационной гигиене. М.: Энергоатомиздат, 1990.
12. Бураева Е.А., Давыдов М.Г., Зорина Л.В., Стасов В.В. ^7Be в атмосферных аэрозолях и осадках в приземном слое воздуха г. Ростова-на-Дону. — В сб.: 12-я Всерос. научная конф. студентов-физиков и молодых ученых. Новосибирск, 23—29 марта 2006 г., с. 766—767.

Поступила в Редакцию 6.10.06

УДК 574:539.1.04+621.039.7

ОБСЛЕДОВАНИЕ И ПОДГОТОВКА К ЛИКВИДАЦИИ СТАРЫХ ХРАНИЛИЩ РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ В РНЦ «КУРЧАТОВСКИЙ ИНСТИТУТ»

Пономарев-Степной Н.Н., Волков В.Г., Городецкий Г.Г., Зверков Ю.А., Иванов О.П., Колтышев С.М., Семенов С.Г., Степанов В.Е., Чесноков А.В., Шиша А.Д. (РНЦ «Курчатовский ин-т»)

В РНЦ «Курчатовский институт» в 2002—2006 гг. ликвидировали старые хранилища радиоактивных отходов и реабилитировали площадки их размещения [1]. В процессе разработки проектных материалов и на этапах подготовки к ликвидации старых хранилищ выявились проблемы, связанные с недостаточным техническим и технологическим обеспечением этих работ.

В настоящей статье изложен подход, реализованный при обследовании старых хранилищ, их вскрытии и подготовке к ликвидации, описаны технология и технические решения, обсуждены проблемы технологического оснащения.

Обследование старых хранилищ и их подготовка к ликвидации. Поскольку сведения об особенностях конструкции хранилищ и помещенных в них радиоактивных отходов отсутствовали, подготовку к извлечению отходов и ликвидации хранилищ проводили в следующей последовательности:

- разработка и согласование плана разведочного бурения и обследования хранилища;
- разведочное бурение приконтурной зоны и массива отходов;
- радиационное и визуальное обследование;
- очистка верхнего перекрытия хранилища от насыпного грунта;