

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Расчетно-экспериментальный анализ термомеханического поведения трубы ТК РБМК с графитовыми элементами в условиях аварии типа LOCA. Отчет № 02.20.02 04339, ЭНИЦ—ВНИИАЭС, Электрогорск, 2001. 70 с.
2. Анализ термомеханического поведения топливного канала РБМК при нарушении штатного режима теплообмена. Отчет МЭИ (ТУ) 01200309203. М., 2003. 65 с.
3. Локтионов В.Д., Ярошенко Н.И. Компьютерный код ASHTER-ТК для моделирования термовязкопластического поведения труб ТК реактора РБМК в аварийных условиях. Годовой отчет НИКИЭТ, 1997, с. 87—91.
4. Локтионов В.Д., Гашенко В.А., Абакумова О.Н., Ярошенко Н.И. Расчетно-экспериментальный анализ поведения и разрушения труб ТК РБМК в аварийных условиях. — В сб.: Проблемы циркония и гафния в атомной энергетике. Харьков, 1999, с. 65—67.
5. Любашевская И.В., Торшенин Н.Г., Соснин О.В., Локтионов В.Д. Деформационно-прочностные свойства циркониевого сплава при температурах 600—800 °С. — В сб.: Динамика сплошной среды. Новосибирск, Институт гидродинамики СО РАН, 2000, вып. 116, с. 198—201.
6. Габараев Б.А., Прозоров В.К., Новосельский О.Ю. Максимальная расчетная температура графитовой кладки как эксплуатационный предел для РУ РБМК: Препринт НИКИЭТ ЕТ-01/53, 2001. 31 с.
7. Львовский Е.Н. Статистические методы построения эмпирических формул. М.: Высшая школа, 1982. 224 с.

Поступила в Редакцию 15.07.03

УДК 614.2+546.718

**АНАЛИЗ РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ, ОБРАЗУЮЩИХСЯ
ПРИ ПОЛУЧЕНИИ ^{99m}Tc НА ОСНОВЕ ОБЛУЧЕННОГО ТРИОКСИДА
МОЛИБДЕНА НА БАЗЕ ЦЕНТРАЛИЗОВАННОГО ГЕНЕРАТОРА**

Гурко О.Б., Равкова Е.И., Савушкин И.А.

(Объединенный ин-т энергет. и ядерных исследований. — Сосны НАН Беларуси)

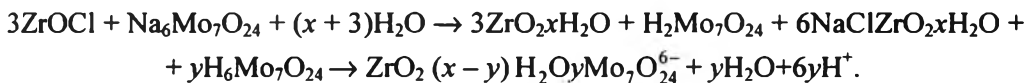
Метастабильный ^{99m}Tc является радиофармпрепаратом, наиболее широко применяемым в ядерной медицине. Это объясняется не только коротким периодом его полураспада (6 ч) и низкой монохроматической энергией излучения (140 кэВ), что обуславливает малую лучевую нагрузку на пациента и персонал и эффективную регистрацию γ -излучения, но и легкостью включения в другие соединения, обладающие избирательной способностью к органам и тканям организма человека.

Основные мировые потребности в ^{99m}Tc в настоящее время удовлетворяют малые генераторы на осколочном ^{99}Mo [1], традиционный принцип получения которого заключается в облучении урановой мишени в нейтронном поле ядерного реактора. Но использование высокоактивной урановой мишени предъявляет особые требования к радиационной безопасности. Кроме того, при ее радиохимической переработке образуется значительное количество газообразных, например, йод, жидких и твердых радиоактивных отходов среднего уровня, что требует их переработки и захоронения. Поэтому актуальными являются исследования, направленные на разработку централизованных экологически безопасных генераторов на основе принципиально новых физико-химических методов отделения ^{99m}Tc от ^{99}Mo . Использование активационного ^{99}Mo имеет существенные преимущества: деше-

визна исходного сырья, отсутствие значительного количества долгоживущих радиоактивных отходов, более низкие требования к радиационной безопасности и возможность приступить к переработке мишени через несколько часов после облучения.

В Институте проблем энергетики разработана цирконий-молибденовая гелевая технология получения ^{99m}Tc в форме раствора пертехнетата натрия на базе централизованного генератора на основе активационного ^{99}Mo [2]. Централизованный генератор активностью 3—5 Ки по ^{99}Mo обеспечивает потребителей элюатом технеция, нарабатываемым в одном учреждении в количестве 370—640 ГБк, в отличие от малых генераторов, в которых ^{99m}Tc выделяется и применяется в одном месте — клинике.

Упрощенно технологический процесс получения ^{99m}Tc осуществляется следующим образом. Мишень из триоксида молибдена (MoO_3) облучают в нейтронном поле ядерного реактора. При этом по реакции $^{98}\text{Mo} (n, \gamma) ^{99}\text{Mo}$ образуется радиоактивный ^{99}Mo . Затем облученную мишень растворяют в 36 мл щелочи: $^{99}\text{MoO}_3 + 2\text{NaOH} \rightarrow \text{Na}_2^{99}\text{MoO}_4 + \text{H}_2\text{O}$. После этого к полученному раствору добавляют 4 мл соляной кислоты (1:1) для перевода молибдена из моно- в полимолибдатное состояние. Реакционную смесь перемешивают для завершения образования полимолибдатных комплексов состава $\text{Na}_8[(^{99}\text{MoO}_4)_{10}\text{H}_{12}]$; $\text{Na}_4[(^{99}\text{MoO}_4)_8\text{H}_{12}]$; $\text{Na}_6[(^{99}\text{MoO}_4)_9\text{H}_x]$. Затем в реакционную смесь при непрерывном перемешивании добавляют раствор хлорида цирконила. В результате реакции образуется $\text{Zr}-^{99}\text{Mo}$ -гель по уравнению (в пересчете на парамолибдат-ион)



Окончательное созревание геля происходит при периодическом перемешивании в течение 2 ч с момента добавления хлорида цирконила. Гель располагается на фильтрующей системе, образуя матрицу генератора ^{99m}Tc . Затем из гелевой матрицы откачивают жидкую фазу в сборнике отходов. Далее приступают к промывке гелевой матрицы: 150 и 50 мл воды для инъекций, 50 мл 0,015 М соляной кислоты, 50 мл 0,8%-ного хлорида натрия в 0,015 М соляной кислоты, последовательно перекачивая жидкость в сборник отходов. После промывки гелевую матрицу сушат в вакууме, на этом зарядку генератора ^{99m}Tc заканчивают.

^{99m}Tc , образующийся по реакции $^{99}\text{MoO}_4^{2-} \xrightarrow{\beta^-} ^{99m}\text{TcO}_4^-$, отделяют раз в сутки в течение 12—15 сут, заливая 50—100 мл 0,8%-ного раствора хлорида натрия. Раствор ^{99m}Tc после первого элюирования всегда отправляют в отходы из-за высокого отношения $^{99}\text{Tc}/^{99m}\text{Tc}$, ухудшающего качество препарата ^{99m}Tc и приводящего к некачественному изображению. По мере отделения ^{99m}Tc объемная активность получаемого препарата снижается. Элюирование прекращают, когда она не отвечает требованиям фармакопейной статьи ВФС-42-1732-87 (<74 МБк/мл), генератор освобождают от гелевой матрицы.

Время работы генератора определяют следующим образом:

$$t \approx -\frac{1}{\lambda_1 8,64 \cdot 10^4} \ln \left[\frac{74 V}{A_1(t) \exp(-\lambda_1 t_g) 0,875 \varepsilon \lambda_2 / (\lambda_2 - \lambda_1)} \right],$$

где λ_1, λ_2 — постоянные распада ^{99}Mo , ^{99m}Tc соответственно, с^{-1} ; V — объем элюирования, мл; $A_1(t)$ — активность ^{99}Mo на момент переработки облученной мишени, Бк; t_g — время приготовления геля, с; ε — эффективность элюирования.

Для централизованного генератора активностью 3—5 Ки это время может составлять до 15 сут.

После окончания эксплуатации генератора гель-матрицу растворяют (1:1) соляной кислотой (150 мл) и перекачивают в сборник отходов. Затем фильтрующую систему промывают водой (80 мл). Промывные воды также перекачивают в сборник отходов.

В настоящей работе рассматриваются радиоактивные отходы, образующиеся при эксплуатации централизованного цирконий-молибденового гель-генератора. Из приведенной схемы производства генератора и получения раствора ^{99m}Tc следует, что полезные отходы, которые могут быть использованы в дальнейшем, не образуются, газообразных и твердых радиоактивных отходов нет. К жидким, объем которых составляет 1 л на генератор, относят растворы, получаемые при промывании геля, раствор ^{99m}Tc после первого элюирования и растворенный отработанный гель после окончания срока эксплуатации генератора [2].

Мишень из MoO_3 содержит природную смесь изотопов молибдена, % [3]: ^{92}Mo 14,8, ^{94}Mo 9,3, ^{95}Mo 15,9, ^{96}Mo 16,7, ^{97}Mo 9,6, ^{98}Mo 24,13, ^{100}Mo 9,6. Каждый изотоп при облучении мишени из MoO_3 в (n, γ)-поле реактора активируется тепловыми и резонансными нейтронами, в результате образуются радиоактивные изотопы, которые могут накапливаться в облученном молибдене и конечном препарате, обуславливая радиоактивность. Анализ облученной природной смеси молибдена показал, что высокоактивные изотопы не образуются [3]. Радиационную опасность, кроме ^{99}Mo и ^{99m}Tc , на момент окончания облучения может представлять короткоживущий ^{101}Mo , имеющий период полураспада 14,2 мин. Таким образом, жидкие отходы содержат только отработанный ^{99}Mo низкой активности и короткоживущий ^{99m}Tc .

Удельную активность ^{99}Mo в отходах определяют по формуле

$$A_1^{ya}(t) = \frac{A_1(t)}{\rho V} = \frac{A_1(t_0)}{\rho V} \exp(-\lambda_1 t),$$

где $A_1(t)$ — активность ^{99}Mo в отходах, Бк; ρ — плотность воды, кг/м^3 ; V — объем жидких отходов, м^3 ; $A_1(t_0)$ — активность ^{99}Mo на момент переработки облученной мишени, Бк; λ_1 — постоянная распада ^{99}Mo , с^{-1} .

Удельную активность ^{99m}Tc в отходах определяют по формуле

$$A_2^{ya}(t) = \frac{A_2(t)}{\rho V} = \frac{A_1(t)}{\rho V} 0,875 \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} [\exp(-\lambda_1 t) - \exp(-\lambda_2 t)],$$

где $A_2(t)$ — активность ^{99m}Tc в отходах, Бк.

Жидкие радиоактивные отходы, содержащие ^{99}Mo и ^{99m}Tc , собирают в емкость для отходов и хранят во временном хранилище для снижения активности до уровня вмешательства для ^{99}Mo $2,3 \cdot 10^2$ Бк/кг [4]. Срок выдержки ^{99}Mo , содержащегося в жидких радиоактивных отходах, может быть определен следующим образом:

$$t_a = -\ln(\text{УВ}^{\text{воды}}/A_1^{\text{уд}})/(\lambda_1 8,64 \cdot 10^4) = -\ln(2,3 \cdot 10^2/A_1^{\text{уд}})/0,25,$$

где $A_1^{\text{уд}}$ — удельная активность, Бк/кг; λ_1 — постоянная распада, с^{-1} .

В табл. 1 приведены характеристики жидких радиоактивных отходов для четырех генераторов разной активности по ^{99}Mo на момент окончания эксплуатации генератора. Время необходимой выдержки составляет ~ 70 сут. Удельная активность ^{99m}Tc для всех генераторов уже через 4 сут снизится до $1,6 \cdot 10^{-3}$ Бк/кг. Таким образом, через 70 сут жидкие отходы удаляются как обычные водные растворы.

Т а б л и ц а 1. Характеристики жидких отходов

Генератор			Удельная активность, Бк/кг $\cdot 10^9$		Время выдержки, сут
Номер	Активность по ^{99}Mo , ГБк	Время работы, сут	^{99}Mo	^{99m}Tc	
1	55,5	9	8,41	1,62	69,03
2	92,5	11	8,47	1,63	69,05
3	148	13	8,18	1,57	68,92
4	249	15	8,64	1,66	69,13

Растворы ^{99m}Tc всегда содержат ^{99}Tc в результате распада ^{99}Mo , следовательно, жидкие отходы также содержат ^{99}Tc . Количество атомов ^{99}Tc в растворах ^{99m}Tc , начиная со времени $t \geq 10$ ч, превышает количество атомов ^{99m}Tc . С точки зрения охраны окружающей среды долгоживущий ^{99}Tc является радионуклидом, который может вносить вклад в радиационную дозу, получаемую населением [2]. Поэтому важно определить его содержание в отходах производства ^{99m}Tc по гель-технологии на централизованном генераторе.

Для описания механизма формирования и накопления ^{99}Tc в растворах на всех стадиях технологического процесса производства ^{99m}Tc по гель-технологии на централизованном генераторе была разработана математическая модель [5]. Накопление ^{99}Tc в растворах ^{99m}Tc определяется отношением ядер ^{99}Tc к ядрам ^{99m}Tc и активностью ^{99m}Tc :

$$M_3(t) = 0,19[1 + N_3(t)/N_2(t)]A_2(t),$$

где $M_3(t)$ — масса ^{99}Tc , нг; $N_2(t)$, $N_3(t)$ — количество ядер ^{99}Tc и ^{99m}Tc соответственно; $A_2(t)$ — активность ^{99m}Tc , мКи.

Отношение ядер ^{99}Tc к ядрам ^{99m}Tc рассчитывается по формуле

$$\frac{N_3(t)}{N_2(t)} = \frac{1 + \lambda_1/(\lambda_2 - \lambda_1) \exp(-\lambda_2 t) - \lambda_2/(\lambda_2 - \lambda_1) \exp(-\lambda_1 t) + \gamma_2/\gamma_1[1 - \exp(-\lambda_1 t)]}{\lambda_2/(\lambda_2 - \lambda_1)[\exp(-\lambda_1 t) - \exp(-\lambda_2 t)]},$$

где γ_1 , γ_2 — вероятностный выход ^{99m}Tc и ^{99}Tc из ^{99}Mo .

Анализ расчетов по данной модели показал, что содержание ^{99}Tc в промывных водах и растворе ^{99m}Tc после первого элюирования зависит от времени облучения мишени, ее доставки на установку с централизованным генератором, приготовления геля и активности ^{99m}Tc . Очевидно, что чем меньше облучается мишень и быстрее доставляется на приготовление геля, тем меньше содержание ^{99}Tc в промывных

водах и растворе ^{99m}Tc после первого элюирования (табл. 2). В растворе геля содержание ^{99}Tc будет определяться оставшейся после элюирования активностью ^{99m}Tc и распадом ^{99}Mo (табл. 3). Очевидно, что в растворе геля содержание ^{99}Tc в 100 раз меньше, чем в промывных водах и растворе ^{99m}Tc после первого элюирования. Через 70 сут в жидких отходах будет содержаться $\sim 0,06 \text{ мг } ^{99}\text{Tc}$.

Т а б л и ц а 2. Масса ^{99}Tc в промывных водах и растворе ^{99m}Tc после первого элюирования в зависимости от времени облучения и доставки мишени на установку с централизованным генератором, нг

Время доставки и приготовления геля, ч	Время облучения мишени, ч			
	100	200	300	400
20	3,17	5,14	7,54	10,16
40	4,81	7,22	10,16	13,37
60	6,88	9,86	13,47	17,43
80	9,44	13,11	17,58	21,51
100	12,60	17,13	22,64	28,67

Т а б л и ц а 3. Масса ^{99}Tc в промывных водах и растворе ^{99m}Tc после первого элюирования, мг

Активность ^{99}Mo , ГБк	Масса ^{99}Tc в промывных водах и растворе ^{99m}Tc	Активность ^{99}Mo на момент растворения геля, ГБк	Масса ^{99}Tc	
			в растворе геля	в жидких отходах
56,5	0,0073	4,52	$8,0 \cdot 10^{-5}$	0,0074
92,5	0,0182	7,41	$1,33 \cdot 10^{-4}$	0,0183
148	0,0303	11,9	$2,14 \cdot 10^{-4}$	0,0305
259	0,0552	12,5	$2,38 \cdot 10^{-4}$	0,0554

Анализ радиоактивных отходов, получаемых при производстве ^{99m}Tc по цирконий-молибденовой гель-технологии, показал, что при облучении мишени из MoO_3 высокоактивные изотопы не образуются и радиоактивность обусловлена только отработанным ^{99}Mo и короткоживущим ^{99m}Tc . Время жизни ^{99}Mo в растворенном геле составляет ~ 70 сут. После этого жидкие отходы можно удалять как обычные водные растворы. Следовательно, технологический процесс получения ^{99m}Tc на централизованном цирконий-молибденовом гель-генераторе на основе активационного ^{99}Mo можно рассматривать как радиационно безотходный.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Куренков Н.В., Чувилин Д.Ю. Производство молибдена-99 для использования в ядерно-медицинских генераторах технеция-99m. — Итоги науки и техники, 1998, т. 10, с. 1—15 (ВИНИТИ).
2. Савушкин И.А. Основы экологически чистой технологии получения технеция-99m. Минск, 2000. 145 с.
3. Савушкин И.А., Равкова Е.И., Гурко О.Б. и др. Анализ активации примесей мишени на основе молибдена: Препринт ИПЭ-58 Нац. акад. наук Беларуси, Минск, 2000. 23 с.
4. Нормы радиационной безопасности НРБ-76/87 и основные санитарные правила ОСП-72/87. М.: Энергоатомиздат, 1988. 160 с.

5. Гурко О.Б., Равкова Е.И., Савушкин И.А. Накопление радиоизотопа ^{99m}Tc при производстве радиофармпрепарата ^{99m}Tc на централизованном Zr—Mo гель-генераторе: Препринт ИПЭ-62 Нац. акад. наук Беларуси, Минск, 2000. 20 с.

Поступила в Редакцию 18.11.03

УДК 621.039.31

ПРАВИЛЬНОЕ ПОНИМАНИЕ РАЗЛОЖЕНИЯ ГЕЛЬМГОЛЬЦА ПРИ ОПИСАНИИ ЦЕНТРОБЕЖНОГО РАЗДЕЛЕНИЯ МЕТОДОМ УСРЕДНЕНИЯ ПО РАДИУСУ

Александров О.Е. (Уральский государственный технический университет)

Работа посвящена объяснению некоторых аспектов метода усреднения по радиусу на основе вихревого потенциала [1—3] (разложение Гельмгольца), которые, как показывают недавние публикации [4, 5], не нашли достаточного понимания. В частности, в работе [5] утверждается, что разложение Гельмгольца не вносит ничего нового по сравнению с классическим методом описания и имеет следующие ограничения: не учитывает вихревые течения, связанные с питанием, предполагает радиальную однородность транзитных потоков, не учитывает радиальный конвективный перенос изотопа, полностью пренебрегает радиальными различиями концентрации при усреднении по радиусу и неявно предполагает малость потока питания по сравнению с потоком циркуляции.

Поскольку основные выводы работы [5] сделаны в результате неправильного понимания основ метода разложения Гельмгольца, то настоящая работа разъясняет эти ошибки и показывает, что разложение Гельмгольца действительно позволяет сделать более точные и обоснованные заключения об особенностях процесса разделения в центрифуге. Работа разъясняет ошибки, следуя тексту [5]. Всюду используется цилиндрическая система координат (r, ϕ, z) , ось OZ которой совпадает с осью вращения ротора центрифуги, плоскость $z = 0$ проходит через точку подачи питания. Система координат вращается вместе с ротором центрифуги. Всюду, где не оговорено иное, предполагается, что от угловой координаты ϕ ничего не зависит. Рассматривается изотопное приближение, когда в силу малой разницы массы компонентов можно не различать массовую и числовую концентрацию.

Разложение Гельмгольца. Метод, примененный в работе [1], предполагает, что в роторе центрифуги существует непрерывное поле плотности потока массы ρV . Это следует из дозвукового характера течения и наличия вязкости смеси. Вектор плотности потока массы ρV во внутрироторном течении имеет три ненулевых компонента, но работа [1] рассматривает только два из них: ρV_r и ρV_z . Такое рассмотрение возможно, поскольку третий компонент ρV_ϕ не входит в уравнение конвективной диффузии:

$$\text{div}(\rho D[\text{grad}N + e_r f r N(1 - N)]) - \rho V \text{grad}N = 0, \quad (1)$$

где N — молярная концентрация изотопа; e_r — единичный вектор, сонаправленный с осью OR системы координат; $f = \Delta m \Omega^2 / kT$; Δm — разность молекулярной массы