

УДК 621.039.54

АНАЛИЗ НАКОПЛЕНИЯ ДОЛГОЖИВУЩЕЙ РАДИОТОКСИЧНОСТИ В U—Pu ТОПЛИВНОМ ЦИКЛЕ ЯДЕРНОЙ ЭНЕРГЕТИКИ

Бергельсон Б.Р., Балюк С.А. (ИТЭФ)

Пути развития ядерной энергетики в 21-м веке во многом зависят от решения проблемы экологической приемлемости такого способа получения энергии. Степень воздействия АЭС на окружающую среду в основном определяется радиотоксичностью, нарабатываемой в энергетических реакторах. Образование радиотоксичности существенно зависит от типа энергетического реактора и характера топливного цикла. Поэтому представляет интерес проанализировать накопление долгоживущей радиотоксичности в условиях различных вариантов уран-плутониевого топливного цикла (открытый или замкнутый) с использованием энергетических тепловых и быстрых реакторов.

В статье приведены результаты анализа, проведенного в целях определения исходных данных, необходимых для исследования трансмутации (уничтожения) долгоживущей радиотоксичности Pu, Np, Am, Cm и продуктов деления. Пути распространения такой радиотоксичности, определяющие ее воздействие на окружающую среду, не рассматривались, за исключением влияния на результаты типа среды (вода или воздух), в которую могут попасть радионуклиды при различных авариях, а также в процессе длительного хранения радиоактивных отходов.

Радиотоксичность характеризовалась понятием удельного индекса (УИТ)_i, который определялся путем деления 1 кг нуклида на предельно допустимую радиоактивность того же нуклида в 1 л воды или воздуха. Отсюда следует, что (УИТ)_i определяет объемное количество воды или воздуха, необходимое для разбавления до предельно допустимой концентрации 1 кг i-го нуклида. Эта величина позволяет с определенной степенью объективности сравнивать различные виды радиоактивности. Приведенные в табл. 1 значения рассчитаны на основании данных [1] с учетом поправок, внесенных МКРЗ в 1990 г. [2]. В дальнейшем будут применяться значения (УИТ)_i для воды.

Т а б л и ц а 1. Удельный индекс радиотоксичности

Нуклид	л H ₂ O/кг	л воздуха/кг
²³⁷ Np	$4,7 \cdot 10^7$	$1,0 \cdot 10^{15}$
²⁴¹ Am	$3,6 \cdot 10^{12}$	$6,8 \cdot 10^{19}$
^{242m} Am	$9,5 \cdot 10^{12}$	$2,0 \cdot 10^{20}$
²⁴³ Am	$1,8 \cdot 10^{11}$	$4,0 \cdot 10^{18}$
²⁴⁴ Cm	$4,5 \cdot 10^{13}$	$1,1 \cdot 10^{21}$
²³⁸ Pu	$6,9 \cdot 10^{13}$	$5,2 \cdot 10^{21}$
²³⁹ Pu	$2,8 \cdot 10^{11}$	$2,1 \cdot 10^{19}$
²⁴⁰ Pu	$1,0 \cdot 10^{12}$	$7,6 \cdot 10^{19}$
²⁴¹ Pu	$9,4 \cdot 10^{12}$	$6,4 \cdot 10^{20}$
²⁴² Pu	$1,6 \cdot 10^{10}$	$1,3 \cdot 10^{18}$

Накопление радиотоксичности Pu, Np, Am, Cm в условиях открытого топливного цикла. В ядерной энергетике с открытым топливным циклом источником энергии являются тепловые реакторы. Для последующего анализа воспользуемся характеристиками энергетических PWR с глубиной выгорания топлива 33 МВт·сут/кг, которые могут рассматриваться как аналоги отечественных ВВЭР-1000. Характеристики PWR определялись по данным [3]. В табл. 2 приведены q_1^{MA} — скорость поступления Np,

Т а б л и ц а 2. Скорость наработки Np, Am, Cm энергетическими реакторами и количество плутония в U—Pu топливном цикле этих реакторов

Топливный цикл	^{238}Pu	^{239}Pu	^{240}Pu	^{241}Pu	^{242}Pu	^{237}Np	^{241}Am	^{242}Am	^{243}Am	^{244}Cm
Открытый с PWR: q_1 , кг/ГВт·год	4,8	185,3	75,3	35,4	16,5	14,6	6,8	—	2,8	0,72
Замкнутый с PWR (1/3 смешанного оксидного топлива):										
q_2 , кг/ГВт·год	—	—	—	—	—	9,3	14,7	0,1	12,6	5,7
Q_2 , т/ГВт	0,088	1,08	0,76	0,40	0,27	—	—	—	—	—
Замкнутый с LMFBR:										
q_3 , кг/ГВт·год	—	—	—	—	—	—	50,0	1,6	12,0	2,0
Q_3 , т/ГВт	0,14	9,6	2,7	1,4	0,43	—	—	—	—	—

Am, Cm в долговременное хранилище после трехлетней выдержки отработавшего топлива, выгруженного из PWR с выгоранием 33 МВт·сут/кг; q_1^{Pu} — аналогичная величина для i -го изотопа плутония. Здесь и в дальнейшем все данные приведены в расчете на 1 ГВт электрической энергии, вырабатываемой АЭС.

В процессе хранения отработавшего топлива изменяется изотопный состав Pu, Np, Am, Cm в результате распада относительно короткоживущих нуклидов. Так, при хранении в течение примерно 100 лет почти весь ^{241}Pu распадается в ^{241}Am , ^{244}Cm — в ^{240}Pu . Более половины ^{238}Pu распадается в ^{234}U , часть ^{241}Am — в ^{237}Np .

Если ТВС после выгрузки из реактора содержит i -е нуклиды в количестве m_i , то ее радиотоксичность $R_{\text{TBC}}^{\text{MA}} = \sum_i (\text{УИТ})_i m_i^{\text{MA}}$; $R_{\text{TBC}}^{\text{Pu}} = \sum_i (\text{УИТ})_i m_i^{\text{Pu}}$. Через 3 года

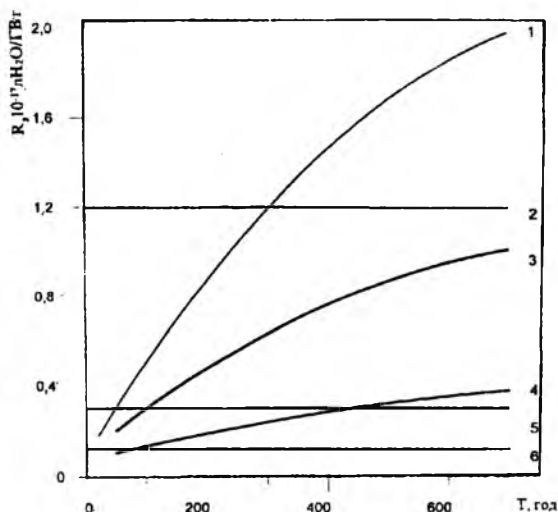
после выгрузки из реактора $R_{\text{TBC}}^{\text{MA}}/R_{\text{TBC}}^{\text{Pu}} \sim 7 \cdot 10^{-2}$, примерно через 100 лет это отношение составит $\sim 0,5$, т.е. при длительном хранении ТВС радиотоксичность Np, Am, Cm вносит значительный вклад в суммарную радиотоксичность $R_{\text{TBC}}^{\text{MA}} + R_{\text{TBC}}^{\text{Pu}}$, и это будет сохраняться в течение многих сотен лет.

Радиотоксичность, накапливаемая в хранилище в результате непрерывной деятельности ядерной энергетики с постоянной мощностью в течение времени τ ,

$$R(\tau) = \sum_i (\text{УИТ})_i \int_0^{\tau} q_i^j(\tau') d\tau',$$
 где $q_i^j(\tau')$ — зависимость, описывающая изменение во времени радиотоксичности актиноидов, извлекаемых из отработавшего ядерного топлива АЭС со скоростью q_i^j в момент $\tau' = 0$. Кривая 1 на рисунке описывает зависимость $R_1^{\text{MA}}(\tau) + R_1^{\text{Pu}}(\tau)$ для открытого топливного цикла.

Отметим, что при длительном функционировании ядерной энергетики с постоянной мощностью в условиях открытого топливного цикла радиотоксичность актиноидов, находящихся в реакторах и во временных хранилищах отработавшего топлива на АЭС, пренебрежимо мала по сравнению с радиотоксичностью тех же нуклидов, накапливаемых в долговременных хранилищах. Однако условия «хранения» радиоактивных нуклидов в работающем реакторе и во временных хранилищах принципиально отличаются от условий долговременного хранения и поэтому требуют отдельного рассмотрения.

Накопление радиотоксичности актиноидов в условиях замкнутого топливного цикла. При замкнутом топливном цикле изотопы плутония и урана, содержащиеся в отработавшем топливе, после выдержки, переработки и изготовления новых твэлов



Накопление во времени долгоживущей радиотоксичности для различных топливных циклов: 1 — суммарная радиотоксичность Pu, Np, Am, Cm для открытого топливного цикла; 2 — радиотоксичность ^{90}Sr для замкнутого топливного цикла; 3, 4 — суммарная радиотоксичность Np, Am, Cm для замкнутого топливного цикла 1PWR — смешанное оксидное топливо + 1LMFBR и PWR — $2/3 \text{UO}_2 + 1/3$ смешанное оксидное топливо соответственно; 5, 6 — радиотоксичность плутония для замкнутого топливного цикла 1PWR — смешанное оксидное топливо + 1LMFBR и PWR — $2/3 \text{UO}_2 + 1/3$ смешанное оксидное топливо соответственно

ство i -го изотопа плутония в топливном цикле PWR (с учетом плутония, содержащегося в активной зоне PWR) [3]. Радиотоксичность плутония $R_2^{\text{Pu}} = \sum_i (\text{УИТ})_i Q_2^{\text{Pu}}$.

В соответствии с данными табл. 2 $R_2^{\text{Pu}} = 1,1 \cdot 10^{16}$ л $\text{H}_2\text{O}/\text{ГВт}$. Из кривой 4 на рисунке, описывающей временную зависимость $R_2^{\text{MA}}(\tau)$, следует, что радиотоксичность Np, Am, Cm, накапливаемая в хранилищах, достигает радиотоксичности плутония в топливном цикле примерно через 80 лет после начала работы АЭС, а через 300 лет вдвое ее превышает.

Перейдем теперь к рассмотрению замкнутого топливного цикла с тепловыми и быстрыми реакторами. В качестве тепловых, как и ранее, рассматриваются PWR, в качестве быстрых — LMFBR, работающие в режиме расширенного воспроизводства топлива. Характеристики LMFBR определялись по данным [3].

♦ Развивающаяся ядерная энергетика. Постулируем такое развитие ядерной энергетики, при котором весь избыточный энергетический плутоний, нарабатываемый в LMFBR и PWR, расходуется на пуск новых LMFBR. В процессе развития ядерной энергетики поддерживается соотношение: два PWR на один LMFBR. Все изотопы Np, Am, Cm, нарабатываемые в PWR и LMFBR, накапливаются в долговременном хранилище. В табл. 2 q_3^{MA} — скорость поступления i -го изотопа Np, Am, Cm в долговременное хранилище после трехлетней выдержки и переработки отработавшего ядерного топлива, извлекаемого из LMFBR; Q_3^{Pu} — количество i -го изотопа плутония в топливном цикле LMFBR (с учетом плутония, содержащегося в активной зоне LMFBR).

возвращаются в реактор. Для последующего анализа будем полагать, что весь уран и плутоний возвращаются в реактор, а Np, Am, Cm поступают в хранилище. При этом время нахождения урана и плутония вне реактора (внешняя часть топливного цикла) примем равным 3 годам. Под радиотоксичностью Np, Am, Cm, накапливаемых в хранилище, будем подразумевать радиотоксичность тяжелых элементов, включая дочерние продукты их распада, в том числе и изотопы плутония.

Рассмотрим замкнутый топливный цикл с использованием только тепловых реакторов. В равновесном режиме загрузка активной зоны PWR состоит на $2/3$ из низкообогащенного UO_2 и на $1/3$ из смешанного оксидного топлива. В равновесных условиях скорость поступления энергетического плутония в активную зону PWR определяется скоростью выгрузки плутония из того же реактора. В табл. 2 q_2^{MA} — скорость поступления Np, Am, Cm в долговременное хранилище после трехлетней выдержки и переработки отработавшего топлива,

извлекаемого из PWR; Q_2^{Pu} — количе-

Суммарная скорость поступления Np , Am , Cm в долговременное хранилище $\bar{q}_3^{\text{MA}} = 1/3(q_3^{\text{MA}} + 2q_1^{\text{MA}})$. Радиотоксичность плутония для той же модели замкнутого топливного цикла $\bar{R}_3^{\text{Pu}} = 1/3 [R_3^{\text{Pu}}(\text{LMFBR}) + 2R_1^{\text{Pu}}(\text{PWR})] = 1,2 \cdot 10^{16}$ л $\text{H}_2\text{O}/\text{ГВт}$, где $R_1^{\text{Pu}}(\text{PWR}) = 0,4 \cdot 10^{16}$ л $\text{H}_2\text{O}/\text{ГВт}$; $R_3^{\text{Pu}}(\text{LMFBR}) = 2,8 \cdot 10^{16}$ л $\text{H}_2\text{O}/\text{ГВт}$.

Будем считать, что мощность ядерной энергетики изменяется по закону $N(\tau) = N_0 \exp(\lambda\tau)$, где $\lambda = 0,693/\tau_2$ (τ_2 — время удвоения мощности). Накопленная в хранилище радиотоксичность Np , Am , Cm в момент τ $\bar{R}_3^{\text{MA}}(\tau) = 1/\exp(\lambda\tau) \sum_i (\text{УИТ})_i \int_0^\tau \exp(\lambda\tau') \bar{q}_3^{\text{MA}}(\tau - \tau') d\tau'$. Полагая $\bar{q}_3^{\text{MA}}(\tau) \sim \bar{q}_3^{\text{MA}} \exp(-\lambda_i\tau)$ (λ_i — вероятность распада i -го нуклида), получим $\bar{R}_3^{\text{MA}}(\tau) = \sum_i (\text{УИТ})_i (q_3^{\text{MA}}/\lambda + \lambda_i) [1 - \exp -(\lambda + \lambda_i)\tau]$.

Таким образом, при $\tau > 2/(\lambda + \lambda_i)$ радиотоксичность Np , Am , Cm в расчете на единицу мощности развивающейся ядерной энергетики не зависит от времени. Из полученного результата следует, что при $\tau \geq 3\tau_2$ с момента начала развития ядерной энергетики с временем удвоения τ_2 радиотоксичность Np , Am , Cm , накапливаемых в долговременных хранилищах, и радиотоксичность плутония, содержащаяся в топливном цикле, увеличиваются пропорционально ее мощности. Поэтому примерно через $3\tau_2$ лет после начала работы ядерной энергетики отношение радиотоксичности Np , Am , Cm к радиотоксичности плутония стабилизируется и $\bar{R}_3^{\text{MA}}/\bar{R}_3^{\text{Pu}} \sim \tau_2$ при условии $\lambda_i \ll \lambda$ (если $\tau_2 = 15$ лет, то $\bar{R}_3^{\text{MA}}/\bar{R}_3^{\text{Pu}} = 0,26$).

♦ Стационарная ядерная энергетика. В замкнутом топливном цикле с тепловыми и быстрыми реакторами мощность обеспечивается PWR и LMFBR. При этом загрузка PWR целиком состоит из смешанного оксидного топлива, для изготовления которого используется весь плутоний, нарабатываемый в PWR, и избыток плутония из LMFBR. Вследствие отсутствия детальной исходной информации для расчетов рассматриваемого режима приняты следующие допущения: а) в качестве q_4^{MA} — скорости поступления Np , Am , Cm в долговременное хранилище после их извлечения из отработавшего ядерного топлива и Q_4^{Pu} — количества плутония, содержащегося в топливном цикле PWR на смешанном оксидном топливе, приняты утроенные значения q_2^{MA} и Q_2^{Pu} , приведенные в табл. 2 (для PWR с 1/3 смешанного оксидного топлива) без ^{237}Np , который образуется в основном при облучении ^{235}U ; б) в качестве скорости поступления Np , Am , Cm в долговременное хранилище после извлечения из отработавшего ядерного топлива и количества плутония, содержащегося в топливном цикле LMFBR, использованы q_3^{MA} и Q_3^{Pu} , приведенные в табл. 2.

Таким образом, при стационарной ядерной энергетике скорость поступления Np , Am , Cm в хранилище $\bar{q}_4^{\text{MA}} = (1 - x) q_4^{\text{MA}} + x q_3^{\text{MA}}$, количество плутония в топливном цикле $\bar{Q}_4^{\text{Pu}} = (1 - x) Q_4^{\text{Pu}} + x Q_3^{\text{Pu}}$, где x — доля энерговыработки LMFBR. Кривая 3 на рисунке показывает, что при стационарной работе ядерной энергетики (с PWR и LMFBR при $x = 0,5$) в течение $\tau > 100$ лет накапливаемая в долговременных хранилищах радиотоксичность Np , Am , Cm и ^{238}Pu , образующегося при длительном хранении последних, превосходит радиотоксичность плутония, содержащегося в топливном цикле.

Накопление радиотоксичности долгоживущих продуктов деления. В работе [4] показано, что среди продуктов деления с периодом полураспада $T_{1/2} > 10$ лет основными, т.е. определяющими долгоживущую радиоактивность являются радионуклиды, представленные в табл. 3. Накопление радиотоксичности долгоживущих продуктов деления в расчете на 1 ГВт мощности $R^{ДПД}(\tau) = \sum_i (УИТ)_i q_i / \lambda_i [(1 - \exp(-\lambda_i \tau))]$.

Т а б л и ц а 3. Характеристики основных долгоживущих нуклидов, входящих в состав продуктов деления

Нуклид	$T_{1/2}$, год	Y_i		q_i кг/ГВт·год	(УИТ) $_i$		(УИТ) $_i$ воздух/(УИТ) $_i$ вода
		^{235}U	^{239}Pu		л H_2O /кг	л воздуха/кг	
^{90}Sr	$2,85 \cdot 10^1$	5,88	2,10	19,3	$3,48 \cdot 10^{14}$	$3,48 \cdot 10^{18}$	$1,0 \cdot 10^4$
^{93}Zr	$1,53 \cdot 10^6$	6,40	3,89	2,56	$3,14 \cdot 10^7$	$5,76 \cdot 10^{12}$	$1,8 \cdot 10^5$
^{99}Tc	$2,13 \cdot 10^5$	6,11	6,17	27,1	$1,06 \cdot 10^7$	$8,08 \cdot 10^{12}$	$7,6 \cdot 10^4$
^{126}Sn	$1,0 \cdot 10^5$	0,056	0,199	0,635	$1,49 \cdot 10^{9*}$	$2,34 \cdot 10^{13*}$	$1,6 \cdot 10^4$
^{129}I	$1,57 \cdot 10^7$	0,71	1,5	6,15	$9,26 \cdot 10^8$	$6,52 \cdot 10^{12}$	$7,0 \cdot 10^3$
^{135}Cs	$2,3 \cdot 10^6$	6,55	7,42	11,9	$1,05 \cdot 10^7$	$3,72 \cdot 10^{11}$	$3,5 \cdot 10^4$
^{137}Cs	$3,02 \cdot 10^1$	6,21	6,62	41,5	$5,74 \cdot 10^{12}$	$1,76 \cdot 10^{17}$	$3,1 \cdot 10^4$
^{151}Sm	$9,0 \cdot 10^1$	0,416	0,775	0,414	$6,89 \cdot 10^{10}$	$1,19 \cdot 10^{15}$	$1,7 \cdot 10^5$

* Из-за отсутствия данных о предельно допустимой активности приняты значения для ^{123}Sn .

При функционировании ядерной энергетики в течение $\tau > 100$ лет с постоянной мощностью $R^{ДПД}$ достигает равновесного значения, которое определяется радиотоксичностью ^{90}Sr . Это значение зависит от структуры ядерной энергетики и для открытого топливного цикла равняется $2,4 \cdot 10^{17}$ л H_2O /ГВт. Согласно данным [3] то же значение для замкнутого топливного цикла (в PWR используется только смешанное оксидное топливо) составляет $1,2 \cdot 10^{17}$ л H_2O /ГВт. Спустя несколько сотен лет после прекращения работы АЭС радиотоксичность долгоживущих продуктов деления в результате распада ^{90}Sr и ^{137}Cs будут определять ^{99}Tc , ^{129}I , ^{126}Sn и ^{93}Zr .

Накопление долгоживущей радиотоксичности, нарабатываемой АЭС. Во время работы АЭС долгоживущая радиотоксичность, определяемая радиотоксичностью актиноидов и долгоживущих продуктов деления, зависит от структуры ядерной энергетики и режима ее работы. В табл. 4 приведены соответствующие значения радиотоксичности.

Т а б л и ц а 4. Скорость накопления долгоживущей радиотоксичности актиноидов (по воде) и содержание такой радиотоксичности в топливном цикле

Топливный цикл	Скорость поступления в хранилище $dR/d\tau$, 10^{-14} л H_2O /ГВт·год	Содержание в топливном цикле R , 10^{-16} л H_2O /ГВт
Стационарная ядерная энергетика:		
открытый, PWR (UO_2)	8,5 (Pu + Np, Am, Cm)	0,42 (Pu + Np, Am, Cm)*
замкнутый, PWR (2/3 UO_2 + 1/3 смешанное оксидное топливо)	3,1 (Np, Am, Cm)	1,1 (Pu)
замкнутый, 1 PWR (смешанное оксидное топливо) + 1 LMFBP	6,0 (Np, Am, Cm)	3,0 (Pu)
Развивающаяся ядерная энергетика, замкнутый	1,3 (Np, Am, Cm)	1,2 (Pu)

* В кратковременном хранилище при трехлетней выдержке отработавшего ядерного топлива.

При развивающейся ядерной энергетике в условиях замкнутого топливного цикла существенное снижение радиотоксичности актиноидов возможно лишь в результате сокращения внешней части топливного цикла. При стационарной ядерной энергетике вклад Np , Am , Cm в суммарную радиотоксичность актиноидов возрастает. Изменение различных составляющих накопленной радиотоксичности в зависимости от τ — времени работы стационарной ядерной энергетике для различных вариантов уран-плутониевого топливного цикла показано на рисунке.

После прекращения работы АЭС радиотоксичность ^{90}Sr и ^{137}Cs быстро падает по отношению к радиотоксичности актиноидов. Из данных табл. 5 следует, что спустя примерно 100 лет после прекращения эксплуатации АЭС радиотоксичность отходов ядерной энергетике будут определять актиноиды ($\tau = 0$ соответствует моменту прекращения работы АЭС). Этот результат не зависит от времени функционирования ядерной энергетике.

Т а б л и ц а 5. Изменение во времени радиотоксичности актиноидов и ^{90}Sr после снятия АЭС с эксплуатации ($\tau_0 = 0$)

τ , год	R , 10^{-16} л H_2O /ГВт			R^{MA}/R^{90Sr}	R^{MA+Pu}/R^{90Sr}
	Np , Am , Cm	$Pu + Np$, Am , Cm	^{90}Sr		
0	13,7	16,7	12,0	1,14	1,39
20	11,9	14,3	7,45	1,60	1,92
40	11,2	13,2	4,63	2,42	2,85
60	10,7	12,5	2,88	3,72	4,34
90	10,3	11,9	1,79	5,75	6,65
100	10,0	11,5	1,10	9,09	10,5

Что касается долгоживущей радиотоксичности, определяемой по $(УИТ)_i$ для воздуха, то при длительной работе АЭС с постоянной мощностью в условиях замкнутого топливного цикла ее состав таков, л воздуха/ГВт: Pu $2,2 \cdot 10^{24}$, Np , Am , Cm $4 \cdot 10^{24}$, ^{90}Sr $1,2 \cdot 10^{21}$, ^{137}Cs $6,1 \cdot 10^{19}$. Таким образом, долгоживущая радиотоксичность по воздуху полностью определяется актиноидами почти весь период работы АЭС и тем более после ее остановки.

Результаты исследований сводятся к следующему.

Долгоживущая радиотоксичность, накапливаемая в процессе работы АЭС, определяется радиотоксичностью долгоживущих продуктов деления (^{90}Sr) и актиноидов, если использовать данные о допустимой концентрации радионуклидов в воде [1]. Эта же величина определяется только радиотоксичностью актиноидов, если использовать данные из того же источника о допустимой концентрации в воздухе.

При работе АЭС в условиях открытого топливного цикла радиотоксичность Np , Am , Cm не превышает ~ 30% радиотоксичности Np , Am , $Cm + Pu$. В условиях замкнутого топливного цикла соотношение радиотоксичности Np , Am , Cm , накапливаемой в долговременных хранилищах, и радиотоксичности плутония, содержащейся в топливном цикле, зависит от режима работы. При развивающейся ядерной энергетике радиотоксичность Np , Am , Cm зависит от времени удвоения мощности, и при $\tau_2 = 15$ лет она составляет ~ 26% радиотоксичности плутония. При стационарной ядерной энергетике соотношение радиотоксичности изменяется во времени. Если АЭС проработают с постоянной мощностью 100 лет, то $R^{MA}/R^{Pu} = 1$, если ~ 300 лет, то $R^{MA}/R^{Pu} = 2$.

Через ~ 100 лет после прекращения эксплуатации АЭС долгоживущая радиотоксичность как по воздуху, так и по воде будет определяться актиноидами, если в ядерной

энергетике был принят открытый топливный цикл. В условиях замкнутого топливного цикла долгоживущая радиотоксичность будет обусловлена только Np , Am , Cm , так как плутоний, содержащийся в топливном цикле, должен быть сожжен как ядерное топливо в процессе вывода АЭС из эксплуатации.

В заключение следует отметить, что для определения скорости наработки актиноидов в различных энергетических реакторах и содержания плутония в топливных циклах использовались данные работы [3], не всегда совпадающие с аналогичными данными других публикаций. Однако различия слабо влияют на приведенные в настоящей статье результаты.

Работа выполнена в рамках проекта МНТЦ № 17.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Нормы радиационной безопасности (НРБ-76/87) и Основные санитарные правила работы с радиоактивными веществами и другими источниками ионизирующих излучений (ОСП-72/87). Минздрав СССР, 3-е изд. М.: Энергоатомиздат, 1988.
2. Герасимов А.С. Сравнение радиотоксической опасности быстрых реакторов и электроядерных реакторов при трансмутации плутония и ДРАО: Препринт ИТЭФ № 14—19, 1992.
3. Кесслер Г. Ядерная энергетика. М.: Энергоатомиздат, 1986.
4. Бергельсон Б.Р., Мурысова Л.Т. Обоснование целесообразности и возможности трансмутации долгоживущих продуктов деления в реакторах на тепловых нейтронах: Препринт ИТЭФ № 27—92, 1992.

Поступила в Редакцию 30.03.95

УДК 543.51

ОБНАРУЖЕНИЕ СЛЕДОВЫХ КОЛИЧЕСТВ АКТИНОИДОВ В ПРОБАХ МЕТОДОМ ТЕРМОИОНИЗАЦИОННОЙ МАСС-СПЕКТРОМЕТРИИ

*Каменев А.Г., Ефимов И.А., Чубинский-Надеждин И.В.
(Ин-т аналитического приборостроения РАН)*

При контроле техногенных загрязнений природных объектов радиоактивными изотопами актиноидов, элементном анализе отработавшего ядерного топлива АЭС, создании радиоактивных источников для научно-технических целей актуальным является определение следовых количеств Th , U , Np , Pu , Am , Cm в диапазоне концентрации в пробе от 10^{-6} до 10^{-14} г/г. Для этого могут успешно применяться масс-спектрометрические методы. В настоящее время подобные анализы проводятся на масс-спектрометрах с ионизацией в индуктивно-связанной плазме, при этом порог обнаружения по концентрации близок к 10^{-12} г/г [1, 2].

В случае анализа смесей компонентов требуемый динамический диапазон измерений может составлять 10^6 — 10^8 , если не проводится предварительная пробоподготовка для снижения концентрации наиболее представительных в пробе элементов, например, урана при анализе природных объектов. Однако прямые измерения в таком динамическом диапазоне затруднены. При значительном различии концентрации актиноидов в смеси появляющиеся в спектре дополнительные пики соединений, которые образуются в результате химических реакций в источнике ионов, могут маскировать пики малопредставительных компонентов. Интерференция массы изотопов компонентов и недостаточная изотопическая чувствительность прибора также могут ограничивать допустимый динамический диапазон концентрации в смеси актиноидов.

В настоящей работе рассматривается возможность использования другого масс-спектрометрического метода — метода термоионизационной масс-спектрометрии [3—6] при элементном анализе следовых количеств актиноидов в присутствии урана кон-