

VILNIAUS UNIVERSITETAS

FIZIKOS INSTITUTAS

Darius Lukauskas

RADIONUKLIDINĖS SUDĖTIES TYRIMAS ATOMINĖS ELEKTRINĖS
RADIOAKTYVIŲJŲ ATLIEKŲ SRAUTUOSE

Daktaro disertacija

Fiziniai mokslai, fizika (02 P)

Vilnius, 2009

Disertacija rengta 2003-2008 m. Fizikos institute.

Mokslinis vadovas:

prof. dr. Vidmantas Remeikis (Fizikos institutas, fiziniai mokslai, fizika – 02 P).

TURINYS

ĮVADAS.....	4
1. LITERATŪROS APŽVALGA.....	11
1.1 Radionuklidų susidarymas branduoliniuose reaktoriuose.....	12
1.2 RBMK-1500 reaktoriaus radiologinio charakterizavimo tyrimai.....	16
1.3 Radioaktyviųjų atliekų charakterizavimas.....	24
1.3.1 Radioaktyviųjų atliekų tvarkymo saugos požiūriu svarbūs radionuklidai.....	24
1.3.2 Sunkiai matuojamų radionuklidų koncentracijų nustatymas.....	30
1.3.3 Proporcingumo daugiklius įtakojantys veiksniai.....	38
1.4 Kapinynų apžvalga.....	45
2 METODIKA.....	49
2.1 Radioaktyviųjų atliekų susidarymo Ignalinos atominėje elektrinėje schema.....	49
2.2 Proporcingumo daugiklių nustatymo metodai.....	58
2.2.1 Eksperimentinis proporcingumo daugiklių nustatymas.....	58
2.2.2 Kompiuterinio modeliavimo metodas.....	65
2.3 Eksperimentinių duomenų apdorojimas nustatant proporcingumo daugiklius.....	70
3 REZULTATAI.....	75
3.1 Reikšmingų radionuklidų sąrašo sudarymas.....	75
3.2 Metodų nuklidinei Ignalinos AE radioaktyviųjų atliekų sudėčiai nustatyti analizė.....	84
3.3 Ignalinos AE radioaktyviųjų atliekų srautų analizė.....	85
3.4 Nuklidinių vektorių analizė Ignalinos AE radioaktyviųjų atliekų srautuose.....	90
IŠVADOS.....	110
NAUDOTOS LITERATŪROS SĄRAŠAS.....	114

IVADAS

Temos aktualumas

Nuolat augančios energijos sąnaudos bei naujų pramonės šakų ir technologijų plėtra neišvengiamai kuria problemas, susijusias su žalingu gamybos atliekų poveikiu supančiai aplinkai ir žmogui. Augant technogeniniam krūviui ir senkant aplinkos savireguliacijos galimybėms, visuomenė priversta investuoti į aplinką tausojančių plėtros kelių paieškas. Šiuo požiūriu alternatyvų neturi branduolinė energetika, tačiau būtina užtikrinti aukštą branduolinės saugos bei radiacinės apsaugos lygį, išspręsti radioaktyviųjų atliekų tvarkymo technologinius uždavinius, suprasti radioaktyviųjų izotopų sklaidos gamtinėje aplinkoje dėsninumus bei geriau suvokti jonizuojančiosios spinduliuotės poveikio aplinkai ir žmogui aspektus. Tai aktualu optimizuojant profesinę ir gyventojų radiacinę saugą eksploatuojant branduolinius įrenginius, taip pat perdirbant, saugant ir laidojant radioaktyvias atliekas. Šie klausimai ypač aktualūs nutraukiant branduolinių objektų eksploataciją, nes daugybė naujų technologinių bei radiacinės saugos aspektų, susijusių su dideliais radioaktyviųjų atliekų srautais, iki šiol galutinai nėra aiškūs.

Tema glaudžiai siejasi su svarbiausiu šio dešimtmečio Lietuvos energetikos pramonės uždaviniu – saugiai nutraukti Ignalinos atominės elektrinės eksploataciją. Tam turi būti naudojamos šiuolaikinės radioaktyviųjų atliekų tvarkymo, utilizacijos ir laidojimo technologijos, kurios garantuoja ilgalaikę saugą ir minimalų jonizuojančiosios spinduliuotės poveikį aplinkai ir žmogui.

Eksploatuojant atominės elektrines ir nutraukiant jų eksploatavimą bei išmontuojant įrenginius ir pastatus, susidaro dešimtys ir daugiau tūkstančių kubinių metrų radioaktyviųjų atliekų. Radiacinės ir branduolinės saugos požiūriu šios atliekos dėl skirtingų radionuklidų savitųjų aktyvumų ir kitų jų fizikinių bei cheminių savybių, yra nevienodai pavojingos. Todėl pirmasis

žingsnis, siekiant įvertinti galimą radioaktyvių atliekų radiologinį poveikį, - nustatyti jų radionuklidinę sudėtį. Tai yra būtina eksploatacinių radioaktyviųjų atliekų, pastatų ir įrengimų radioaktyviosios taršos charakteristika skirstant atliekas į srautus tolesniam perdirbimui ir laidojimui. Daugelyje šalių sudaromi radionuklidų sąrašai, nurodantys, kokie radionuklidai yra reikšmingi vertinant jonizuojančiosios spinduliuotės poveikį aplinkai ir žmogui. Vieningo reikšmingų radionuklidų sąrašo, tenkinančio visą branduolinių įrenginių gausą, nėra. Todėl aktualu, atsižvelgiant į branduolinio kuro ir reaktoriaus struktūrinių medžiagų sudėtį bei neutronų srauto charakteristikas, remiantis teoriniais ir eksperimentiniais vertinimais, nustatyti radionuklidinę kuro ir aktyvuotų medžiagų sudėtį bei apibrėžti radiacinės saugos požiūriu reikšmingų radionuklidų sąrašą. Ypač tai aktualu RBMK-1500 reaktorių eksploatuojančiai atominėi elektrinei, nes pirmą kartą diegiamos panaudoto branduolinio kuro, eksploatacinių ir kitų radioaktyviųjų atliekų sutvarkymo, saugojimo ir laidojimo technologijos nutraukiant jėgainės eksploataciją. Sukauptos mokslinės žinios apie eksploatacinių ir eksploatacijos nutraukimo metu susidarantių radioaktyviųjų atliekų nuklidinės sudėties teorinius ir eksperimentinius vertinimus, būtų naudingos pasirenkant optimaliausias technologijas, įvertinant galimus radionuklidų sklaidos iš kapinynų scenarijus, prognozes ir nepageidautinos radioaktyviosios taršos pasekmes. Šių problemų aktualumą pasauliniu mastu stimuliuoja augantis branduolinės energetikos poreikis, o jose išskylančių uždavinių sprendimas reikalauja naujų mokslinių žinių ir kūrybingos jų praktinės realizacijos.

Darbo tikslas ir uždaviniai

Darbo tikslas - sukurti radioaktyviųjų atliekų srautų susidarymo Ignalinos AE technologinėse grandyse modelį ir srautų radionuklidinės sudėties vertinimo metodiką. Šiam tikslui įgyvendinti keliami šie uždaviniai:

1. Sukurti visiems Ignalinos AE radioaktyviųjų atliekų srautams ir atliekų šalinimo būdams tinkančią analizės metodiką, kuria remiantis

galima sudaryti reikšmingų radiacinės saugos požiūriu radionuklidų sąrašą.

2. Ištirti radioaktyviųjų atliekų sudėties kitimo seką, aprėpiančią technologinius procesus nuo radioaktyviųjų atliekų susidarymo iki jų laidojimo, ir sudaryti radioaktyviųjų atliekų susidarymo schemą, paaiškinančią skirtingos radionuklidinės sudėties radioaktyviųjų atliekų srautų susidarymo esmę.
3. Įvertinti tiesioginių ir netiesioginių radioaktyviųjų atliekų charakterizavimo metodų galimybes ir sukurti nuklidinio vektoriaus taikymo schemą RBMK reaktorių eksploatuojančių elektrinių radioaktyviųjų atliekų srautų radionuklidinei sudėčiai tirti.
4. Nustatyti pagrindinių Ignalinos AE radioaktyviųjų atliekų srautų nuklidinius vektorius ir įvertinti metodo tikslumą, optimalias taikymo sąlygas bei taikymo ribas.

Autoriaus indėlis

Disertacijos tikslai ir uždaviniai išsiję į Fizikos instituto Branduolinių ir aplinkos radioaktyvumo tyrimų laboratorijos vykdomą kompleksinę, mokslinį–metodinį darbą, aprėpiančią radioaktyviųjų atliekų susidarymo, sklaidos reiškinį RBMK reaktoriaus technologinėse grandyse tyrimą ir radioaktyviųjų atliekų charakterizavimo darbus. Rengiant šį darbą, pasinaudota kolegų ir straipsnių bendraautorių atliktų radioaktyviųjų priemaišų radionuklidinės sudėties matavimo duomenimis (duomenys publikuoti). Autorius buvo atsakingas už darbo dalis, kuriose pateikiami nuklidinio vektoriaus pritaikymo RBMK reaktoriaus atliekoms charakterizuoti fizikiniai principai ir prielaidos, interpretuojami eksperimentinių tyrimų rezultatai, modeliuojama radionuklidų sudėtis reaktoriaus kuro rinklėse, lyginami modeliavimo ir eksperimentinių tyrimų rezultatai. Autorius taip pat buvo atsakingas už mokslinių rezultatų publikavimą ir aprobavimą.

Darbo naujumas

Šio darbo originalumą ir naujumą lėmė tyrimų objekto – Ignalinos AE – specifiška ir išsamių mokslinių žinių apie RBMK reaktoriuje vykstančius procesus bei radioaktyviųjų atliekų srautų formavimąsi stoka. Darbe kompleksiskai taikyti kompiuterinio modeliavimo, radiocheminės analizės ir branduolinės spektroskopijos eksperimentiniai metodai. Pirmą kartą pasiūlyta ir įdiegta nauja sunkiai matuojamų nuklidų netiesioginio vertinimo metodika atominei elektrinei su RBMK reaktoriumi.

Darbe pirmą kartą sudaryti RBMK reaktoriaus eksploatacinių radioaktyviųjų atliekų srautų - apdorotų skystųjų radioaktyviųjų atliekų ir vandens valymui naudojamų filtrų bei kietųjų radioaktyviųjų atliekų - proporcingumo daugiklių rinkiniai. Taip pat įvertinta atominės elektrinės įrangos radioaktyviosios taršos nuklidinė sudėtis. Analizuojant eksperimentinius rezultatus, pasiūlyti pagalbinių-atraminių radionuklidai aktinoidų ir dalijimosi produktų proporcingumo daugikliams nustatyti. Darbe pateikiamos rekomendacijos dėl proporcingumo daugiklių taikymo charakterizuojant skirtingus radioaktyviųjų atliekų srautus.

Ginamieji teiginiai

1. Proporcingumo daugiklių metodas tinka RBMK-1500 reaktoriaus radioaktyviųjų atliekų charakterizavimui. Atraminis radionuklidu, įvertinus koreliaciją su sunkiai matuojamu radionuklidu, pasirenkamas gama spinduoelis (^{60}Co arba ^{137}Cs).
2. Dalijimos produktų proporcingumo daugikliai ^{60}Co atžvilgiu priklauso nuo radioaktyviųjų atliekų srauto, aktinoidų proporcingumo daugikliai nuo atliekų srauto priklauso nežymiai, o koroziniams radionuklidams priklausomybė tiriamu eksperimentiniu tikslumu nestebima.

3. Charakterizuojant RBMK radioaktyvias atliekas vieno nuklidinio vektoriaus nepakanka - skirtingiems atliekų srautams, kuriuos lemia AE technologiniai ypatumai, būtina nustatyti atskirus nuklidinius vektorius.
4. Kietųjų atliekų srautas nėra vienalytis. Dėl skirtingų atominės elektrinės įrangos užteršimo būdų ir technologinėse grandyse vykstančių technologinių procesų atliekų srautas skyla į kelis savo radionuklidine sudėtimi besiskiriančius srautus.

Straipsniai

1. Remeikis V., Lukauskas D., Baltrūnas D., Plukis A., Duškesas G., Drūteikienė R., Lukšienė B., Lujanienė G., Gudelis A., Methods od determining safety-relevant radionuclides in the nuclear power plant radioactive waste, *Environmental Chem. Phys.* 26 (4), 157-163, (2004).
2. Lukauskas D., Plukienė R., Plukis A., Gudelis A., Duškesas G., Juodis L., Druteikienė R., Lujanienė G., Lukšienė B., Remeikis V., Method to determine the nuclide inventory of low-activity waste of the RBMK-1500 reactor. *Lith. J. Phys.* 46 (4), 497-503. (2006).
3. Remeikis V., Plukis A., Juodis L., Gudelis A., Lukauskas D., Druteikienė R., Lujanienė G., Lukšienė B., Plukienė R., Duškesas G. Study of the nuclide inventory of operational radioactive waste for the RBMK-1500 reactor. *Nucl. Eng. Design* (2008). [in press, available online at www.sciencedirect.com].
4. Plukis A., Remeikis V., Juodis L., Plukienė R., Lukauskas D., Gudelis A., Analysis of nuclide content in Ignalina NPP radioactive waste streams, *Lith. J. Phys.*, 48 (4), 375-379, (2008).
5. Gudelis A., Remeikis V., Plukis A., and Lukauskas D., Efficiency calibration of HPGe detectors for measuring environmental samples, *Environmental Chem. Phys.* 22 (3-4), 117-125 (2000).

Pranešimai konferencijose ir seminaruose

1. Lukšienė B., Remeikis V., Baltrūnas D., Gudelis A., Druteikienė R., Gvozdaite R., Lukauskas D., Duškesas G., Plukis A., Plukienė R., Sunkiai matuojamų beta-spinduolių (^{55}Fe , ^{63}Ni) koncentracijų įvertinimo principai Ignalinos atominės elektrinės mažo aktyvumo kietose atliekose, 37-oji Lietuvos nacionalinė fizikos konferencija, Vilnius, 2007-06-11 – 13 d.
2. Lukauskas D., Radionuklidų iš radioaktyviųjų atliekų kapinynų patekimo į aplinką, jų sklaidos biosferoje ir jonizuojančiosios spinduliuotės poveikio žmogui analizė. Doktorantų konferencija, Fizikos institutas, 2003.
3. Lukauskas D., Safety Assessment in Licensing of Near Surface Disposal Facilities. IAEA Regional Workshop on “Safety Assessment and Regulatory Control of Disposal Facilities”, Sofia, Bulgaria, 27 November - 1 December 2006
4. Lukauskas D., Захоронение РАО в Литве, Regional Workshop on Experience in Safety Assessment Driving Corrective Actions at Near Surface Repositories, 13-17 October 2008

Disertacijos struktūra

Disertaciją sudaro šios dalys - įvadas, literatūros apžvalga, metodika, rezultatai, išvados ir literatūros sąrašas.

Literatūros apžvalgoje aprašyti būdingi radionuklidai bei jų susidarymo branduoliniuose reaktoriuose mechanizmai, apžvelgti RBMK-1500 reaktoriaus radiologinio charakterizavimo tyrimai, įvairiose šalyse radioaktyviųjų atliekų tvarkymo saugos požiūriu reikšmingi radionuklidai bei sunkiai matuojamų radionuklidų proporcingumo daugiklių nustatymo metodai. Taip pat trumpai aptarti radioaktyviųjų atliekų laidojimo būdai ir laidojamų atliekų savybės.

Metodikos dalyje aptarti reaktoriaus konstrukciniai elementai, kuriuose susidaro radionuklidai, bei skystųjų ir dujinių radioaktyviųjų atliekų tvarkymo schemas. Taip pat aprašyti eksperimentiniai ir kompiuterinio modeliavimo

metodai, taikyti nustatant Ignalinos AE radioaktyviųjų atliekų nuklidinius vektorius bei eksperimentinių duomenų apdorojimas.

Dalyje, aprašančioje rezultatus, pateikta reikšmingų radionuklidų sąrašo sudarymo metodika, pasiūlyti metodai radionuklidų proporcingumo daugikliams nustatyti, sudaryta ir išanalizuota bendroji radioaktyviųjų atliekų tvarkymo schema. Dalies pabaigoje pateikti sudaryti Ignalinos AE atliekų srautų ir įrangos nuklidiniai vektoriai bei išanalizuoti rezultatai.

Po pagrindinių dalių išdėstytos darbo išvados ir pateiktas naudotos literatūros sąrašas.

1. LITERATŪROS APŽVALGA

Branduolinis ciklas - pagrindinis radioaktyviųjų atliekų susidarymo šaltinis. Atliekos susidaro visuose branduolinio ciklo etapuose, nuo urano rūdos kasimo iki atominių elektrinių eksploatacijos nutraukimo [1]. Atominėje energetikoje radioaktyviųjų atliekų tvarkymas yra vienas iš aktualiausių klausimų. Radioaktyviųjų atliekų tvarkymo tikslas - tvarkyti radioaktyvias atliekas taip, kad jos nekeltų pavojaus žmonėms bei aplinkai, be to neliktų papildomų rūpesčių ateities kartoms.

Paskutinis radioaktyviųjų atliekų tvarkymo etapas - atliekų šalinimas. Praktikoje taikomos dvi atliekų šalinimo strategijos: praskiedimo ir paskleidimo aplinkoje bei koncentravimo ir izoliavimo. Pirmuoju atveju, dujinės ir skystosios atliekos, neviršijant nustatytų apribojimų, išleidžiamos į aplinką. Prieš tai atliekos filtruojamos, todėl į aplinką patenka tik maža radionuklidų dalis (halogenų, aktyvuotų dujų, aerosolinių dalelių dujinės būsenos atliekose ir tričio, dalijimosi ir aktyvacijos produktų skystos būsenos atliekose). Be to, šie išmetimai nuolat kontroliuojami. Antruoju atveju, kietosios ar sukietintos skystosios radioaktyviosios atliekos laidojamos - patalpinamos į specialų įrenginį, kapinyną, neketinant jų išimti. Taikant šią strategiją būtina atsižvelgti į radionuklidų skilimo greitį ir natūralių ar žmogaus sukeltų laidojimo sistemos irimo procesų sąlygotą apšvitą [2]. Išskiriamos trys radioaktyviųjų atliekų savybės, labiausiai įtakojačios radioaktyviųjų atliekų tvarkymo būdo pasirinkimą: atliekų fizikinės-cheminės savybės, radionuklidinė sudėtis ir tūris [3].

Net tinkamai sutvarkius ir izolavus atliekas, neįmanoma užtikrinti, kad radionuklidai niekada nepateks į aplinką. Todėl atliekami radionuklidų sklaidos ir galimo jų poveikio aplinkai ir žmonėms vertinimai. Atliekų sudėtyje esantys radionuklidai yra skirtingų fizikinių ir cheminių savybių. Skiriasi jų sklaidimo sparta ir daromas poveikis. Skirtingos yra ir radionuklidų koncentracijos atliekose. Todėl, vertinant galimą poveikį, būtina žinoti radioaktyviųjų atliekų nuklidinę sudėtį. Taip atliekų apibūdinimas lemia visą

radioaktyvių atliekų tvarkymo procesą. Atliekant poveikio žmonių sveikatai vertinimus, nustatomi reikšmingi radionuklidai, kenkiantys žmonių sveikatai. Vykstant branduolių skilimui radionuklidų koncentracijos mažėja, todėl reikšmingi radionuklidai keičiasi. Tačiau vertinant poveikį ilgam laikotarpiui, reikšmingiausi tampa didžiausią pusėjimo trukmę turintys ir labiausiai radiotoksiški radionuklidai.

Pirmoje disertacijos dalyje apžvelgiami radionuklidų susidarymo branduoliniame reaktoriuje mechanizmai, radioaktyviųjų atliekų radionuklidinės sudėties nustatymo metodai ir radioaktyviųjų atliekų laidojimo būdai, taip pat jų įtaka reikšmingų radionuklidų reikalavimams.

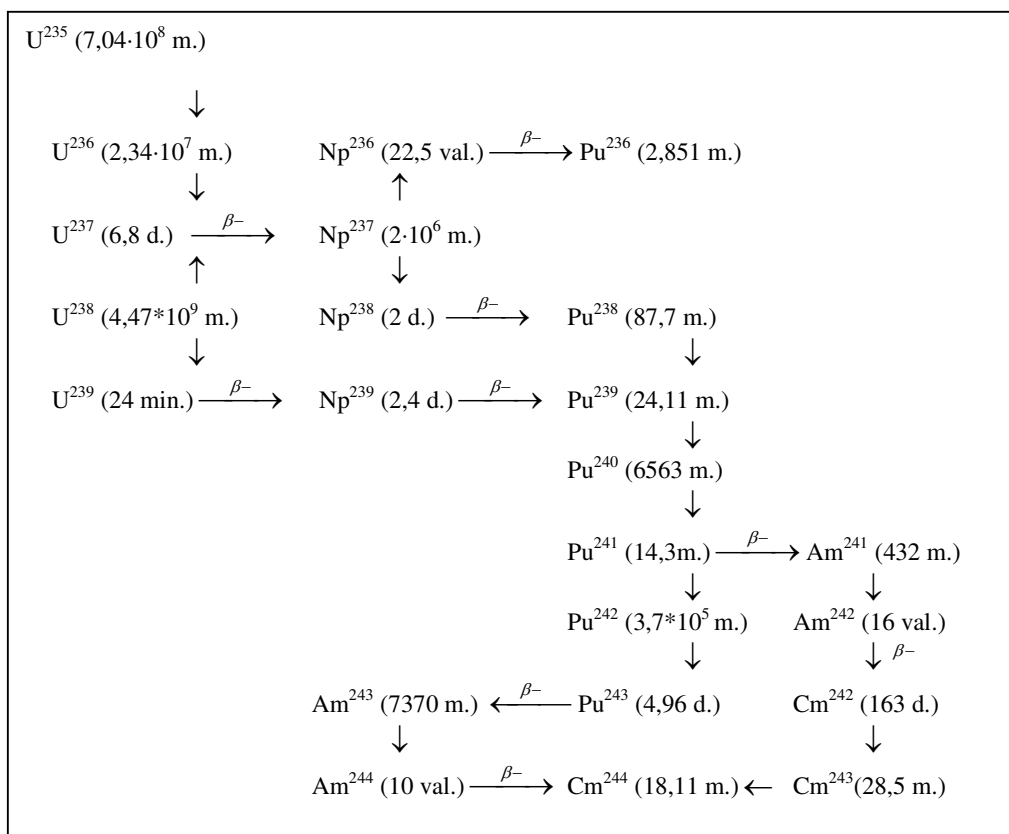
1.1 Radionuklidų susidarymas branduoliniuose reaktoriuose

Vykstant įvairioms branduolinėms reakcijoms reaktoriaus sistemoje susidaro apie šimtą pagrindinių radionuklidų. Galima išskirti kelis radionuklidų susidarymo reaktoriuje būdus [4]:

1. *Branduolių dalijimasis.* Dėl sąveikos su neutronais, protonais, α dalelėmis, γ spinduliuote ir kt., kai kurių nuklidų branduoliai dalijasi į dvi dalis (dalijimosi produktus) (ypač tai būdinga ^{235}U , ^{238}U ir ^{232}Th branduoliams). Vykstant šiam virsmui susidaro keli neutronai. Svarbiausia reaktoriuje – neutronų sukelta branduolių dalijimosi reakcija. Lėtieji neutronai (energija neviršija 100 keV) sukelia ^{232}U , ^{233}U , ^{235}U , ^{239}Pu , ^{241}Am ir ^{242}Am dalijimasi, o ^{238}U dalijimuisi reikia greitųjų neutronų (energija daugiau kaip 100 keV). U^{235} , kurio dioksidas naudojamas kaip branduolinis kuras, dalijimas šiluminiais (energija $< 0,5$ eV) neutronais naudojamas daugelyje reaktorių tipų. Dėl šio virsmo susidaro daug įvairių nuklidų, kurių atominė masė yra nuo $A=72$ iki $A=161$. Dalijimosi produktų išėiga turi du maksimumus ties $A=95$ ir $A=138$. Susidarę nuklidai turi neutronų perteklių ir todėl skyla išspinduliuodami elektronus bei sudarydami skilimo grandinėles, kol susidaro stabilus nuklidas. Daugumos skilimo produktų pusėjimo trukmė

yra nuo kelių sekundžių iki kelių valandų. Pagrindiniai dalijimosi produktai dalijantis ^{235}U ir ^{239}Pu , kurių pusėjimo trukmė yra ilgesnė nei viena diena yra: ^{85}Kr (10,72 m.), ^{89}Sr (50,5 d.), ^{90}Sr (29,1 m.), ^{90}Y (2,67 d.), ^{91}Y (58,5 d.), ^{95}Zr (64 d.), ^{95}Nb (34,97 d.), ^{99}Mo (2,79 d.), ^{103}Ru (39,27 d.), ^{106}Ru (1,02 m.), ^{125}Sb (2,76 m.), $^{129\text{m}}\text{Te}$ (33,6 d.), ^{132}Te (3,26 d.), ^{131}I (8,04 d.), ^{133}Xe (5,24 d.), $^{133\text{m}}\text{Xe}$ (2,23 d.), ^{137}Cs (30,17 m.), ^{140}Ba (12,75 d.), ^{141}Ce (32,5 d.), ^{144}Ce (284,6 d.), ^{147}Nd (10,99 d.). Be to, į reaktoriaus aušalą patenkantys dalijimosi produktai gali būti ne iš kuro tabletėje esančio urano, bet iš natūralaus urano, kurio yra ant šilumą išskiriančio elemento apvalkalo.

2. *Transuraninių elementų susidarymas branduoliniame kure dėl neutronų pagavos.* Aktyviojoje reaktoriaus srityje, veikiant ^{235}U ir ^{238}U izotopus neutronais vyksta (n,γ) ir (n,2n) reakcijos, kurių metu susidaro transuraniniai elementai. Jų susidarymo schema pavaizduota 1.1.1 pav. Dalis iš susidariusių radionuklidų yra trummpaamžiai, tačiau susidaro ir ilgaaamžiai radionuklidai, svarbūs vertinant radioaktyviųjų atliekų laidojimo saugą.
3. *Reaktoriaus aušalo aktyvacija.* Vandeniui (aušalui), tekant per aktyviają reaktoriaus sritį, t. y. patekus į neutronų srautą, vyksta aktyvacijos reakcijos. Vanduo ir jame esančios priemaišos, vykstant (n,α), (n,p), (n,γ) ir kt. reakcijoms, aktyvuojamos, virsta kitais izotopais arba kitais elementais. Daugumos iš aktyvacijos produktų gyvavimo trukmė nuo kelių sekundžių iki kelių valandų. Tačiau gali susidaryti ^3H (12,3 m.) - vykstant $^2\text{H}(n,\alpha)^3\text{H}$, $^6\text{Li}(n,\alpha)^3\text{H}$, $^{10}\text{B}(n,2\alpha)^3\text{H}$, $^{235}\text{U}(n,f)^3\text{H}$ reakcijoms bei ^{14}C (5730 m.): vykstant $^{13}\text{C}(n,\gamma)^{14}\text{C}$, $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$, $^{17}\text{O}(n,\alpha)^{14}\text{C}$ reakcijoms.
4. *Korozinių produktų aktyvacija.* Dėl reaktoriaus metalinių struktūrinių dalių korozijos, į aušalą patenka metalinės priemaišos, kurios nusėda ant kuro elementų aktyviojoje reaktoriaus srityje. Šios priemaišos yra aktyvuojamos neutronų srauto. Tai pat aktyvuojamos ir reaktoriaus konstrukcinės dalys. Pagrindiniai šiuo būdu lengvojo vandens tipo reaktoriuose susidarantys radionuklidai pateikti 1.1.1. lentelėje.



1.1.1 pav. Transuraninių elementų susidarymas branduoliniame kure.

1.1.1 lentelė. Pagrindiniai koroziniai radionuklidai lengvojo vandens tipo reaktoriuose [4]

Nuklidas	Pusėjimo trukmė	Susidarymo reakcija	Nuklidas	Pusėjimo trukmė	Susidarymo reakcija
⁵¹ Cr	27,7 d.	⁵⁰ Cr(n,γ) ⁵¹ Cr	⁶⁵ Zn	243,8 d.	⁶⁴ Zn(n,γ) ⁶⁵ Zn
⁵⁴ Mn	312,2 d.	⁵⁴ Fe(n,p) ⁵⁴ Mn	⁹⁵ Zr	64,02 d.	⁹⁴ Zr(n,γ) ⁹⁵ Zr
⁵⁵ Fe	2,73 m.	⁵⁴ Fe(n,γ) ⁵⁵ Fe	^{110m} Ag	249,8 d.	¹⁰⁹ Ag(n,γ) ^{110m} Ag
⁵⁹ Fe	44,51 d.	⁵⁸ Fe(n,γ) ⁵⁹ Fe	¹¹³ Sn	115,1 d.	¹¹² Sn(n,γ) ¹¹³ Sn
⁵⁸ Co	70,88 d.	⁵⁸ Ni(n,p) ⁵⁸ Co	¹²⁴ Sb	60,2 d.	¹²³ Sb(n,γ) ¹²⁴ Sb
⁶⁰ Co	5,27 m.	⁵⁹ Co(n,γ) ⁶⁰ Co	¹⁸¹ Hf	42,4 d.	¹⁸⁰ Hf(n,γ) ¹⁸¹ Hf
⁶³ Ni	100 m.	⁶² Ni(n,γ) ⁶³ Ni	¹⁸² Ta	114,43 d.	¹⁸¹ Ta(n,γ) ¹⁸² Ta

Įvertinus reaktoriaus konstrukcinių dalių medžiagų aktyvaciją, RBMK reaktoriams, kuriuose neutronų lėtinimui naudojamas grafitas, o kanalų gamybai – cirkonio-niobio lydinys (2,5% Nb), 1.1.1 lentelėje pateiktą

pagrindinių radionuklidų sąrašą galima papildyti ^3H , ^{14}C , ^{41}Ca , ^{59}Ni , ^{93}Zr , $^{93\text{m}}\text{Nb}$, ^{94}Nb , ^{95}Nb [5 - 7]. ^3H ir ^{14}C susidaro grafito, aktyvuojant grafito priemaišas. Taip pat ^{14}C susidaro ir kanalo vamzdžių dalyse už aktyviosios zonos ribų, nes plieno sudėtyje yra anglies priemaišų. Nb izotopai susidaro kanalo vamzdyje, kurio sudėtyje yra Nb. Dėl Ca priemaišų cirkonio niobio lydinyje, kanalo vamzdžiuose susidaro ^{41}Ca , tačiau jo aktyvumas apie šimtą kartų mažesnis nei ^{14}C . Lentelėje 1.1.2. [8] pateikti pagrindiniai radionuklidai, susidarantys RMBK tipo reaktoriuje neutronams aktyvuojant grafitą ir jame esančias priemaišas. Be to, grafito susidaro ir transuraninių elementų izotopai.

1.1.2. lentelė. Pagrindiniai radionuklidai, susidarantys grafito

Nuklidas	Pusėjimo trukmė, m.	Susidarymo reakcijos	Nuklidas	Pusėjimo trukmė, m.	Susidarymo reakcija
^3H	12,33	$^6\text{Li}(n,\alpha)$ $^3\text{He}(n,p)$ $^{10}\text{B}(n,t)$	^{63}Ni	100,1	$^{62}\text{Ni}(n,\gamma)$
^{10}Be	$1,51 \cdot 10^6$	$^{13}\text{C}(n,\alpha)$ $^{10}\text{B}(n,p)$	$^{108\text{m}}\text{Ag}$	1,15	$^{107}\text{Ag}(n,\gamma)$
^{14}C	$5,73 \cdot 10^3$	$^{13}\text{C}(n,p)$ $^{14}\text{N}(n,p)$ $^{17}\text{O}(n,\alpha)$	^{109}Cd	1,26	$^{108}\text{Cd}(n,\gamma)$
^{36}Cl	$3,01 \cdot 10^5$	$^{35}\text{Cl}(n,\gamma)$ $^{39}\text{K}(n,\alpha)$	^{134}Cs	2,07	$^{133}\text{Cs}(n,\gamma)$
^{39}Ar	269	$^{39}\text{K}(n,p)$	^{133}Ba	10,54	$^{132}\text{Ba}(n,\gamma)$
^{41}Ca	$1,03 \cdot 10^5$	$^{40}\text{Ca}(n,\gamma)$	^{152}Eu	13,52	$^{151}\text{Eu}(n,\gamma)$
^{45}Ca	0,45	$^{44}\text{Ca}(n,\gamma)$	^{154}Eu	8,59	$^{153}\text{Eu}(n,\gamma)$
^{55}Fe	2,73	$^{54}\text{Fe}(n,\gamma)$	^{155}Eu	4,76	$^{154}\text{Eu}(n,\gamma)$ $^{154}\text{Sm}(n,\gamma) \xrightarrow{\beta^-} ^{155}\text{Eu}$
^{60}Co	$3,01 \cdot 10^5$	$^{59}\text{Co}(n,\gamma)$	$^{166\text{m}}\text{Ho}$	$1,2 \cdot 10^3$	$^{165}\text{Ho}(n,\gamma)$
^{59}Ni	$3,01 \cdot 10^5$	$^{58}\text{Ni}(n,\gamma)$			

Dėl neutronų srauto sukeltų branduolinių virsmų - branduolių dalijimosi ir neutronų pagavos branduolinio kuro ir reaktoriaus konstrukcinėse medžiagose bei aušalo ir jo cirkuliacijos kontūre esančių konstrukcinių medžiagų korozijos produktų aktyvacijos susidaro apie šimtą pagrindinių radionuklidų. Tačiau ne visi jie vienodai reikšmingi vertinant jų poveikį.

1.2 *RBMK-1500 reaktoriaus radiologinio charakterizavimo tyrimai*

Yra keletas tiriamųjų darbų, kuriuose charakterizuojamos RBMK-1500 reaktoriuje susidarančios radioaktyviosios medžiagos, tačiau jie remiasi teoriniais radionuklidinės sudėties vertinimais ir kompiuteriniu modeliavimu specialia programine įranga. Šiame poskyryje apžvelgiami darbai, kuriuose charakterizuojama Ignalinos AE reaktoriaus nuklidinė sudėtis. Taip pat aptariami pagrindiniai tyrimuose įvardijami radionuklidai bei rezultatams įtakos turintys veiksniai.

Autoriai (LEI) darbe [9] analizavo Ignalinos AE grafite vykstančius neutronų aktyvacijos procesus. Pagrindiniu jonizuojančiosios spinduliuotės šaltiniu tampa 20-30 m. neutronų srauto aktyvuotos grafito priemaišos, nors bendras jų kiekis nesiekia 0,01% grafito masės. RBMK reaktoriaus klojiniui naudojamame GR-280 grafite yra Ag, Al, As, Au, Br, B, Bi, Ca, Cd, Cl, Co, Cr, Cs, Cu, Eu, Fe, H, Hg, K, Li, Mg, Mn, N, Na, Ni, O, Pb, Sc, Se, Si, Sn, Th, Ti, U, V, W, Zn priemaišų. Tačiau įvairių šaltinių [5, 10, 11] pateikiamos priemaišų koncentracijos tam pačiam cheminiam elementui skiriasi nuo 2 iki 100 kartų. Remtasi prielaida, kad kiekvieno elemento izotopinė sudėtis tokia pat kaip natūralių, gamtoje esančių elementų. Skaitinį radionuklidinės sudėties vertinimą autoriai atliko kompiuterine programa ORIGEN. Buvo vertinama: neutronų indukuoto aktyvumo priklausomybė nuo neutronų srauto, esant pastoviam apšvitos laikui; indukuoto aktyvumo priklausomybė nuo apšvitos laiko, kai pastovus neutronų srautas; indukuoto aktyvumo kaita aušinimo laikotarpiu po reaktoriaus sustabdymo; indukuoto aktyvumo priklausomybė nuo priemaišų koncentracijos (skaitinis modeliavimas atliktas didžiausioms ir

mažiausioms priemaišų koncentracijoms). Skaičiavimams taikytas $3 \cdot 10^{13}$ n/(cm²·s) neutronų srautas. Tyrimo rezultatai parodė, kad daugelio iš pagrindinių 17 radionuklidų, didėjant neutronų srautui, didėja ir indukuotas aktyvumas, tačiau ¹⁵⁴Eu, ¹⁵⁵Eu, ²³⁹Pu ir ²⁴¹Am – mažėja. Bendrasis indukuotas aktyvumas bėgant laikui didėja, bet atskirų radionuklidų aktyvumai kinta skirtingai. ³H, ¹⁴C, ³⁶Cl, ⁴¹Ca, ⁵⁹Ni, ⁶³Ni, ^{113m}Cd, ²³⁸Pu, ir ²⁴³Am aktyvumai didėja, o ¹⁵⁴Eu aktyvumas laikui bėgant mažėja ir per 20 metų pasiekia mažiausią vertę, o toliau vėl ima didėti. Kitų radionuklidamų aktyvumas didėja iki didžiausios vertės ir po to pradeda mažėti. ³⁹Ar, ⁵⁵Fe, ⁶⁰Co ir ¹²⁵Sb didžiausias aktyvumas pasiekiamas apie 15-us, o ²³⁹Pu ir ²⁴¹Am – apie 5 ir 10 metus. Sustabdžius reaktorių srautas yra nereikšmingas ir aktyvacijos procesai nevyksta. Radionuklidų, kurių pusėjimo trukmė trumpesnė nei 6 m., aktyvumai pastebimai mažėja, o ilgaamžių, kurių pusėjimo trukmė dešimtys tūkstančių metų, (pvz., ⁵⁹Ni, ³⁶Cl, ⁴¹Ca ir kt.) – kinta nežymiai. Sustabdžius reaktorių, aukštą bendrąjį aktyvumą lemia trumpaamžiškiausi radionuklidai, kurių įtaka po 5 metų jau yra nereikšminga. Praėjus 20 m. po reaktoriaus sustabdymo, didžiausi aktyvumai yra ¹⁴C, ³H, ⁵⁵Fe, ⁶⁰Co, ³⁹Ar ir ³⁶Cl, o po 100 metų – ¹⁴C, ³H, ³⁹Ar ir ³⁶Cl. Radionuklidų aktyvumai palyginti su Černobylio AE grafito vertinimo rezultatais [5]. Darbe pažymėta, kad tikslesniems aktyvumo vertinimams reikalinga informacija apie reaktoriaus eksploatavimą, neutronų srauto pasiskirstymą, grafito užteršimą ir kt. Aktyvumas priklauso nuo neutronų srauto ir apšvitos trukmės, o rezultatai – nuo grafito priemaišų koncentracijų.

Fizikos instituto, bendradarbiaujant su Prancūzijos technologinių tyrimų organizacija, CEA parengtuose straipsniuose [12, 13] pateikti detalesni skaitiniai vertinimai. Grafito aktyvacija vertinta atsižvelgiant į galimus neutronų srauto kitimus dėl reaktoriaus galios kitimo, kuro išdegimo ir valdymo kanalų padėties. Autoriai Monte Karlo metodu skaičiuojančia kompiuterine programa MCNPX modeliavo neutronų srauto trimatį pasiskirstymą ir energijų spektrą grafite. Atsižvelgta į grafito ir aušalo temperatūras ir tankius. Skaičiavimai atlikti šviežiam ir 10 MWd/kgU

išdegimo kurui. Nagrinėtos penkios pasirinktos grafito konstrukcijos: grafito klojinys, grafito kuro kanalų žiedai, šoninis (cilindrinis) reflektorius, viršutinis ir apatinis reflektoriai ir kartinis reflektorius (sandūra tarp šoninio ir viršutinio bei apatinio reflektorių). Gauti duomenys panaudoti neutronų aktyvacijos skaičiavimams. Palyginus ašinio neutronų srauto ir reaktoriaus galios kreives nustatyta, kad gaunamas nuokrypis mažesnis nei 30%, o radialiniam neutronų srautui – mažesnis nei 15%. Nustatyta, kad neutronų spektrui didelės įtakos neturi nei kuro išdegimas, nei valdymo kanalai. Atliekant aktyvacijos skaičiavimus CINDER'90 programa, atsižvelgta į Ignalinos AE 1-ojo bloko reaktoriaus galios kitimo duomenis per 21 metus, duomenis suvidurkinus vienerių metų trukmės atkarpoms. Tirta cheminė grafito priemaišų sudėtis. CEA buvo atlikti grafito priemaišų koncentracijų tyrimai γ -analizės, apšvitinant grafito mėginį moksliniuose reaktoriuose ir dujų išlydžio masių spektroskopijos metodais. Tiems elementams, kuriems nebuvo nustatyta koncentracija, naudoti mokslinės literatūros duomenys. Įvertintas aktyvuoto grafito radionuklidų radiotoksiškumas. Nustatyta, kad didžiausią įtaką bendrajam grafito aktyvumui turi ^{14}C , ^3H , ^{60}Co ir ^{55}Fe . Radiotoksiškiausi radionuklidai yra ^{244}Cm , ^{14}C , ^{60}Co , ^{55}Fe , ^{238}Pu ir ^{241}Am . Radionuklidinė sudėtis skirtingose grafito konstrukcijose skiriasi. ^3H , Eu izotopų aktyvumai aktyviojoje zonoje esančiame grafite yra mažesni, nei reflektoriuje dėl to, kad jų motininiai nuklidai aktyvioje zonoje greitai transmutuoja. Atlikta neapibrėžtumų analizė vertinant priemaišų koncentracijų neapibrėžtumų bei skirtingų branduolių duomenų bibliotekų įtaką rezultatams. Buvo palygintos trys bibliotikos JEF, JENDL ir CINDER'90. Pažymėta, kad neutronų efektingų pagavos skerspjūvių bibliotekos pasirinkimas turi žymią įtaką kai kurių radionuklidų, pvz., ^{14}C , ^{55}Fe , ^{152}Eu , ^{155}Eu , vertinimams ir reikia naudoti naujausias bibliotekas [13].

Straipsnyje [14] autoriai (LEI) nagrinėjo RBMK-1500 kuro kanalo konstrukcinės medžiagos – cirkonio-niobio lydinio E125 - neutroninę aktyvaciją. Cirkonio-niobio lydinys naudojamas vidurinei technologinio kanalo daliai gaminti. E125 lydinio sudėtyje yra Fe, Hf, Nb, Ni, Zr, Al, B, Be,

C, Ca, Cd, Co, Cu, Mn, N, O, Pb, Ti priemaišų. Naudoti lydinio sudėtiniai cheminiai elementai, pateikti straipsnyje [5]. Neapibrėžtumų analizei modeliuotas atvejis, kai priemaišų nėra – 97,5% lydinio sudaro Zr, 2,5% - Nb. Cheminių elementų izotopinė sudėtis pasirinkta tokia kaip natūralių, gamtoje esančių, elementų. Aktyvacijos procesų modeliavimui naudota SCALE 4.3 programinio paketo programa ORIGEN-S. Aktyvacijos vertinimui remtasi eksperimentiniais neutronų srauto matavimais IAE [15]. Šiluminių neutronų srautas Ignalinos AE 1-ojo bloko aktyviojoje zonoje – $(2,8-3,4) \cdot 10^{13}$ n/(cm²·s). Skaičiavimuose naudotas $3 \cdot 10^{13}$ n/(cm²·s) srautas, darant prielaidą, kad kuro kanalas nenutrūksta apšvitinamas 20 metų. Tirta cirkonio-niobio lydinio indukuoto aktyvumo kitimas sustabdžius reaktorių ir aktyvumo priklausomybė nuo priemaišų koncentracijos. Straipsnyje išskirti šie pagrindiniai radionuklidai: ³H, ¹⁴C, ⁴¹Ca, ⁵⁵Fe, ⁶⁰Co, ⁵⁹Ni, ⁶³Ni, ⁹³Zr, ^{93m}Nb ir ⁹⁴Nb. Sustabdžius reaktorių beveik visą aktyvumą (daugiau kaip 90%) lemia ⁶⁰Co, kurio aktyvumas po 40 metų susilygina su ⁹⁴Nb ir vėliau ⁹⁴Nb sudaro didžiausią bendrojo aktyvumo dalį. ³H aktyvumas taip pat ženkliai mažėja per tiriamą 150 m. laikotarpį. Kitų radionuklidų aktyvumas bendrajam aktyvumui per 150 m. laikotarpį įtakos beveik neturi. Ignalinos AE ir Černobylio AE zirkonio-niobio lydinio aktyvacijos skaičiavimų rezultatai skiriasi nedaug. Didelis skirtumas (10^5 kartų) yra tik ³H. Tai aiškinama skirtingų kompiuterinių programų ir branduolinių reakcijų skerspjuvių duomenų bibliotekų naudojimu skaičiuojant neutroninę aktyvaciją. Straipsnyje parodyta, kad indukuoto aktyvumo lygis labai priklauso nuo cheminės medžiagos sudėties. Tai ypač pasireiškia per pirmuosius 75 metus po reaktoriaus sustabdymo. Tuo metu beveik visą bendrąjį aktyvumą sudaro aktyvuotos priemaišos. Pažymėta, kad tikslesniam reaktoriaus konstrukcijų medžiagų aktyvacijos įvertinimui reikėtų sukurti trimatį reaktoriaus modelį ir atitinkamomis kompiuterinėmis programomis apskaičiuoti neutronų srauto pasiskirstymą bei energijų spektrą.

Straipsnyje [16] autoriai (LEI) pateikė Ignalinos AE reaktoriaus atraminių ir apsauginių plieno plokščių aktyvacijos vertinimo rezultatus. Vertinimui naudoti tie patys metodai, kaip ir prieš tai aptartame straipsnyje. Ignalinos AE

plieno cheminė sudėtis nėra tiksliai žinoma, todėl naudoti [5, 17] pateikti duomenys. Aktyvacija modeliuota didžiausioms ir mažiausioms priemaišų koncentracijų vertėms. Plieno sudėtyje yra As, C, Co, Cr, Cu, Mn, Ni, P, S, Si priemaišų. Skaičiavimai atlikti naudojant SCALE programinio paketo programą ORIGEN-S. Aktyvacijos vertinimui imti eksperimentinių neutronų srauto matavimų duomenys. Skaičiavimams naudotas neutronų srautas $6 \cdot 10^{13}$ n/(cm²·s) apsauginėse plokštėse ir $9 \cdot 10^{13}$ n/(cm²·s) atraminėse plokštėse. Pagrindiniais radionuklidais įvardyti ³H, ¹⁴C, ³⁶Cl, ⁵⁵Fe, ⁶⁰Co, ⁵⁹Ni, ⁶³Ni. Skaičiuojant aktyvaciją didžiausioms priemaišų koncentracijoms, pirmuosius 25 metus didžiausi savitieji aktyvumai yra ⁵⁵Fe ir ⁶⁰Co, 20-40 metų laikotarpyje ⁵⁵Fe, ⁶⁰Co ir ⁶³Ni, o vėliau dominuoja ⁶³Ni. Esant mažiausioms priemaišų koncentracijoms, pirmuosius 60 metų aktyvumą lemia ⁵⁵Fe, 60-90 metų laikotarpiu - ¹⁴C, ⁵⁵Fe ir ⁶⁰Co, o vėliau dominuoja ¹⁴C.

Branduoliniame kure ir neutronų srauto aktyvuotose reaktoriaus konstrukcijose susidarę radionuklidai patenka į priverstinės cirkuliacijos kontūrą, per kurį išplitę, užteršia įrangą ir medžiagas bei sudaro radioaktyvias atliekas. Radionuklidinę sudėtį labai įtakoja skirtingos patekimo iš branduolinio kuro ar reaktoriaus konstrukcijų spartos. Straipsnyje [18] autoriai (Fizikos institutas) pateikė rezultatus darbo, kurio tikslas buvo eksperimentiškai nustatyti dalijimosi produktų savituosius aktyvumus RBMK-1500 aušale ir palyginus su suskaičiuotais atsižvelgiant į atitinkamo kuro išdegimo ir reaktoriaus galios kitimo istoriją, įvertinti dalijimosi produktų išėjimą į aušalą iš nehermetiškų kuro elementų. Nehermetiškos kuro kasetės Ignalinos AE nustatomos nuolat matuojant garų-vandens mišinio aktyvumą. Jei aušale aptinkami ¹³¹I, ¹³³I, ¹³⁵I ir rečiau ¹³²I ir ¹³⁴I izotopai, tai kuro elemento apvalkalas turi defektų. Nehermetiška kasetė iškraunama iš reaktoriaus, dedama į saugojimo dėklą, kuris užpildomas chemiškai išvalytu vandeniu ir talpinamas į saugojimo baseiną. Radionuklidų išėjimą į tarpelį tarp kuro ir apvalkalo įtakoja šiluminė difuzija ir urano dalijimosi skeveldrų atatranka ir dalijimosi produktų atomų išmušimas iš gardelės [19]. Dalijimosi skeveldrų atatranka ir dalijimosi produktų atomų išmušimas iš gardelės yra paviršiniai

procesai, kuriuos lemia dalijimosi reakcijos intensyvumas kure [19, 20]. Veikiant reaktoriui kuro temperatūra yra 700-1400 °C (priklausomai nuo kuro tipo, darbo sąlygų, strypo galios, ir kt.) ir vyrauja difuzijos procesas dalijimosi produktams iš urano dioksido patenkant į tarpelį tarp kuro ir kuro elemento apvalkalo. Dalijimosi produktų tirpūs junginiai (pvz., cezio jodidas) nusėda ant kuro tabletės ir vidinio apvalkalo sienelės. O jei apvalkalas turi defektų, tai dalijimosi produktai patenka ir į aušalą. Savitasis dalijimosi produktų aktyvumas aušale priklauso nuo kuro elementų defektų pobūdžio, reaktoriaus galios istorijos, kuro išdegimo ir aušalo valymo sistemos [21, 22]. Išėmus kuro kasetę iš reaktoriaus difuzijos procesas nežymus, nes šiluminiai gradientai yra nedideli. Kadangi nevyksta urano dalijimasis, nevyksta ir radionuklidų išėiga iš kuro tabletės ir antruoju būdu (atatranka ir išmušimas ir kuro matricos). Santykinė radionuklidų išėigos sparta įvertinama lyginant radionuklidų aktyvumų santykius su ^{137}Cs arba ^{60}Co . Palyginami eksperimentiškai nustatyti aušale aktyvumų santykiai su suskaičiuotais vertinant kuro išdegimą. Saugant nehermetišką kurą dėkluose, galima daryti prielaidą, kad dalijimosi produktų koncentracija dėklo vandenyje yra pusiausvyroje su kuro-apvalkalo tarpelyje esančia koncentracija. Šią prielaidą galima taikyti ilgąamžiams ^{55}Fe , ^{60}Co , ^{63}Ni , ^{90}Sr , ^{94}Nb , ^{99}Tc , ^{129}I , $^{134,137}\text{Cs}$, $^{238,239,240,241}\text{Pu}$, ^{241}Am , taip pat ir trumpaamžiams $^{131,133}\text{I}$. Kuro izotopinės sudėties modeliavimas atliktas SCALE 5 programų paketo T-DEPL ir ORIGEN-ARP programomis. T-DEPL skirta dvidimensiniam neutronų srauto pasiskirstymui skaičiuoti. ORIGEN-ARP programa skaičiuoja izotopinę sudėtį naudojant ORIGEN-S lygtį ir neutronų efektingus skerspjūvius parengtus pagal RBMK duomenų bibliotekas. ORIGEN-ARP aktinoidus skaičiuoja kiek didesnės energijos neutronų spektrui, ir tai lemia 10-20% paklaidą. Vykdamas skaičiavimus autoriai atsižvelgė į nehermetinės kuro rinklės apšvitos istoriją. Eksperimentiniai duomenys gauti matuojant vandens bandinius iš saugojimo dėklų. Matavimo paklaida 20% γ ir 50% α , β spinduoliams. Matavimai atlikti po 3-7 dienų po kasetės ištraukimo iš reaktoriaus. Tai leido išmatuoti $^{131,133}\text{I}$ ir ^{239}Np . Rinklei ataušus, radionuklidų migracija faktiškai sustoja. Ši prielaida leido vertinti

radionuklidų sklaidą netiesioginiu metodu. Kadangi trūksta duomenų apie kuro apvalkalo defektus, tai įvertinti bendrą iš kuro elemento pasklidusių radonuklidų aktyvumą sudėtinga. Palyginti suskaičiuoti dalijimosi produktų ir aktinoidų santykiai su ^{137}Cs ir gauti iš eksperimentinių matavimų. Aktyvacijos produktų išėjimui vertinti naudoti santykiai su ^{60}Co . Eksperimentiškai išmatuotas ir sumodeliuotas $^{134}\text{Cs} / ^{137}\text{Cs}$ santykis yra toks pats. Tai patvirtina, kad Cs izotopų išėjimo greitis yra vienodas. Aktyvacijos produktų išėjimo greitis į vandenį yra: ^{60}Co 5-50 kartų didesnis nei ^{137}Cs , ^{94}Nb - 7, ^{55}Fe ir ^{63}Ni - 16-114, nes iš apvalkalo trumpesnis difuzijos kelias nei iš kuro matricos. Dalijimosi produktams ir aktinidams išėjimo greitis į vandenį žymiai mažesnis, nei ^{137}Cs : ^{90}Sr ir ^{99}Tc 10^3 - 10^4 kartų, ^{241}Am - 10^4 , Pu izotopams – 10^5 . ^{239}Np išėjimo greitis yra 200 ir 40 kartų didesnis, nei Pu ir Am. Aktinoidai migruoja į vandenį nuo kuro tabletės paviršiaus. ^{239}Np susidaro dėl rezonansinių neutronų pagavos ^{238}U izotopo. Jodo izotopų išėjimo greitis panašus kaip Cs. Nustatyta, kad ^{55}Fe ir ^{63}Ni išėjimo greitis tos pačios eilės kaip ^{60}Co . ^{94}Nb matuojuose dviejų kasečių bandiniuose gauti 18 kartų besiskiriantys rezultatai. Todėl reikia daugiau tyrimų, norint vertinti Nb išėjimo greitį.

Straipsnyje [23] autoriai (Fizikos institutas) pateikė jodo išėjimo greičio iš kuro-apvalkalo tarpelio įvertinimą. Vertinant dalijimosi produktų išėigą į aušalą naudotasi CANDU reaktoriui [22] taikyta metodika. Todėl būtina įsitikinti, ar RBMK reaktoriui pusiausvyra tarp aušalo ir kuro-apvalkalo tarpelio pasiekama. Kadangi RBMK reaktoriuje identifikuotos nehermetiškos kasetės pakeičiamos, o laboratoriniai aušalo ėminių tyrimai, aptikus nehermetišką kasetę, atliekami per 10 valandų, prieš taikant modelį buvo palyginta kiek skirtusi jodo izotopų aktyvumai nuo verčių, kurios būtų esant pusiausvyrai tarp tarpelio ir aušalo. Gauti rezultatai parodė, kad tinka CANDU reaktoriui taikyta metodika, tačiau reikia naudoti korekcinius daugiklius, nes jodo izotopų aktyvumas priverstinės cirkuliacijos kontūro vandenyje nėra pusiausvyroje su aktyvumu kuro-apvalkalo tarpelyje. Korekciniai daugikliai leidžia įvertinti jodo izotopų aktyvumą, jei pusiausvyra būtų pasiekta. Nustatyta, kad ^{131}I pusiausvyra pasiekama per 20 dienų, o kitiems,

trumpaamžiškesniems jodo izotopams, - greičiau. Pritaikius korekcinius daugiklius matematinis modelis priderintas prie matavimų duomenų. Gauti išėjimo greičio iš tarpelio koeficientai ir difuzijos koeficientai kiekvienu kuro elemento apvalkalo trūkio atveju.

Pasinaudojant sukurtu metodu, autoriai (Fizikos institutas) straipsnyje [24] vertina ^{129}I koncentraciją kuro-apvalkalo tarpelyje ir priverstinės cirkuliacijos kontūro vandenyje. Gautus rezultatus sulyginus su CANDU reaktoriaus, nustatyta, kad išėjimo iš tarpelio greičio koeficientas ir difuzijos koeficientai panašūs $1,2 \cdot 10^{-9} \text{ s}^{-1}$ (RBMK-1500) ir $6,8 \cdot 10^{-10}$ (CANDU). Taikant sukurtą modelį įvertinti ^{129}I , ^{131}I ir ^{137}Cs aktyvumai aušale, ir jodo izotopų santykiai su ^{137}Cs palyginti su eksperimentiškai išmatuotais. Reaktoriaus eksploatavimo metu išmatuotas ^{137}Cs ir ^{131}I aktyvumų santykis yra didesnis nei apskaičiuotas. Tai gali lemti dujinės būsenos dalijimosi produktų patekimas į aušalą per nedidelius apvalkalo defektus. Tuomet dalis ^{131}I suskyla kol patenka į aušalą. Remiantis nustatytu ^{129}I ir ^{137}Cs aktyvumų santykiu kuro-apvalkalo tarpelyje, įvertintas ^{129}I savitasis aktyvumas aušale.

Straipsniuose [25, 26] autoriai (LEI) pateikė preliminarius priverstinės cirkuliacijos kontūro įrangos taršos vertinimų rezultatus. LLWAA-DECOM kompiuterine programa buvo įvertintas paviršinis nuosėdų ant vidinio kontūro įrangos paviršiaus bei aušalo tūrinis aktyvumas. Paviršinis aktyvumas skaičiuotas vertinant aušale esančių netirpių radionuklidų junginių nusėdimą bei išplovimą ir radionuklidų skilimą. Dalijimosi produktų, aktinoidų ir aktyvacijos produktų aktyvumas įvertintas ORIGEN programa. Atsižvelgiama ir į urano, patekusio ant šilumą išskiriančių elementų apvalkalo jų gamybos metu, įtaką. Įvertinta, kad didžiausią aktyvumą aušale sudaro ^{134}Cs ir ^{137}Cs – atitinkamai 31% ir 22%. Tačiau nuosėdose didžiausias aktyvumas reaktoriaus sustabdymo metu yra ^{55}Fe (47% – 57%), ^{60}Co (10% - 19%), ^{54}Mn (8% - 15%), ^{59}Fe (4% - 19%), nors aušale jų aktyvumai atitinkamai sudaro 16%, 3%, 6% ir 17%. Tai lemia tirpumo savybių skirtumai. Tačiau laikui bėgant radionuklidinė sudėtis keičiasi ir po 20 metų didžiausią aktyvumą turi ^{63}Ni . Padidėja ir kitų ilgaamžių radionuklidų įtaka.

Poskyrio išvados

Literatūros šaltiniuose pateikiami kompiuterinėmis programomis įvertinti radiologinių RBMK reaktoriaus tyrimų rezultatai. Modeliuojant įvertinta panaudoto kuro ir aktyvuojamų konstrukcijų nuklidinė sudėtis. Naudojant RBMK reaktoriui pritaikytas neutronų pagavos skerspjūvių bibliotekas, preliminariai įvertinti RBMK-1500 reaktoriaus grafitas ir metalinės reaktoriaus konstrukcinės dalys. Taip pat yra preliminarių priverstinės cirkuliacijos kontūro aušalo ir įrangos radiologinės taršos vertinimų. Tačiau skaičiavimų rezultatai priklauso nuo reaktoriaus konstrukcinėse medžiagose esančių priemaišų koncentracijų, apie kurias duomenys skirtinguose šaltiniuose skiriasi, neutronų srauto pasiskirstymo ir kitų duomenų, pvz., neutronų efektinių pagavos skerspjūvio bibliotekų. Todėl charakterizuojant atliekas būtina remtis ne tik skaičiavimų, bet ir eksperimentiniais duomenimis. Eksperimentiškai nustatytų RBMK reaktoriaus radioaktyviųjų atliekų ar įrangos duomenų nėra. Todėl RBMK-1500 radiologinio charakterizavimo darbus reikia tęsti ir eksperimentiniais metodais įvertinti radioaktyviųjų atliekų savybes. Būtina charakterizuoti aktyvuotas reaktoriaus konstrukcijas ir atliekas susidarančias AE skystųjų ir dujinių radioaktyviųjų atliekų tvarkymo sistemose bei kietąsias atliekas užterštas dėl skysčių ar dujų sąlyčio su kietosiomis medžiagomis.

1.3 Radioaktyviųjų atliekų charakterizavimas

1.3.1 Radioaktyviųjų atliekų tvarkymo saugos požiūriu svarbūs radionuklidai

Siekiant tinkamai tvarkyti atliekas, būtina įvertinti radioaktyviųjų atliekų skleidžiamos jonizuojančios spinduliuotės poveikį žmonėms ir aplinkai. Todėl reikia iširti jose esančių radionuklidų koncentracijas. Ši informacija svarbi ruošiantis projektuoti radioaktyviųjų atliekų kapinynus ir nustatant atliekų priimtumo kriterijus, taip pat norint kontroliuoti atliekų atitikimą

priimtino kriterijams. Tie radionuklidai, kurių koncentracijas būtina įvertinti, įtraukiami į reikšmingųjų radionuklidų sąrašą ir jų koncentracijas reikia deklaruoti perduodant atliekas laidoti. Anksčiau, prieš pora dešimtmečių, buvo reikalaujama deklaruoti tik bendrąjį β/γ ir bendrąją α aktyvumą atliekose bei keletą kitų nuklidų, pvz., ^3H , ^{226}Ra , ^{232}Th , o dabar kai kuriose šalyse deklaruojama iki 150 radionuklidų [27].

Deklaruojamų radionuklidų sąrašas paprastai sudaromas remiantis atliekų gamintojų pateikiamais duomenimis ir įvertinant atliekų laidojimo saugą. Pvz., Vokietijoje, vertinant Konrado kapinyno saugą, buvo išnagrinėtas 156 radionuklidų sąrašas.

Atlikus penkis saugos įvertinimus 108 radionuklidams [28] vertinti ribiniai aktyvumai:

1. Kapinyno eksploatavimo etapo įvertinimas. Remiantis nustatytais higienos normomis, nustatoma gyventojų ir darbuotojų apšvita įvertinant tiesioginę apšvitą bei apšvitą dėl dujinių ir skystų medžiagų išmetimų.
2. Avarijų analizė. Remiantis nustatytais higienos normomis, įvertinama galimų incidentų eksploatuojant kapinyną sukelta apšvita.
3. Šiluminio poveikio kapinynui įvertinimas. Nustatomas šiluminis poveikis kapinynui dėl šilumos, išsiskiriančios skylant radionuklidams. Laidojimo patalpos sienos temperatūra neturi padidėti daugiau kaip 3 K.
4. Kritiškumo įvertinimas. Vertinamas ^{233}U , ^{235}U , ^{239}Pu , ^{241}Pu kritiškumas tiek eksploatuojant kapinyną, tiek jį uždarius.
5. Ilgalaikis saugos įvertinimas uždarius kapinyną. Išskirti 10 radionuklidų.

Iki 1985 m. svarbiais radionuklidais Vokietijoje buvo ^{60}Co ir ^{137}Cs . Tačiau 1985 m., patvirtinus priimtino laidoti atliekas Konrado kapinyne kriterijus, buvo parengtas reikšmingųjų radionuklidų sąrašas (1.3.1.1. lentelė). Prancūzijos radioaktyviųjų atliekų laidojimu užsiimanti organizacija ANDRA

patvirtino dar ilgesnį, 143 radionuklidų, sąrašą bei jų aktyvumo vertes, kurias viršijus reikia deklaruoti radionuklido savitąjį aktyvumą atliekose [30].

1.3.1.1. lentelė. Deklaruojami radionuklidai Vokietijoje [29].

²²⁷ Ac	²⁴ Cm	^{166m} Ho	²³⁸ Pu	¹²⁶ Sn
²²⁸ Ac	²⁴⁵ Cm	¹²⁵ I	²³⁹ Pu	⁹⁰ Sr
^{108m} Ag	²⁴⁶ Cm	¹²⁹ I	²⁴⁰ Pu	⁹⁹ Tc
^{110m} Ag	²⁴⁷ Cm	⁴⁰ K	²⁴¹ Pu	²²⁸ Th
^{242m} Am	²⁴⁸ Cm	⁵⁴ Mn	²⁴² Pu	²²⁹ Th
³⁹ Ar	²⁵⁰ Cm	⁹³ Mo	²⁴⁴ Pu	²³⁰ Th
¹⁰ Be	⁵⁸ Co	²² Na	²⁴⁴ Ra	²³² Th
¹⁴ C	⁶⁰ Co	⁹⁴ Nb	²²⁶ Ra	²³² U
⁴¹ Ca	¹³⁴ Cs	⁹⁵ Nb	²²⁸ Ra	²³³ U
^{113m} Cd	¹³⁵ Cs	⁵⁹ Ni	⁸⁷ Rb	²³⁴ U
¹⁴¹ Ce	¹³⁷ Cs	⁶³ Ni	¹⁰³ Ru	²³⁵ U
³⁶ Cl	¹⁵² Eu	²³⁶ Np	¹⁰⁶ Ru	²³⁸ U
²⁴⁹ Cf	¹⁵⁴ Eu	²³⁷ Np	¹²⁴ Sb	⁶⁵ Zn
²⁵¹ Cf	⁵⁵ Fe	²³¹ Pa	¹²⁵ Sb	⁹³ Zr
²⁵² Cf	⁵⁹ Fe	²¹⁰ Pb	⁷⁹ Se	⁹⁵ Zr
²⁵⁴ Cf	³ H	¹⁰⁷ Pd	¹⁵¹ Sm	

Vieningos metodikos, kaip atrinkti reikšmingus radionuklidus, nėra. Kapinyno saugos įvertinimui reikšmingų radionuklidų identifikavimas yra pasikartojantis procesas. Pirmiausia radionuklidai atrenkami remiantis duomenimis apie jų savybes (kiekį, skiedimosi greitį, pusėjimo trukmę ir pan.), po to atliekami preliminarūs identifikuotų radionuklidų sklaidos vertinimai. Vėliau, remiantis duomenimis bei skaičiavimų rezultatais, saugos vertinimui reikšmingųjų radionuklidų sąrašas peržiūrimas ir patikslinamas [31]. Siekiant išvengti galimo poveikio žmonėms ir aplinkai, šių radionuklidų aktyvumas, kurį galima laidoti kapinyne, turi būti ribojamas. Nustatytos svarbių radionuklidų aktyvumų ribos yra atliekų priimtimumo laidoti reikalavimų dalis.

Švedijos branduolinio kuro ir atliekų tvarkymo kompanija SKB kapinyno saugos vertinimui reikšmingus radionuklidus identifikuoja pagal radionuklidų

radiotoksiškumą. Radiotoksiškumas yra radionuklido aktyvumo kapinyne ir dozės koeficiento prarijus radionuklidą sandauga. Radiotoksiškumas skaičiuojamas visam kapinyno saugos vertinimo laikotarpiui. Jei radionuklido radiotoksiškumas bet kuriuo metu viršija 0,1% bendrojo visų dalijimosi ir aktyvacijos produktų radiotoksiškumo, toks radionuklidas įvardijamas reikšmingu. Aktinoidams ir jų dukteriniams radionuklidams $4N$, $4N+1$, $4N+2$ ir $4N+3$ skilimo grandinėlės yra įvardijamos kaip kapinyno saugos vertinimui reikšmingų radionuklidų skilimo grandinėlės. Išsamūs dukterinių radionuklidų, kurių pusėjimo trukmė gerokai trumpesnė nei motininio, sklaidos vertinimai neatliekami. Daroma prielaida, kad jie yra pusiausvyroje su motininiais radionuklidais. Jų dozės koeficientas pridamas prie motininio radionuklido dozės koeficiento [31].

Šveicarijos radioaktyviųjų atliekų laidojimo kompanijos NAGRA naudojamose metodikoje numatyta, jog reikšmingi saugai radionuklidai identifikuojami pagal jų sąlygojamą dozės galią vartojant užteršto vandeningo horizonto vandenį, įvertinant visiško radionuklidų sulaikymo periodą, vidutinę radionuklidų srauto iš artimo lauko zonos trukmę bei skiedimąsi vandeningame horizonte. Visi radionuklidai, kurių sąlygojamos apšvitos dozės galia yra didesnė nei $1 \cdot 10^{-5}$ mSv/metus, laikomi reikšmingai kapinyno saugos vertinimui. Be to, rekomenduojama į reikšmingų radionuklidų sąrašą taip pat įtraukti ^3H , ^{90}Sr ir ^{137}Cs . Jie gali indikuoti anksti prasidėjusius sklaidos procesus dėl, pvz., radionuklidų sklaidos pro laidojimo konteinerį esantį defektą [31, 32].

Pagal Japonijos branduolinio ciklo vystymo instituto JNC metodiką reikšmingi saugai radionuklidai identifikuojami atsižvelgiant į jų pusėjimo trukmę ir kriterijų, susijusį su didžiausia leistina radionuklidų koncentracija geriamame vandenyje. Vertinant daromos šios prielaidos: didelio aktyvumo atliekų matricos irimas (tirpimas) nevyks 10^3 metų, todėl vandenyje ištirę radionuklidai iškart pateks į vandeningą horizontą, esantį netoli žemės paviršiaus, o šis vanduo naudojamas gėrimui. Radionuklidai, kurių koncentracijos šulinio vandenyje santykis su didžiausia leistina koncentracija

didesnis nei 10^{-3} , laikomi reikšmingais. Dukteriniams radionuklidams, kurių pusėjimo trukmė trumpesnė nei vieneri metai, išsamūs sklaidos įvertinimai neatliekami laikantis prielaidos, kad egzistuoja dukterinių radionuklidų ir jų motininų radionuklidų pusiausvyra. Sklaidos vertinimai biosferoje atliekami įvardintiems reikšmingiems radionuklidams ir dukteriniams radionuklidams, kurių pusėjimo trukmė ilgesnė nei 25 dienos [31].

Priimtino laidoti reikalavimuose atliekoms minimų radionuklidų skaičius ir sąrašas įvairiose šalyse skiriasi, nes skiriasi laidojimo koncepcijos, aikštelės savybės bei susidarančių atliekų sudėtis, tačiau yra tokių radionuklidų, kurie reikšmingais įvardinti daugumoje šalių.

Į deklaruojamų radionuklidų sąrašus nepatekę radionuklidai nėra pamirštami. Siekiant tiksliau charakterizuoti atliekas ir įvertinti galimą radiologinį poveikį, gali būti atliekami tyrimai ir nustatytos tokių radionuklidų koncentracijos atliekose. Pvz., 2000 m. JAV buvo tiriamos ^{10}Be , ^{36}Cl , ^{93}Mo , $^{93\text{m}}\text{Nb}$, $^{108\text{m}}\text{Ag}$, $^{113\text{m}}\text{Cd}$ ir $^{121\text{m}}\text{Sn}$ koncentracijos aktyvuotuose metaluose ir panaudotose jonų mainų dervose, naudotose reaktoriaus aušalui valyti suslėgto lengvojo vandens (PWR – angl. Pressurized Water Reactor) ir verdančio vandens (BWR – angl. Boiling Water Reactor) tipų reaktoriams [43]. Šių tyrimų išvadose rekomenduojama toliau tirti ^{10}Be , ^{36}Cl ir $^{108\text{m}}\text{Ag}$ koncentracijas radioaktyviosiose atliekose ir galimą jų radiologinį poveikį, nors atliktų tyrimų nustatytos šių radionuklidų koncentracijos nesudarė pagrindo keisti atliekų priimtino kriterijus. Švedijoje taip pat ištirtos ^{36}Cl ir ^{93}Mo koncentracijos [44]. Atliekant kapinynų saugos įvertinimus, ^{36}Cl dažnai įvardijamas kaip svarbus dėl jo cheminių savybių – ^{36}Cl silpnai sulaikomas natūralių, geologinių, barjerų. Dar svarbesnis ^{36}Cl grafitinių reaktorių atliekoms. Jungtinėje Karalystėje [45] radioaktyviosiose atliekose ^{36}Cl grafitui tenka 51% ^{36}Cl inventoriaus. Prancūzijoje [46] ^{36}Cl , greta ^3H , ^{14}C , ^{63}Ni ir ^{60}Co , laikomas vienu iš svarbiausių grafito susidarančių radionuklidų.

1.3.1.2. lentelė. Priimtino laidojimui kriterijuose minimi deklaruojamieji radionuklidai¹

Šalis Nuklidai	Belgija [33]	Suomija [34]	Švedija [34]	Ispanija [35]	Čekija [36]	JAV [37]	Kanada [38]	Slovakija [39]	Japonija [40]	Vokietija [28,41]	Prancūzija [30]	Lietuva [42]
³ H	+	-	+	+	-	+	+	-	+	+	+	+
¹⁴ C	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+
³⁶ Cl	+	-	-	-	-	-	+	-	-	+	+	+
⁴¹ Ca	-	-	-	-	-	-	-	+	-	+	+	-
⁵⁵ Fe	-	-	+	-	-	-	-	-	-	+	+	+
⁶⁰ Co	-	+	+	+	-	+	+	-	+	+	+	-
⁵⁹ Ni	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+
⁶³ Ni	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+
⁷⁹ Se	-	-	-	-	-	-	+	+	-	+	+	-
⁹⁰ Sr	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+
⁹³ Mo	-	-	-	-	-	-	-	+	-	+	+	-
⁹³ Zr	-	-	-	-	-	-	+	+	-	+	+	-
⁹⁴ Nb	+	-	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+
⁹⁹ Tc	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+
¹⁰⁶ Ru	-	-	+	-	-	-	-	-	-	+	+	-
¹⁰⁷ Pd	-	-	-	-	-	-	-	+	-	+	+	-
^{108m} Ag	-	-	-	-	-	-	+	-	-	+	+	-
¹²⁶ Sn	-	-	-	-	-	-	+	+	-	+	+	-
¹²⁹ I	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+
¹³⁴ Cs	-	-	+	-	-	-	-	-	-	+	+	-
¹³⁵ Cs	-	+	+	-	-	-	+	+	-	+	+	-
¹³⁷ Cs	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+	+
¹⁵¹ Sm	-	-	-	-	-	-	+	+	-	+	+	-
²²⁶ Ra	+	-	-	-	-	-	-	-	•	+	+	+
²³³ U	-	-	-	-	-	-	+	-	•	+	+	-
²³⁴ U	+	-	-	-	-	-	+	-	•	+	+	+
²³⁵ U	+	-	-	-	-	•	+	-	•	+	+	+
²³⁶ U	-	-	-	-	-	•	+	-	•	+	+	-
²³⁸ U	+	-	-	-	-	•	+	-	•	+	+	+
²³⁷ Np	+	-	-	-	-	•	+	-	•	+	+	+
²³⁸ Pu	+	+	+	+	-	•	-	+	•	+	+	+
²³⁹ Pu	+	+	+	+	+	•	+	+	•	+	+	+
²⁴⁰ Pu	+	+	+	-	-	•	+	-	•	+	+	+
²⁴¹ Pu	+	-	+	+	-	+	+	-	-	+	+	+
²⁴² Pu	-	-	-	-	-	-	+	-	•	+	+	-
²⁴¹ Am	+	-	+	-	+	•	+	+	•	-	+	+
²⁴³ Am	-	-	-	-	-	•	+	-	•	-	+	-
²⁴² Cm	-	-	-	-	-	+	-	-	•	-	-	-
²⁴³ Cm	-	+	-	-	-	•	-	-	•	-	+	-
²⁴⁴ Cm	-	+	+	+	-	•	-	-	•	-	+	-
Bend. akt.	-	-	-	+	-	+	-	-	+	-	+	-

¹ + radionuklidai esantys priimtino laidojimui reikalavimų sąrašė, - radionuklidai nesantys sąrašė, • radionuklidai nesantys sąrašė, tačiau yra ribojamas bendrasis α spindulių aktyvumas, +* radionuklidai, kurių ribojamas bendrasis aktyvumas su kitu radionuklidu, pvz.: ²³⁹Pu ir ²⁴⁰Pu

1.3.2 Sunkiai matuojamų radionuklidų koncentracijų nustatymas

Ne visus reikšmingus radionuklidus paprasta išmatuoti, nes jų aktyvumas yra labai mažas ir gali būti mažesnis už matavimo prietaisų aptikimo ribą. Taip pat ne visų radionuklidų aktyvumą įmanoma nustatyti atliekų pakuotės išorėje, netaikant destruktivių ėminių paėmimo metodų ir radiocheminės analizės. Todėl taikomi metodai, pagal kuriuos nuklidinė sudėtis radioaktyviųjų atliekų srautui nustatoma netiesiogiai. Vieningo metodo, kaip nustatyti šių radionuklidų koncentracijas atliekose, nėra ir kiekviena šalis pati sprendžia, kaip jas įvertinti. Tačiau toks įvertinimas dažnai pagrįstas statistine koreliacija – proporcingumo daugikliais – tarp sunkiai ir lengvai matuojamų radionuklidų, tokių kaip ^{60}Co ar ^{137}Cs . Įvairios šalys nepriklausomai vertino savo AE atliekoms būdingus proporcingumo daugiklius. Nemažai duomenų sukauptė Vokietija, Japonija, Prancūzija ir JAV. Jų gauti proporcingumo daugikliai buvo panašūs, todėl dabar siekiama apibendrinti šių šalių sukauptą patirtį [47].

Radioaktyviosios atliekos visose šalyse charakterizuojamos panašiais būdais. Pvz., Švedijoje kiekviena laidojimui skirta atliekų pakuotė matuojama γ -spektrometrais ir kartais tiriami reprezentatyvūs panaudotų jonų mainų dervų ėminiai. Sunkiai matuojamiems radionuklidams taikomi proporcingumo daugikliai, gauti ištyrus reaktoriaus aušalą. Nustatant radionuklidų aktyvumus panaudotose dervose, įvertinami reaktoriaus aušalo, panaudoto kuro saugojimo baseino ar kondensato vandenyje, aktyvumai priklausomai nuo to, koks vanduo buvo valomas dervomis. Kietosioms atliekoms ^{90}Sr ir transuranių nuklidų proporcingumo daugiklis nustatomas pagal ^{60}Co , ^{55}Fe , ^{59}Ni , ^{63}Ni ir ^{14}C pagal suskaičiuotą santykį su ^{60}Co , o ^{99}Tc ir ^{129}I – pagal proporcingumo daugiklį su ^{137}Cs [48]. Japonijos Rokašo kapinyne laidojamoms atliekoms turi būti nustatytas 11 radionuklidų savitasis aktyvumas. ^{60}Co ir ^{137}Cs savitasis aktyvumas nustatomas juos tiesiogiai matuojant. ^{14}C , ^{63}Ni , ^{90}Sr , ^{94}Nb , ^{99}Tc (nevienalytėse atliekose) ^{129}I ir bendrasis α aktyvumas nustatomi radiocheminės analizės būdu. ^3H , ^{14}C (BWR tipo reaktoriui), ^{99}Tc (vienalytėse atliekose) nustatomi atlikus radiocheminę analizę ir įvertinus vidutinę

koncentraciją atliekų srautui. ^{59}Ni nustatomas iš kuro išdegimo skaičiavimų. ^{60}Co yra atraminis nuklidas įvertinant ^{14}C , ^{63}Ni , ^{94}Nb , ^{99}Tc aktyvumus, o ^{137}Cs yra atraminis nuklidas vertinant ^{90}Sr , ^{129}I ir bendrą α radionuklidų aktyvumus [40]

Pateikti pavyzdžiai rodo, kad stengiamasi pasirinkti metodus, leidžiančius eksperimentiškai nustatyti radioaktyviųjų atliekų nuklidinę sudėtį. Tačiau, dažniausiai tenka taikyti eksperimentinių rezultatų ir skaičiavimo rezultatų derinį [46, 49]. Apibendrinant pasaulyje taikomą praktiką galima išskirti keletą nuklidinės sudėties nustatymui taikomų metodų, kurie apžvelgiami šiame skyriuje.

Tiesioginio matavimo metodas - tai pats aiškiausias atskirų radionuklidų aktyvumo nustatymo metodas. Aktyvumas nustatomas tiesiogiai matuojant atliekas arba atliekų pakuotę. Nedestrukciniais metodais išmatuojami tik didelės energijos γ kvantų arba neutronų spinduliai, dėl to, kad dalį spinduliuotės sugeria pačios atliekos. Taikant destruktinius metodus ir atliekant radiocheminę analizę galima nustatyti bet kokią spinduliuotę, jei tik ji viršija aptikimo ribą.

Pusiau empiriniai atliekų charakterizavimo metodai

Praktikoje, charakterizuojant radioaktyvias atliekas paprastai taikomi netiesioginiai pusiau empiriniai metodai, naudojančys tiesioginio matavimo rezultatus radionuklidų savitųjų aktyvumų įvertinimui [27]. Galima išskirti tris metodus: reprezentatyvaus spektro, propocingumo daugiklių ir vidutinės koncentracijos.

Reprezentatyvaus spektro metodas

Paimamas reprezentatyvus atliekų srauto ėminys ir nustatomas atskirų radionuklidų savitasis aktyvumas. Radionuklidų savitųjų aktyvumų pasiskirstymas laikomas reprezentatyviu visam atliekų srautui. Nustatant atskirų radionuklidų savituosius aktyvumus pakuotėje daroma prielaida, kad savitieji radionuklidų aktyvumai yra tokie pat visam atliekų srautui ir lygūs kiekvienai pakuotei, arba matuojamas kiekvienos pakuotės bendras γ aktyvumas ir pritaikomas reprezentatyvus savitųjų aktyvumų pasiskirstymas.

Reprezentatyvaus spektro metodas taikomas vienodo atliekų tipo arba tos pačios galutinio atliekų apdorojimo kampanijos atliekoms. Atliekos turi būti vienalytės, kadangi paimami vienas arba tik keli ėminiai. Be to, taikant šį metodą neatsižvelgiama į skirtingą radionuklidų elgseną jiems susidarant ir jų pernašos į atliekas ypatumus [27].

Proporcingumo daugiklių metodas

Šis plačiai paplitęs metodas ne vieną dešimtį metų taikomas įvairiose šalyse nustatant sunkiai matuojamų radionuklidų aktyvumus [27, 29, 37, 38, 40, 44, 47-52]. 2007 m. šis metodas standartizuotas viename iš tarptautinių standartų [53]. Metodas remiasi tuo, kad iš to paties šaltinio kilusiems ir pasižymintiems panašiomis fizikinėmis-cheminėmis savybėmis radionuklidams, pernašos į atliekas metu, turi išlikti pastovus jų savitųjų aktyvumų santykis. Šis santykis nustatomas atliekant seką tiesioginių matavimų, taikant destruktinius metodus, ir suvidurkinus gautus rezultatus. Jei vienas iš radionuklidų lengvai matuojamas, tai kito radionuklido savitasis aktyvumas atliekose suskaičiuojamas taikant šį nustatytą santykį. Lengvai matuojami radionuklidai, pagal kurių aktyvumą skaičiuojami kitų radionuklidų aktyvumai, vadinami „atraminiais nuklidais“. Paprastai jais būna ^{60}Co ir ^{137}Cs radionuklidai. Šį metodą galima taikyti ir nevienalytėms atliekoms arba kelių atliekų tipų kombinacijai.

Matematiškai proporcingumo daugiklį galima išreikšti:

$$A_i = k_i A_a, \quad (1.3.2.1)$$

čia: A_a – atraminio nuklido aktyvumas, A_i – nustatomo nuklido aktyvumas, k_i – proporcingumo daugiklis.

1.3.2.1. lentelėje pateikti metodai nustatyti proporcingumo daugiklį. (1.3.2.1) formulėje pateikta konstantos a išraiška.

$$a = \frac{1}{n} \sum_j^n \frac{a_{ij}}{a_{aj}}, \quad (1.3.2.2)$$

čia n – matuotų ėminių skaičius, a_{ij} – išmatuotas nustatomo nuklido aktyvumas ėminyje j , a_{aj} - išmatuotas atraminio nuklido aktyvumas ėminyje j .

Kiek modifikuota proporcingumo daugiklio nustatymo išraiška - tiesinės regresijos metodas. Abiem atvejais laikoma, kad priklausomybė tarp tiriamų radionuklidų yra tiesinė. Tačiau ši prielaida sėkmingai taikytina tik ribotam skaičiui nustatomų radionuklidų ir netinka skirtingiems atliekų srautams. Kadangi tiesioginių matavimų rezultatų pasiskirstymas paprastai ne normalusis, o lognormalusis, tai nustatant proporcingumo daugiklį geriau tinka ne aritmetinis, o geometrinis vidurkis [27].

$$c = \sqrt[n]{\frac{a_{i1}}{a_{a1}} \times \dots \times \frac{a_{ij}}{a_{aj}} \times \dots \times \frac{a_{in}}{a_{an}}}, \quad (1.3.2.3)$$

Atitinkamai, geometrinio vidurkio metodo patobulinimas yra tiesinė logaritmų regresija. 1.3.2.1. lentelėje pateiktos galimo proporcingumo daugiklių nustatymo matematinės išraiškos. Paskutiniai du metodai patvirtinti tarptautiniame ISO standarte [53].

1.3.2.1. lentelė. Proporcinių daugiklių nustatymo metodai

Metodas	Matematinė išraiška	Pastabos
Proporcinių daugiklis	$A_i = aA_a$	a – konstanta
Tiesinė regresija	$A_i = a + bA_a$	a, b – konstantos
Geometrinis vidurkis	$A_i = cA_a$	c – konstanta
Tiesinė logaritmų regresija	$\ln(A_i) = c' + d \ln(A_a)$ $A_i = c(A_a)^d$	c, c', d – konstantos

Vidutinės koncentracijos sraute metodas

Specialūs metodai turėtų būti taikomi ^3H , kuris paprastai nekoreliuoja su atraminiais nuklidais. Vienas iš metodų yra vidutinio ^3H savitojo aktyvumo nustatymas įvairiuose atliekų srautuose. Truputį besiskiriantis nuo šio metodo yra ^3H savitojo aktyvumo nustatymas įvairiuose atliekų srautuose iš jo aktyvumo aušale, naudojant pernašos daugiklius tarp įvairių atliekų tvarkymo etapų (pvz., iš aušalo į valymo sistemą, skystų atliekų tvarkymo sistemoje) [27]. Panašūs metodai kartais taikomi ^{14}C ir ^{36}Cl .

Analitiniai metodai

Kai negalima pasinaudoti pusiau empiriniais metodais, nes nustatoma radionuklidą labai sudėtinga išmatuoti, taikomi analitiniai metodai [27]. Galima išskirti kuro išdegimo modeliavimo, aktyvacijos modeliavimo ir radionuklidų skilimo skaičiavimo metodus.

Kuro išdegimo modeliavimas

Jeigu radionuklido susidarymas priklauso nuo kuro išdegimo, tai jo aktyvumą galima suskaičiuoti naudojant kuro išdegimą modeliuojančias kompiuterines programas. Yra įvairios panaudoto branduolinio kuro charakteristikų modeliavimo programos pvz., BOXER, CASMO, WIMS, APOLLO, ORIGEN-S ir kt. [54]. ORIGEN-S programa dažniausiai taikyta modeliuojant Ignalinos AE kuro išdegimą [18, 54-56]. Oukridžo (JAV) Nacionalinės laboratorijos sukurto SCALE 5 programinio paketo ORIGEN-S programa [57, 58], vertina nuklidinę sudėtį, sprendama diferencialinių lygčių sistemą, pagal matricų eksponentinio skaidymo modelį [59]. Sprendžiama ši lygtis:

$$\frac{dN_i}{dt} = -\left(\lambda_i + \int \varphi(E,t)\sigma_i(E)dE\right)N_i + \sum_{j \neq i} \left[\lambda_{ji} + \int \varphi(E,t)\sigma_{ji}(E)dE\right]N_j, \quad (1.3.2.4)$$

čia N_i - i-ojo izotopo branduolių skaičius, λ_i ir λ_{ji} - skilimo konstantos, $\varphi(E,t)$ - E energijos neutronų srautas, $\sigma_i(E)$ - i-ojo izotopo neutronų sugerties skerspjūvis, $\sigma_{ji}(E)$ - j-ojo izotopo transmutacijos į i-ąjį neutronų skerspjūvis. Pirmasis lygties narys nusako i-ojo izotopo branduolių mažėjimą dėl branduolių skilimo ir neutronų sugerties reakcijų. Antras narys įvertina i-ojo izotopo susidarymą dėl kitų izotopų skilimo ir neutronų sugerties reakcijų. Programa naudoja kelias neutronų skerspjūvių duomenų bibliotekas [60].

Šios programos suskaičiuoja tik susidariusių radionuklidų aktyvumą, o jų pernašą į atliekas reikia nagrinėti atskirai. Tačiau, jeigu yra išmatuotų radionuklidų su panašiomis fizikinėmis-cheminėmis savybėmis kaip neišmatuotų, tai nematuojamo radionuklido aktyvumą galima nustatyti pagal modeliuojant kuro išdegimą gaunamą santykį. Matuojamo radionuklido

aktyvumas atliekose gali būti nustatytas tiek taikant tiesioginio matavimo, tiek pusiau empirinius metodus [27].

Aktyvacijos modeliavimas

Šis metodas analogiškas kuro išdegimo modeliavimo metodui. Čia taip pat skaičiuojamas dviejų radionuklidų, iš kurių vienas yra matuojamas susidarymas. Aktyvacijos modeliavimui taip pat naudojamos įvairios kompiuterinės programos. Galima naudoti tą pačią programą kaip ir kuro išdegimo modeliavimui. Ignalinos AE konstrukcijų aktyvacijai modeliuoti taikyta ORIGEN-S [9, 14, 16], grafito aktyvacijai vertinti – taip pat ir CINDER'90 programa. [8, 12, 13]. Černobylio AE 1-ojo bloko ir Leningrado AE 2-ojo ir 3-ojo blokų grafito ir reaktoriaus konstrukcijų aktyvacijai vertinti naudota CHAIN programa [5-7].

Skilimo skaičiavimas

Metodas, taikomas radionuklidų, kurie yra matuojamųjų radionuklidų dukteriniai produktai, aktyvumui įvertinti.

Ilgamžiu sunkiai matuojamų radionuklidų koncentracijų vertinimas taikant teorinius metodus

Charakterizuojant atliekas ^{129}I izotopas yra vienas iš ypač svarbių radionuklidų. Pagal 1.3.1.2 lentelėje pateiktus duomenis, jis įvardijamas kaip reikšmingas vertinant radioaktyviųjų atliekų laidojimo galimą poveikį žmonėms ir aplinkai visose nagrinėtose šalyse. Nors yra sukurtų metodikų išmatuoti ^{129}I koncentracijas, dažnai būna sudėtinga jas nustatyti dėl daug mažesnių koncentracijų, nei kitų sunkiai matuojamų radionuklidų. Todėl kuriami teoriniai metodai ^{129}I koncentracijoms įvertinti. Radioaktyviųjų atliekų proporcingumo daugikliai nustatomi pagal aktyvumą aušale naudojant korekcinius daugiklius. ^{129}I koncentraciją aušale galima įvertinti pagal trumpaamžių jodo izotopų ir ^{137}Cs aktyvumą [22]. Radionuklidų susidarymą ir skilimą kure aprašo balanso lygtis (1.3.2.5). Radionuklidų kiekį aušale aprašo (1.3.2.6) lygtis [24].

$$\frac{dN_t}{dt} = R_{dif} - (\lambda + \nu)N_t, \quad (1.3.2.5)$$

$$\frac{dN_a}{dt} = R_a^b - (\lambda + \beta)N_a, \quad (1.3.2.6)$$

čia R_{dif} - difuzijos koeficientas iš kuro matricos, ν - išėjimo iš tarpelio koeficientas, λ - skilimo konstanta, R_a^b - išėjimo į aušalą koeficientas, susidedantis iš išėjimo iš nehermetiškų rinklių ir natūralaus urano žymių ant šilumą išskiriančių elementų, β - aušalo valymo koeficientas tiesiogiai proporcingas valymo sistemoje vandens debito, valymo efektyvumo ir atvirkščiai proporcingas priverstinės cirkuliacijos kontūre esančio vandens masei. Trumpaamžių dalijimosi produktų, kurių koncentracijų pusiausvyra kuro elemento tarpelyje ir aušale greitai nusistovi, išėjimo greitį galima išreikšti:

$$\left(\frac{R}{y}\right)_a = \left(\frac{\nu}{\lambda + \nu}\right) \frac{A}{\sqrt{\lambda}} + c, \quad (1.3.2.7)$$

čia $A = x(3(D')^{1/2}F_t)$, o $c = (1/2)F_t$, kur x – nehermetiškų kuro elementų skaičius, F_t – dalijimosi sparta urano dalelėse patekusiose į aušalą (trump uranium), F_f – vidutinė dalijimosi sparta kuro elemente, y – dalijimosi reakcijos atskiram izotopui išeiiga [24].

Šios lygties aproksimuotos matuojamam nuklido aktyvumui aušale $A_c = \lambda N_c$ išraiška:

$$\left(\frac{R}{y}\right)_m = \left(\frac{\lambda + \beta}{\lambda}\right) \frac{A_a}{y}, \quad (1.3.2.8)$$

Darant prielaidą, kad difuzija iš kuro matricos pastovi $R_{dif} = \text{const}$, gaunami tokie (1.3.2.5) ir (1.3.2.6) lygčių sprendiniai [24]:

$$N_t^h(t) = \left(1 - e^{-(\lambda + \nu)t}\right) \frac{R_{dif}}{\lambda + \nu}, \quad (1.3.2.9a)$$

$$N_t^n(t) = \left(N_t^h - \frac{R_{dif}}{\lambda + \nu}\right) e^{-(\lambda + \nu)(t - t_d)} + \frac{R_{dif}}{\lambda + \nu}, \quad (1.3.2.9b)$$

$$N_a(t) = C_1 e^{-(\lambda + \nu)t} + C_2 e^{-(\lambda + \beta)t} + C_3, \quad (1.3.2.10)$$

Čia t_d – defekto atsiradimo kuro elemente laikas. (1.3.2.9a) lygtis yra laikotarpiui iki defekto atsiradimo, o (1.3.2.9b) – po to. Aproximavus matavimų rezultatus, gaunamos parametrų v , A , c ir efektinio difuzijos koeficiento D' reikšmės [24].

Kadangi trumpaamžių jodo radionuklidų aktyvumų tarpelyje ir aušale pusiausvyra nusistovi tik praėjus kažkiek laiko po defekto atsiradimo, pvz., ^{131}I – po 20 parų. Todėl, norint gauti aktyvumą esant pusiausvyrai ir taikyti aprašomą modelį, reikia naudoti korekcinį daugiklį F_i . Tuomet (1.3.2.8) lygties išraiška pasikeičia į:

$$\left(\frac{R}{y}\right)_m = \left(\frac{\lambda + \beta}{\lambda}\right) \frac{A_a}{yF_i}, \quad (1.3.2.11)$$

Jei nėra kuro elementų defektų, tai nuklido aktyvumą aušale galima įvertinti pagal formulę (1.3.2.11) [22].

$$A_a(t) = \lambda cy \left(\frac{1 - e^{-\beta t}}{\beta} \right). \quad (1.3.2.12)$$

Radioaktyviųjų atliekų charakteristikų skaičiavimai

Yra sukurti matematiniai modeliai ir kompiuterinės programos, pvz., belgų kompanijos TRACTEBEL programa LLWAA-DECOM, skirtos eksploatacinių ir eksploataavimo nutraukimo atliekų srautų charakteristikoms skaičiuoti. Taikant šias programas atsižvelgiama į elektrinės projektinius ypatumus ir eksploataavimo sąlygas (kuro tipas, išdegimas, kuro elemento apvalkalo defektai, natūralaus ^{235}U kiekis ant apvalkalo, konstrukcinės reaktoriaus medžiagos, paviršiaus plotai, su kuriais turi sąlyti cirkuliacijos kontūro skysčiai, eksploatacinė temperatūra, skysčių tekėjimo srautas ir jų cheminės savybės, įrangos korozijos sparta, skysčių valymo sistemų ir perdurbimo įrenginių savybės, taip pat fizikinės-cheminės nuklidų esančių cirkuliuojančiuose skysčiuose savybės). LLWAA-DECOM programa įvertina priverstinės cirkuliacijos kontūro aušalo radionuklidinę sudėtį, taip pat su pagrindiniu kontūru susijusių kitų cirkuliacijos kontūrų sudėtį, įrangos paviršinę taršą, skysčių perdurbimo atliekų – jonų mainų dervų, filtrų, garinimo

koncentratų bei technologinių atliekų – radionuklidinę sudėtį. Taip pat vertinama ir įrangos tarša radioaktyviaisiais aerozoliais [25,26,61- 63].

Skaičiavimai remiasi šios lygties sprendimu:

$$\frac{dW_i}{dt} = K_d C_i (1 - f_i) - W_i (K_r + \lambda), \quad (1.3.2.13)$$

čia W_i – nusėdusio ant įrangos paviršiaus radionuklido paviršinis aktyvumas, K_d – nusėdimo sparta, C_i – radionuklido tūrinis aktyvumas aušale, f_i – radionuklido tirpioji frakcija, K_r – išėigos koeficientas, λ – i-ojo radionuklido skilimo konstanta.

K_d ir K_r priklauso nuo aušalo savybių (debito, temperatūros, Reinoldso skaičiaus), įrangos savybių (geometrijos, nelygumų, trinties koeficientų), radioaktyviųjų dalelių savybių (masės, skersmens).

1.3.3 Proporcingumo daugiklius įtakojantys veiksniai

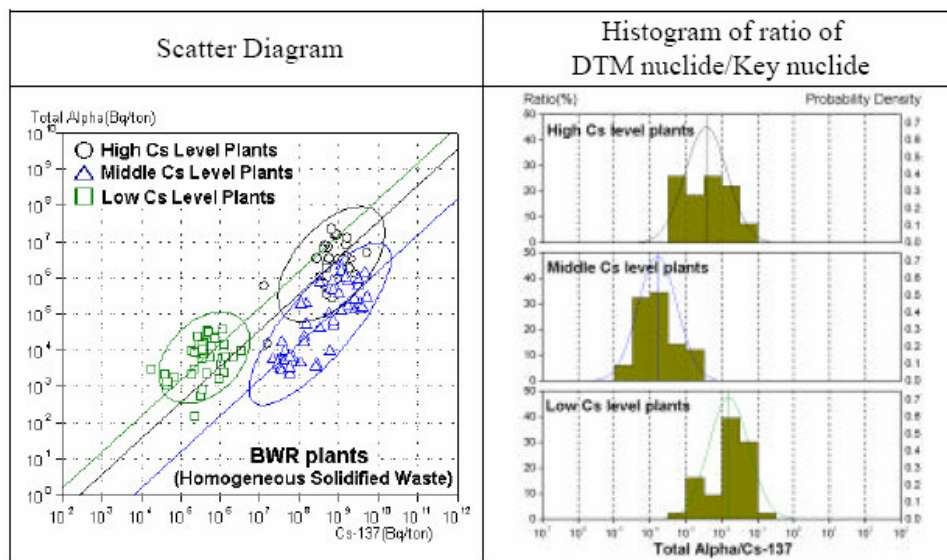
Literatūroje yra aptarti proporcingumo daugiklių tyrimų rezultatai ir įvertinti veiksniai, galintys įtakoti proporcingumo daugiklius. Japonijoje, atliekų pakuotėse nustatant savituosius radionuklidų aktyvumus, buvo taikyti radiocheminiai metodai ir išanalizuota daugiau kaip tūkstantis ėminių. Šių tyrimų rezultatai sukaupiti duomenų bazėje ir nagrinėjami statistiniais metodais. Tirta proporcingumo daugiklių priklausomybė nuo žemiau aprašytų veiksnių.

1. Kuro nehermetiškumo lygis

Nustatyta, kad šis veiksnys turi įtakos proporcingumo daugikliams (1.3.3.1 pav.). Atsižvelgiant į ^{137}Cs savitąjį aktyvumą, Japonijos AE suskirstytos į tris grupes. Taip pat ištirtas proporcingumo daugiklis $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ [40].

Palyginus Japonijos, Vokietijos ir Prancūzijos proporcingumo daugiklius keliems atliekų srautams, nustatyta, kad dalijimosi produktams ir transuraniniams radionuklidams proporcingumo daugikliai pagal ^{60}Co skirtingose šalyse skiriasi. Tačiau, sugrupavus reaktorius pagal didelį ir mažą dalijimosi produktų kiekį, gautas rezultatas rodo, kad vienalyčių ir

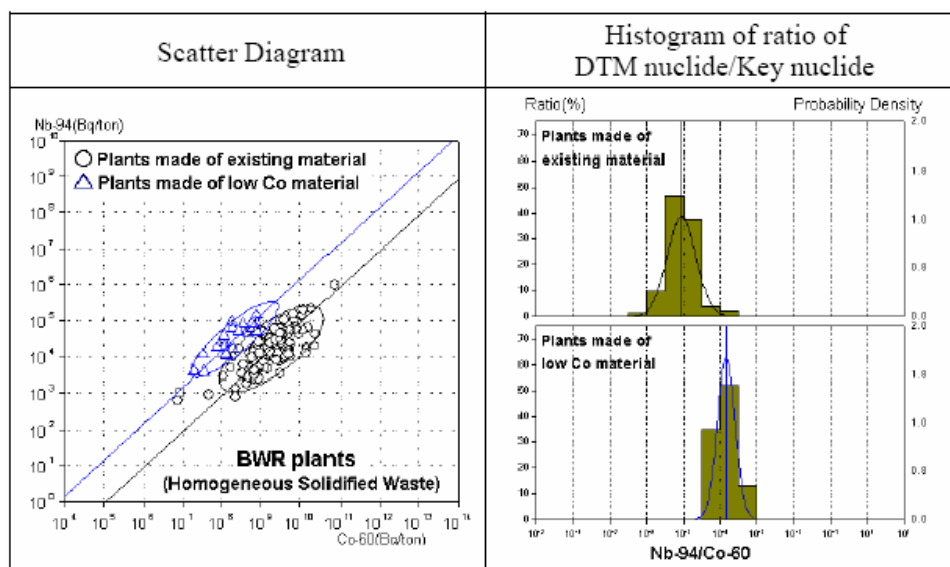
nevienalyčių atliekų proporcingumo daugikliai panašūs. Tai patvirtina, kad dalijimosi produktams ir transuraniniams radionuklidams atraminis nuklidu pasirinkus ^{60}Co , svarbu atsižvelgti į eksploataavimo istoriją (kuro nehermetiškumo atvejus) [51].



1.3.3.1 pav. Bendro α spindulių aktyvumo santykis su ^{137}Cs , vienalytėse sukietintose atliekose [40]

2. Reaktoriaus medžiagos

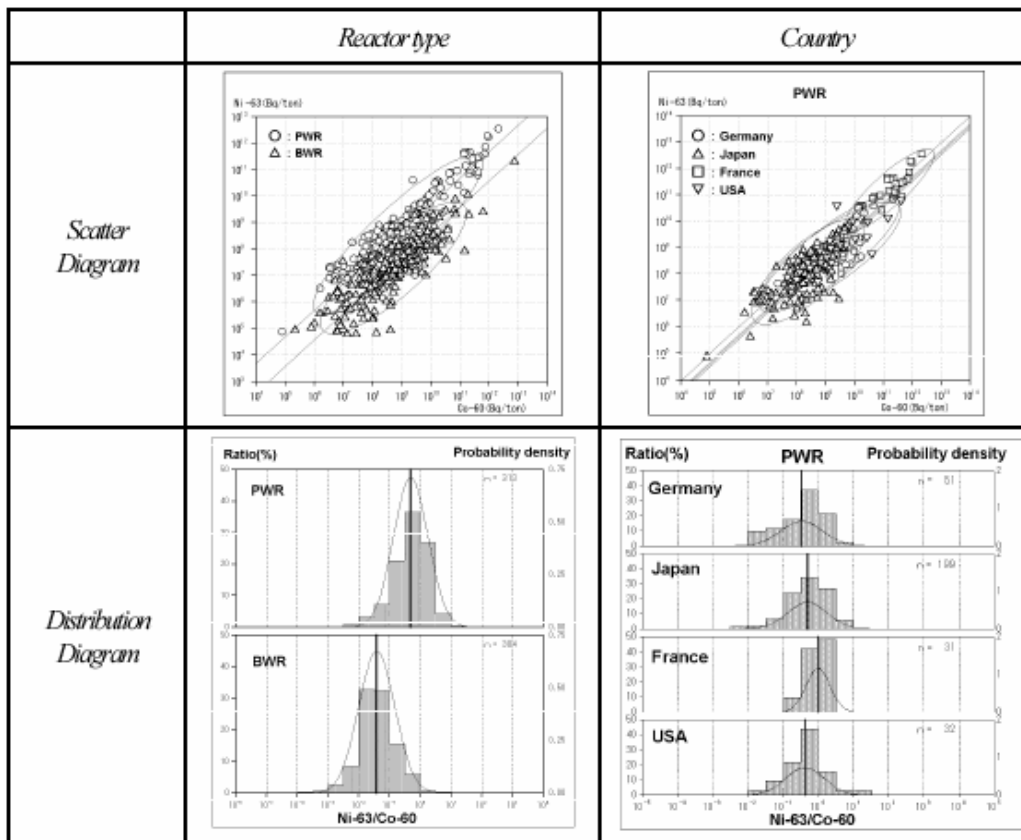
Korozinių aktyvacijos produktų proporcingumo daugikliai (^{60}Co atžvilgiu) priklauso nuo reaktoriaus medžiagų sudėties, pvz., Co kiekio jose [40].



1.3.3.2 pav. Reaktorių konstrukcinių medžiagų įtaka proporcingumo daugikliams [40]

3. Reaktoriaus tipas

Kadangi urano dalijimosi sparta skirtinguose reaktorių tipuose mažai skiriasi, tai tikėtasi, kad proporcingumo daugikliai neturėtų labai priklausyti nuo reaktorių tipo. Tačiau nustatyta, kad pvz. $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ proporcingumo daugiklis priklauso nuo reaktorių tipo. Taip yra dėl to kad skirtingos reaktoriaus aušalo fizikinės cheminės savybės. Nors ^{137}Cs junginiai yra tirpūs bet kokioje cheminėje aplinkoje, bet ^{90}Sr pasiskirstymas tarp ištirpusių ir kietų dalelių PWR ir BWR reaktoriams skiriasi. Transuraniniams radionuklidams šis efektas mažesnis, nes jų junginiai išlieka netirpūs abiem reaktorių tipams. Apibendrinti dalijimosi produktų proporcingumo daugiklius įvertintus skirtingose šalyse sudėtingiau, nes reikia palyginti fizikines-chemines aušalų charakteristikas. Nepakanka vien palyginti radionuklidų susidarymo spartą išdegant kurui, svarbu atsižvelgti į radionuklidų pernašą aušale [47].

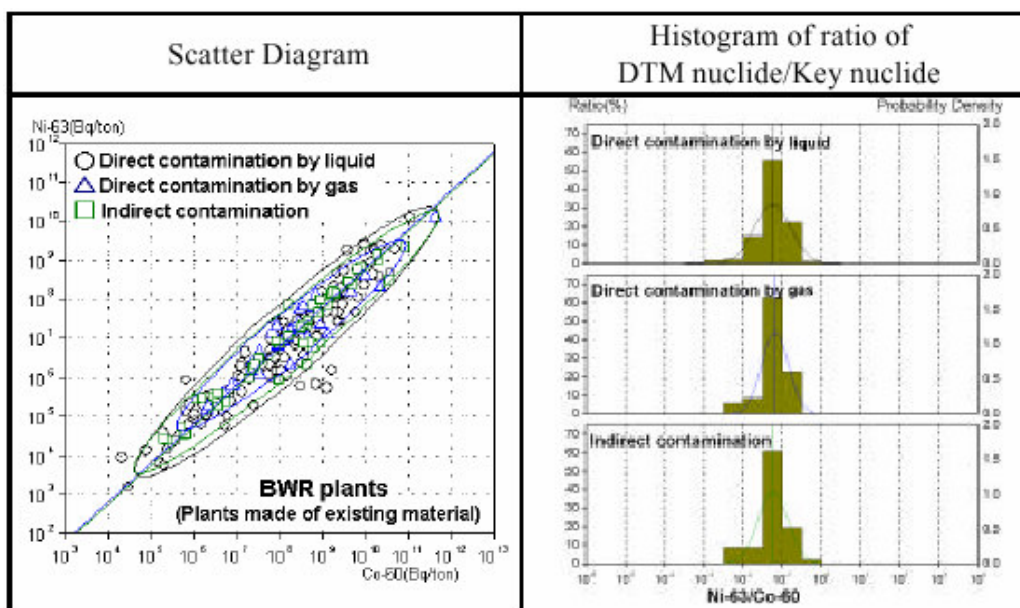


1.3.3.3 pav. $\text{Ni}^{63}/\text{Co}^{60}$ porcingumo daugiklio priklausomybė nuo reaktoriaus tipo [47].

Skirtingų tipų reaktoriuose naudojamos šiek tiek skirtingos medžiagos, pvz., BWR reaktoriuose dominuoja plienas ir ketus, o PWR – nikelio lydiniai, todėl skiriasi ir jų proporcingumo daugikliai. Tačiau įvairių šalių to paties tipo reaktorių proporcingumo daugikliai skiriasi nežymiai

4. Kietųjų atliekų užteršimo būdas (atliekų tipas)

Kietosios atliekos radionuklidais gali būti užteršiamos tiesiogiai ir netiesiogiai. Tiesiogiai užteršiamos tos atliekos, kurios turi nuolatinį sąlytį su sistemos skysčiais ir dujomis. Netiesiogiai užteršiamos atliekos neturi nuolatinio sąlyčio su skysčiais ir dujomis, o užteršiamos dėl laikino sąlyčio su tiesiogiai užteršiamomis atliekomis arba sistemos skysčiais/dujomis. Be to, galima skirstyti atliekas pagal jų tipą. Tiesiogiai užteršiamos atliekos – metalinės įrangos dalys, vamzdžiai, skysčių ir oro filtrų elementai, o netiesiogiai užteršiamos atliekos – pirštinės, apsauginiai skydai ir pan. Tyrimai parodė, kad proporcingumo daugikliams šis faktorius įtakos neturi, todėl pagal atliekų tipą jų klasifikuoti neverta [40].



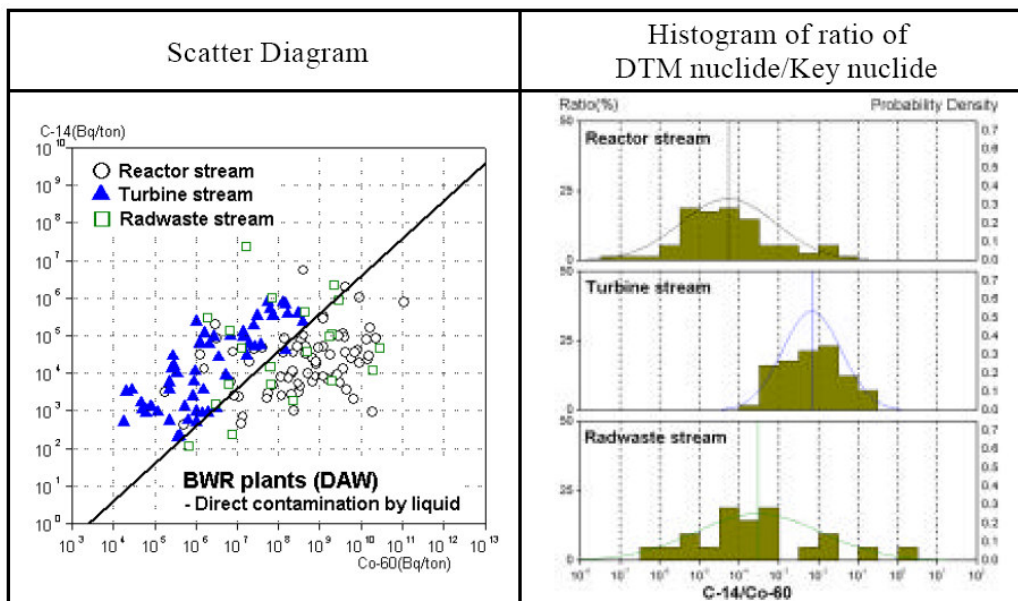
1.3.3.4 pav. $^{63}\text{Ni}/^{60}\text{Co}$ proporcingumo daugiklio priklausomybė nuo atliekų tipo [40]

5. Atliekų srautas

Tirta proporcingumo daugiklių ^{60}Co atžvilgiu priklausomybė nuo atliekų srauto, kuriame susidaro kietosios radioaktyviosios atliekos. BWR reaktoriams išskirti trys atliekų srautai: reaktoriaus, turbinos ir radioaktyviųjų atliekų

sistemos, PWR reaktoriais – du: reaktoriaus ir turbinos. Tyrimai parodė, kad proporcingumo daugiklis nepriklauso nuo atliekų srauto. Išimtis – $^{14}\text{C}/^{60}\text{Co}$ daugiklis. Nustatyta, kad ^{14}C proporcingumo daugiklis BWR tipo reaktorių turbinos atliekų srautui skiriasi nuo kitų dviejų atliekų srautų daugiklių (1.3.3.5 pav.). Taip yra dėl to, kad lakus ^{14}C ir nelakus ^{60}Co , patekę į turbiną, elgiasi skirtingai. Tai susiję su BWR reaktoriaus ypatumu: vanduo garinamas, jam tekant per aktyviają reaktoriaus zoną [40].

Palyginus Japonijos, Vokietijos ir Prancūzijos vienalyčių ir nevienalyčių atliekų proporcingumo daugiklius reaktoriaus vandens, jonų mainų dervų, koncentratų, filtrų ir sausų kietųjų atliekų srautuose, nustatyta kad korozinių radionuklidų proporcingumo daugikliai pagal ^{60}Co nepriklauso nuo atliekų srauto. Taip yra todėl, kad visi aktyvuoti koroziniai produktai turi panašią fizikinių-cheminių savybių, jie yra netirpūs metalai. Palyginus proporcingumo daugiklius dalijimosi produktams ir transuraniniams radionuklidams ^{137}Cs atžvilgiu, nustatyta, kad vienalytėms ir nevienalytėms atliekoms jie skirtingi. Taip yra todėl, kad ^{137}Cs , palyginti su ^{90}Sr ar transuraniniais elementais, yra gana tirpus [51].



1.3.3.5 pav. $^{14}\text{C}/^{60}\text{Co}$ proporcingumo daugiklio priklausomybė nuo atliekų srauto [40]

Apibendrinus tyrimų rezultatus, tegiama, kad korozinių produktų proporcingumo daugiklis pagal Co^{60} gali būti taikomas bet kokiam atliekų

srautui. Tačiau nustatant dalijimosi produktų ir transuraninių radionuklidų proporcingumo daugiklius pagal ^{137}Cs , reikia išskirti bent du atliekų srautus – vienalytes ir nevienalytes atliekas [51].

6. Priklausomybė nuo laiko

Nagrinėjant daugiau kaip 20 metų kauptus radiocheminės analizės duomenis, nustatyta, kad proporcingumo daugikliai išlieka gana pastovūs (jei jie buvo tinkamai suklasifikuoti) [40].

Apibendrinus visų aukščiau minėtų tyrimų rezultatus, konstatuojama, kad korozinių nuklidų proporcingumo daugikliai priklauso nuo reaktoriaus tipo, bet jiems įtakos neturi atliekų srautas. Dalijimosi produktų ir transuraninių nuklidų proporcingumo daugikliai priklauso nuo reaktoriaus eksploatavimo istorijos (kuro nehermetiškumo lygio) ir atliekų srauto [53].

Išanalizavus sukauptus proporcingumo daugiklių duomenis, Japonijoje BWR tipo reaktoriai sugrupuoti pagal proporcingumo daugikliui įtaką turinčius veiksnius. Atsižvelgus į reaktoriaus medžiagų veiksnio įtaką proporcingumo daugikliui, išskiriamos dvi reaktorių grupės pagal $^{63}\text{Ni}/^{60}\text{Co}$ daugiklį bei dvi grupės pagal $^{94}\text{Nb}/^{60}\text{Co}$ daugiklį. Atsižvelgus į kuro nehermetiškumo lygio veiksnio įtaką, išskiriamos trys reaktorių grupės pagal $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ daugiklį ir trys pagal bendrąjį $\alpha/^{137}\text{Cs}$ daugiklį. Kietųjų atliekų proporcingumo daugiklius $^{14}\text{C}/^{60}\text{Co}$ taip pat reikia klasifikuoti pagal atliekų srautą. PWR tipo reaktorių grupuoti nereikėjo [50].

Reikalingų ėminių skaičiaus nustatymas

Proporcingumo daugiklių metodas pusiau empirinis, todėl jo tikslumui įtakos turi ir turimų duomenų skaičius. Laikoma, kad pakankamas duomenų skaičius yra toks, kurį viršijus duomenų statistika gerėja tiek mažai, kad neverta daugiau investuoti lėšų ją gerinti. Kintant duomenų skaičiui, kinta ir koreliacijos koeficientas. 1.3.3.1 lentelėje pateikiamas kriterijus, kuris taikomas proporcingumo daugiklių nustatymui pagal lygtį (1.3.2.3), kai duomenų yra pakankamai. [47]. Jei duomenų nepakanka, proporcingumo daugiklius taip pat galima įvertinti. Tačiau, šiuo atveju reikia žinoti, kad,

papildžius duomenų bazę naujais duomenimis, galimos didesnės proporcingumo daugiklio fluktuacijos. Todėl reikia skaičiuoti viršutinę nustatyto pasiklovimo lygmens proporcingumo daugiklio ribą.

1.3.3.1. lentelė. Pakankamo ėminių skaičiaus priklausomybė nuo koreliacijos koeficiento [47]

	Koreliacijos koeficientas				
	0,6	0,7	0,8	0,9	0,95
Ėminių sk.	40	35	30	25	20

Kai tarp sunkiai matuojamo ir atraminio radionuklidų nustatoma koreliacija ir jos pasiskirstymas yra lognormalusis, proporcingumo daugiklio skaičiavimui taikoma (1.3.3.1) lygtis, kai duomenų skaičius nesiekia nurodyto 1.3.3.1 lentelėje [47].

$$\ln(k_{i,r}) = \ln(k_i) + t_{0,95} \frac{s}{\sqrt{n-1}}, \quad (1.3.3.1)$$

čia, $k_{i,r}$ – proporcingumo daugiklio pasiklovimo riba, k_i – sunkiai matuojamo nuklido proporcingumo daugiklis, s – ėminio variacija, n – ėminių skaičius, $t_{0,95}$ – pasiskirstymas, reikšmingumo lygmuo 5%.

Norint patikrinti, ar yra koreliacija tarp duomenų, gali būti taikomi t , F ir Fišerio testai. Labai nukrypstantiems nuo bendrosios tendencijoms taškams pataisyti ar išmesti, gali būti naudojamas Grubbs testas [64].

1.3. Poskyrio išvados.

Vieningo reikšmingųjų radionuklidų, kurie yra svarbūs vertinant radioaktyviųjų atliekų kapinynų saugą, sąrašo nėra. Remdamasi gamintojų teikiamais duomenimis ir radionuklidų poveikio žmonėms vertinimo išvadomis, kiekviena šalis sudaro svarbių saugai radionuklidų sąrašą. Taip pat nėra vieningos metodikos, pagal kurią nustatomos reikšmingųjų radionuklidų koncentracijos radioaktyviose atliekose. Tam taikomi įvairūs metodai: empiriniai, pusiau empiriniai ir analitiniai. Radiologiškai atliekos

charakterizuojamos naudojant proporcingumo daugiklius pagal lengvai matuojamus atraminius radionuklidus. Pasaulyje sukaupta daug statistinių duomenų, kuriuos analizuojant tiriami proporcingumo daugiklius įtakojantys veiksniai.

1.4 Kapinynų apžvalga

Šios apžvalgos tikslas – aptarti reikalavimų kapinynams svarbą juos siejant su reikšmingų radionuklidų sąrašu. Radionuklidinė atliekų sudėtis ne tik įtakoja radioaktyviųjų atliekų tvarkymo įrenginių saugą, bet ir lemia atliekų laidojimo būdą. Ypač svarbios – ilgaamžių radionuklidų koncentracijos. Ilgaamžių atliekų sudėtyje esantys radionuklidai per nustatytą kapinyno priežiūros laikotarpį nesuskyla iki priimtinių aktyvumo lygių. Didesnes ilgaamžių radionuklidų koncentracijas turinčių atliekų laidojimas reikalauja sudėtingesnių technologinių ir inžinerinių sprendimų. Siekiant ilgam laikui izoliuoti atliekas bei lėtinti radionuklidų sklaidą, turi būti patikimesni ir atsparesni aplinkos poveikiui inžineriniai barjerai bei deramos gamtinės savybės.

Kapinynus galima suskirstyti į paviršinius ir giluminius. Paviršiniaus vadinami žemės paviršiuje įrengti ir kelių metrų storio danga uždengti kapinynai, arba kiek giliau, keliasdešimt metrų gylyje, įrengti kapinynai. Šis laidojimo būdas naudojamas jau apie 50 metų ir nuolat tobulinamas, remiantis sėkminga praktika bei mokantis iš klaidų. Paviršinis laidojimo būdas pasiteisino [65].

Šiuolaikiniai tranšėjiniai kapinynai [66, 67] skirti labai žemo aktyvumo atliekoms, kurių aktyvumas nedaug viršija nebekontroliavimo lygius laidoti. Tranšėjos iškasamos mažo laidumo vandeniui grunte, jų šonai ir dugnas padengiami hidroizoliacine medžiaga, kuria uždengiama ir atliekomis užpildyta tranšėja. Po to iš natūralių medžiagų suformuojama kapinyno viršutinė danga. Labai žemo aktyvumo atliekos yra laidojamos ir žemės paviršiuje įrengtuose pilkapio tipo kapinynuose, neturinčiuose inžinerinių

barjerų [36]. Tokiuose kapinyuose, be inžinerinių barjerų, galima palaidoti gana ribotus savituosius radionuklidų aktyvumus, pvz., Ispanijos labai žemo aktyvumo atliekų kapinyne numatoma laidoti iki 100 Bq/g ^{60}Co , 300 Bq/g – ^{137}Cs ir 100 Bq/g – Pu, Am, Cm izotopų savitųjų aktyvumų atliekas [35]. Norint laidoti aukštesnio aktyvumo atliekas, gamtinius barjerus reikia papildyti inžineriniais. Plačiai paplitę tranšėjinio tipo kapinynai, turintys inžinerinius barjerus (gelžbetonines konstrukcijas, betoninės ir asfalto hidroizoliacinės dangos) [36]. Didesnį dėmesį skyrus atliekoms apdoroti, atliekų pakuotėms paruošti, įterpiant atliekas į matricą, ir inžineriniams barjerams įrengti, sukurtas rūšio tipo kapinynas, kuriame sukietintų atliekų pakuotės laidojimos gelžbetoniniuose moduliuose [68-72]. Šio tipo kapinyuose leidžiama laidoti gerokai aukštesnio aktyvumo, nei tranšėjinių ar pilkapio tipo kapinynų, atliekas, pvz., Ispanijos kapinyne savitųjų aktyvumų atliekų ribos konteineryje yra: $^3\text{H} - 1 \cdot 10^3$, $^{14}\text{C} - 2,3 \cdot 10^6$, $^{59}\text{Ni} - 6,3 \cdot 10^4$, $^{60}\text{Co} - 1,7 \cdot 10^8$, $^{63}\text{Ni} - 1,2 \cdot 10^7$, $^{90}\text{Sr} - 9,1 \cdot 10^4$, $^{94}\text{Nb} - 1,2 \cdot 10^2$, $^{99}\text{Tc} - 4,3 \cdot 10^5$, $^{129}\text{I} - 4,6 \cdot 10^1$, $^{137}\text{Cs} - 3,3 \cdot 10^5$, bendrasis $\alpha - 3,7 \cdot 10^3$ Bq/g [71].

Tiek tranšėjos, tiek rūšiai gali būti įrengiami ir vidutiniame, kelių dešimčių metrų, gylyje. Pvz., Japonijos Rokašo kapinynas išsiskiria tuo, kad gelžbetoniniai rūšiai įrengti 14-19 m gylyje. Giliau įrengtų kapinynų privalumas – geresnė apsauga nuo vandens infiltracijos, jonizuojančiosios spinduliuotės, erozijos ir netyčinio išibrovimo. Nustatyti tokie ribiniai savitieji aktyvumai: $^3\text{H} - 3,07 \cdot 10^5$, $^{14}\text{C} - 8,51 \cdot 10^3$, $^{59}\text{Ni} - 8,88 \cdot 10^3$, $^{60}\text{Co} - 2,78 \cdot 10^6$, $^{63}\text{Ni} - 1,11 \cdot 10^6$, $^{90}\text{Sr} - 1,67 \cdot 10^4$, $^{94}\text{Nb} - 8,51 \cdot 10^7$, $^{99}\text{Tc} - 1,85 \cdot 10^1$, $^{129}\text{I} - 2,78 \cdot 10^{-1}$, $^{137}\text{Cs} - 1,04 \cdot 10^5$, bendrasis $\alpha - 5,5 \cdot 10^2$ Bq/g [73]. Palyginus šias ir Ispanijos El Cabril kapinyno vertes, matyti, kad ribinių savitųjų aktyvumų nenulemia vien tik atliekų laidojimo gylis. Reikia atsižvelgti į barjerų veiksmingumą ir aikštelės savybes. Dėl ilgaamžių ^{14}C ir ^{36}Cl didesnis grafito kiekis žemės paviršiuje negali būti laidojamas. Giliau įrengus kapinyną, atliekos nuo išibrovimo apsaugomos dešimtis tūkstančių, o nuo erozijos apie šimtą

tūkstančių metų. Nagrinėjama galimybė laidoti reaktorių grafitą daugiau kaip 15 m gylyje įrengtame kapinyne [74].

Kai kurios šalys pasirinko dar didesnę gylį žemo ir vidutinio aktyvumo atliekoms laidoti. Švedijos ir Suomijos kapinynai įrengti 50-100 m gylyje. [36, 75]. Kelių dešimčių metrų gylio šuliniai taip pat priskiriami paviršiniams kapinynams. Šuliniuose gali būti laidojamos atliekos, kurios viršija negilių paviršinių kapinynų atliekų priimtimumo kriterijus. Manoma, kad vidutinio gylio šuliniai, pvz., Nevada Test Site (3 m skersmens ir 36 m gylio), yra tinkami panaudotiems uždariesiems šaltiniams laidoti. [76].

Panaudotam branduoliniam kurui ir ilgąamžėms atliekoms izoliuoti kapinynai turi būti įrengti gerokai gilesniuose, kelių šimtų metrų gylyje esančių geologinių formacijų sluoksniuose. Tai giluminiai (geologiniai) kapinynai. Juose gali būti laidojamos radioaktyviosios atliekos, kurių sudėtyje esančių radionuklidų didelės koncentracijos neleidžia jų laidoti paviršiniuose kapinyuose. Galimybių įrengti giluminius kapinynus tyrimai vykdomi daugelyje šalių [77-79]. Alternatyva aprašytai giluminių kapinynų koncepcijai yra laidojimas giliuose, daugiau kaip 1,5 km gylio, gręžiniuose [80, 81]. Ši laidojimo koncepcija dar tik kuriama.

Poskyrio išvados

Priklausomai nuo radioaktyviųjų atliekų savybių, jos laidojamos įvairių tipų ir inžinerinių barjerų sudėtingumo kapinyuose, įregiamuose tiek žemės paviršiuje, tiek kelių kilometrų gylyje. Nuo inžinerinių ir gamtinių barjerų savybių priklauso, kokio aktyvumo atliekų srautai gali būti laidojami kapinyne. Tam, kad atliekų srautui būtų parinktas tinkamas laidojimo būdas, būtina įvertinti visų reikšmingų radionuklidų koncentracijas.

Skyriaus išvados

Per keletą pastarųjų metų, naudojant kompiuterines programas, įvertinta RBMK-1500 kuro, grafito ir reaktoriaus metalinių konstrukcijų aktyvacija,

atlikti aušalo ir reaktoriaus įrangos radiologinės sudėties bei radioaktyviųjų atliekų sudėties teoriniai vertinimai. Taip pat pritaikytas modelis, pagal kurį įvertintos sunkiai matuojamų radionuklidų koncentracijos aušale, pagal lengvai matuojamus jodo ir ^{137}Cs izotopus. Nustatyta, kad modeliavimo rezultatai labai priklauso nuo neutronų srauto veikiamų medžiagų priemaišų koncentracijų, o tikslių duomenų apie jas trūksta. Norint tiksliau charakterizuoti atliekas, reikia remtis ne tik teoriniais skaičiavimais, bet ir eksperimentiniais rezultatais. Todėl radioaktyviausias atliekas būtina eksperimentiškai charakterizuoti. Per kelis dešimtmečius pasaulyje pakankamai išvystytas proporcingumo daugiklių taikymo, charakterizuojant atliekas, metodas. Todėl, naudojantis esančia patirtimi būtina parengti radioaktyviųjų atliekų srautų susidarymo Ignalinos AE schemą, ir, remiantis eksperimentiniais metodais, o jei reikia teoriniais radionuklidinės sudėties tyrimų rezultatais, nustatyti proporcingumo daugiklių rinkinius (nuklidinius vektorius) atskiriems radioaktyviųjų atliekų srautams.

2 METODIKA

2.1 Radioaktyviųjų atliekų susidarymo Ignalinos atominėje elektrinėje schema

Galima išskirti šiuos radioaktyviųjų atliekų susidarymo šaltinius: aktyvacija neutronų sraute (vidinės reaktoriaus konstrukcijos, grafitas), įrangos vidinių sienelių teršimas užterštais skysčiais (vamzdžiai, siurbliai ir kt.) bei abiejų mechnizmų kombinacija (kuro kanalai). Atliekos susidaro ir dėl radioaktyviųjų skysčių nuotėkių bei aplinkos ore esančių aerozolių nusėdimo, taip pat tai nuosėdos, susikaupiančiosios įrangoje, kur yra mažas vandens cirkuliacijos srautas [62]. Šiame skyriuje aprašomi RBMK reaktoriaus konstrukciniai elementai ir nagrinėjami skystųjų ir dujinių radioaktyviųjų atliekų tvarkymo procesai.

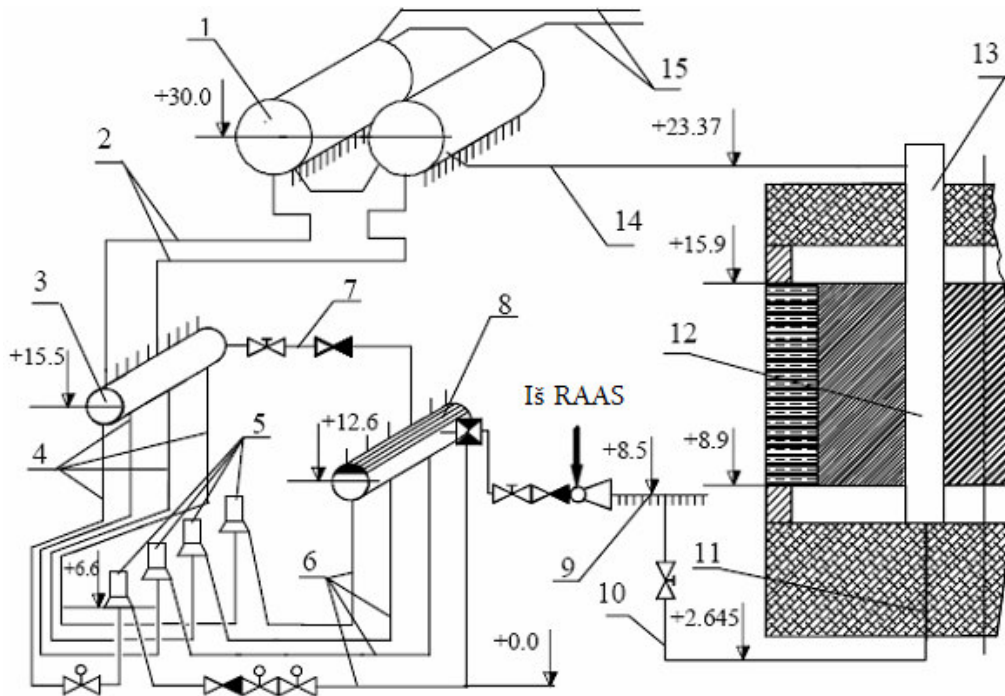
Pirmiausia aptarsime RBMK reaktoriaus konstrukcijos elementus, kuriuose formuojasi radionuklidai, patenkantys į radioaktyvias atliekas. RBMK-1500 – kanalinis, verdančiojo vandens su grafitiniu neutronų lėtikliu tipo, reaktorius. Reaktorius įrengtas 21×21 m, 25 m gylio betoninėje šachtoje. Aktyviosios zonos aukštis – 7 m, skersmuo – 11,8 m. Cilindro formos grafito klojinį sudaro 250×250 mm pagrindo ploto ir 200, 300, 500 ar 600 mm aukščio grafito blokai su kiauryme viduryje, kurie sustatyti į 2488 kolonas. Keturios kraštinės kolonų eilės sudaro reflektorių. Kiekviena grafito kolona stovi ant plieninės atraminės plokštės, kuri remiasi į plieno įvorę, pritvirtintą prie apatinės metalo konstrukcijos atraminės plokštės. Viršutinėje dalyje kolonos įtvirtintos vamzdžių traktai. Klojinui sutvirtinti ir aušinti šoninio reflektoriaus kolonose įrengti 156 tuščiaviduriai strypai. Grafito klojinys yra hermetiškoje reaktoriaus ertmėje, kurią sudaro metalinis cilindro formos apvalkalas ir viršutinė bei apatinė metalinės konstrukcijos. Apvalkalas pagamintas iš 16 mm storio, 14,52 m skersmens ir 9,75 m aukščio plieno lakšto. Viršutinė metalo konstrukcija, tai - 17 m skersmens ir 3 m aukščio cilindras. 40 mm storio plieno plokštėse ištekintos kiaurymės, į kurias įtvirtinti vamzdžių traktai.

Viršutinė ir apatinė dalys pagamintos iš antikorozinio plieno. Kanalas apgaubtas 20 mm storio grafito žiedais vienas šalia kito sudėtais taip, kad vienas liestų kanalą, kitas – klojinį. Kuro tabletės patalpintos į cirkonio-niobio (Zr-Nb 1%) lydinio 13 mm išorinio skersmens ir 0,9 mm storio vamzdelius. 3,6 m ilgio sandarūs vamzdeliai yra šilumą išskiriantys elementai. 18 elementų surinkti į rinklę, o dvi įvare sujungtos rinklės sudaro kuro kasetę [82].

Pagrindinis skystųjų radioaktyviųjų atliekų Ignalinos AE šaltinis yra branduolinio kuro dalijimosi produktai, dėl šilumą išskiriančių elementų apvalkų nehermetiškumo patekę į reaktoriaus aušalą. Aušale taip pat yra ir reaktoriaus metalinių struktūrinių dalių, aktyvuotų korozijos produktų. Dėl šilumą išskiriančių elementų apvalkų nehermetiškumo dalijimosi produktai patenka į panaudoto kuro išlaikymo baseinų vandenį. Radionuklidai patenka į tirpalus ir deaktyvuojant AE priverstinės cirkuliacijos kontūro, apsaugos valdymo ir kitą įrangą. Skystosios atliekos susidaro ir vykstant planuotiems ir neplanuotiems nuotėkiams iš įrangos ar vamzdynų, taip pat jas papildo avariniai drenažiniai vandenys ir vanduo iš sanitarinių punktų bei specialiosios skalbyklos. Radionuklidų lieka garinimo liekanose valant technologinius vandenį, panauduotuose vandens valymo filtruose, naftos produktuose [83].

Priverstinės cirkuliacijos kontūras RBMK reaktoriuje sudarytas iš dviejų kilpų: 830 ir 831 kanalo. Pilnas kontūro tūris 1992,7 m³. Cirkuliuojančio per reaktorių vandens kiekis – 32000-38000 t/val. Kiekvienai kilpai tenka po du 2,6 m skersmens ir 30,9 m ilgio cilindro formos būgnus-separatorius, tarpusavyje sujungtus 325 mm skersmens vamzdžiais (6 vandens dalyje ir 5 garo dalyje). Apatinėje būgnų-separatorių dalyje yra maitinimo kolektoriai, kuriais per nuleidžiamuosius vamzdžius (24 325 mm skersmens vamzdžiai) vanduo nuteka į išsiurbimo kolektorių. Iš jo keturiais 828 mm skersmens vamzdžiais vanduo patenka į keturis pagrindinius cirkuliacijos siurblius. Normaliai dirbant reaktoriui, veikia 3 siurbLIAI, iš kurių vanduo suslėgimo vamzdžiais (4 828 skersmens vamzdžiai) pumpuojamas į slėgimo kolektorių. Išsiurbimo ir slėgimo kolektoriai sujungti 6-ais 325 mm skersmens vamzdžiais, turinčiais po uždarymo sklendę ir atbulinį vožtuvą. Iš suslėgimo kolektoriaus

vanduo 20 vamzdžių patenka į 20 paskirstymo kolektorių, kurių pradžioje yra tekėjimo ribotuvai, atbuliniai vožtuvai, ir maišytuvai avarinio reaktoriaus aušinimo vandeniui, o viduje - mechaniniai filtrai. Prie grupinių kolektorių yra prijungti 40-43 57 mm skersmens vamzdžiai, kuriais vanduo tiekiamas į kuro kanalus. Virš aktyviosios zonos 76 mm skersmens garo-vandens komunikacijų vamzdynu garo vandens mišinys patenka į būgnus-separatorius [82].



2.1.2 pav. Vienos priverstinės cirkuliacijos kontūro kilpos schema [82]. 1 – būgnas-separatorius, 2 – nuleidžiamieji vamzdynai, 3 – išsiurbimo kolektorius, 4 – išsiurbimo vamzdynas, 5 – pagrindinių cirkuliacijos siurblių bakai, 6 – suslėgimo vamzdynas, 7 – kolektorių sujungimo vamzdžiai, 8 – slėgimo kolektorius su mechaniniu filtru, 9 – grupinis paskirstymo kolektorius su tekėjimo ribotuvu, atbuliniu vožtuvu ir maišytuvu, 10 – vandens komunikacijų vamzdynas, 11 – kanalas iki aktyviosios zonos, 12 – kanalas aktyviojoje zonoje, 13 – kanalas virš aktyviosios zonos, 14 – garo-vandens komunikacijų vamzdynai, 15 – garo vamzdynai.

Iš būgno-separatoriaus garas 16 vamzdžių patenka į 2 garo kolektorius, o iš jų vienos kilpos garas 4 vamzdžiais – į turbiną. Kiekviena kilpa turi po 4 greitaeigius redukcinius įrenginius, neleistinai padidėjus slėgiui, išleidžiančius

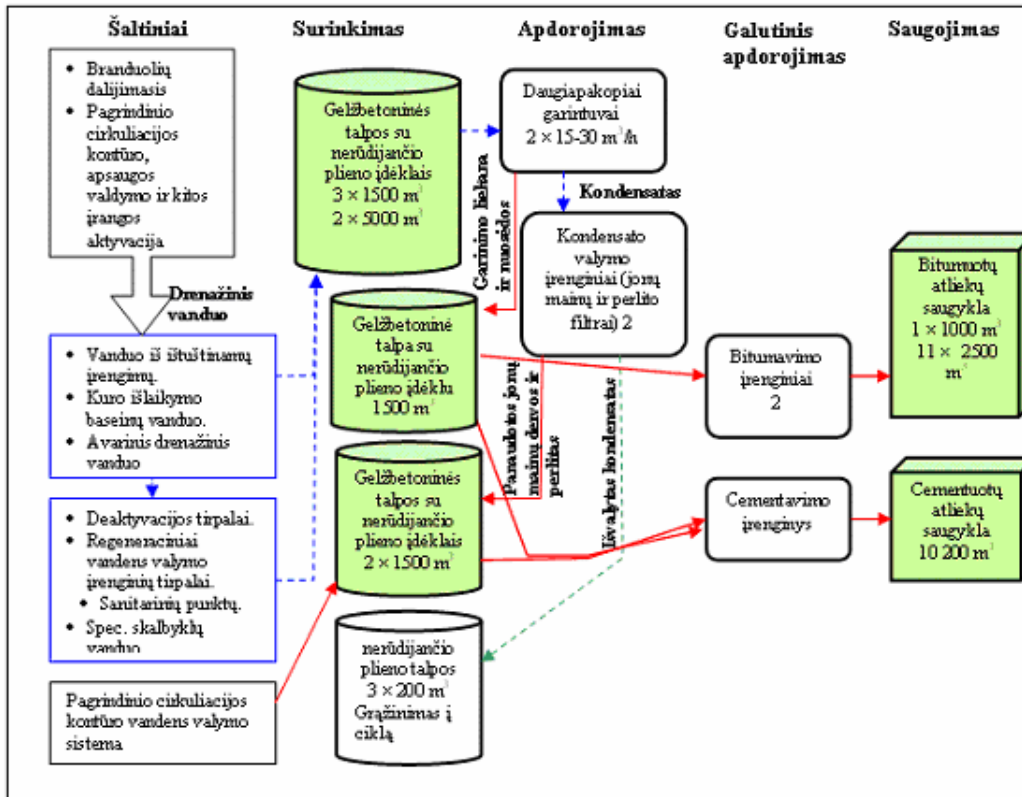
garą į kolektorių, ir vieną įrenginį bei 6 vožtuvus, kurie išleidžiančius garą į avarių lokalizacijos bloką. Iš turbinų atidirbęs garas keliauja į kondensatorių, iš kurio, išfiltruotas bei pašildytas, patenka į dearatorių. Iš dearatorių vanduo siurbliais tiekiamas į maitinimo įrenginius. Maitinimo įrenginius sudaro trys linijos, turinčios po mechninį filtrą, reguliuojantį ir atbulinius vožtuvus. Iš jų vanduo keliauja į maišytuvus, kur sumaišomas su aušalo valymo sistemos vandeniu ir patenka į būgnus separatorius [82].

Priverstinės cirkuliacijos kontūro vanduo valomas valymo sistemoje, kurią sudaro 800 m³/val siurblys, regenerorius, galinis aušintuvas, aušinimo ir valymo sistemų vamzdynai ir armatūra. 255-265 °C vanduo iš suslėgimo kolektorių imamas 200 t/val. ir aušinamas iki 68 °C regeneratoriuje bei iki 50 °C galiniame aušintuve. Išvalytas vanduo regeneratoriuje pašildomas iki 240 °C ir per maišytuvus grąžinamas į būgnus separatorius [82].

Ignalinos AE yra ir kitų cirkuliacijos kontūrų, naudojančių mažo druskingumo vandenį. Mažo druskingumo vandens valymo sistema surenka ir valo vandenį iš turbinų generatorių kondensato bako, nuotėkių, panaudoto kuro baseinų, valdymo strypų aušinimo kontūro, avarinio aušinimo sistemos, taip pat vandenį, kuris buvo naudojamas mažo druskingumo vandens valymo jonų mainų filtrams bei turbinos generatoriaus įrangai plauti, hidrauliniams bandymams, bei perteklinį priverstinės cirkuliacijos kontūro vandenį. Valymo įrenginyje yra trys perlito filtrai, du jonų mainų filtrai ir mechaninis filtras, užtikrinantis, kad jonų mainų dervos nepatektų į išvalyto vandens baką [82].

Skystosios AE radioaktyviosios atliekos yra perdirbamos. Perdirbimo procesas prasideda garinimu. Taip dalis radionuklidų lieka nuosėdose. Garų kondensatą filtruojant per jonų mainų dervas ir perlito miltelius mažinamas likusių garuose radionuklidų kiekis. Panaudotos jonų mainų dervos ir perlitas Ignalinos AE surenkami ir saugomi 1500 m³ talpose. Garinimo liekanos bitumuojamos, o garinimo liekanų nuosėdos ir jonų mainų dervos bei perlitas – cementuojami. Radionuklidais užteršti naftos produktai surenkami ir saugomi atskirai [84]. Skystųjų atliekų tvarkymo schema pateikta (2.1.3 pav.). Schema

vaizduoja radionuklidų kelią nuo susidarymo branduoliniame kure ir reaktoriaus konstrukcijose iki sukietintų skystųjų atliekų.

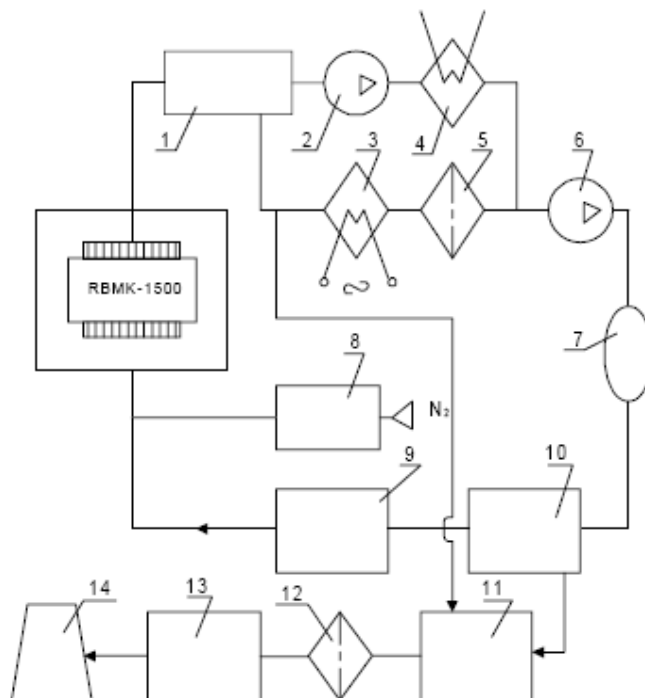


2.1.3 pav. Skystųjų atliekų tvarkymo Ignalinos AE schema.

Pilka spalva nuspalvinti schemos elementai – skystųjų ir sukietintų radioaktyviųjų atliekų saugojimo talpos ar saugyklos. Brūkšninėmis rodyklėmis pavaizduotas užteršto radionuklidais vandens kelias. Ištinėmis rodyklėmis pažymėtas užteršto vandens perdirbimo sistemoje susidarantių atliekų – garinimo liekanų, nuosėdų bei panaudotų vandens valymui jonų mainų dervų ir perlito, kurie yra sukietinami, kelias.

Dujinės atliekos AE susidaro įvairiose sistemose ir kontūruose. Inertinės dujos ir aerosoliai šalinami per ventiliacijos sistemą. Visos reaktoriaus pastato patalpos suskirstytos į aptarnaujamas ir neaptarnaujamas. Neaptarnaujamos patalpos, kur yra didesnė tikimybė patekti dalijimosi produktams, vėdinamos specialia ventiliacijos sistema, kurią sudaro kelios atskiros sistemos, į kurias nukreipiamas oras iš skirtingų patalpų. Priklausomai nuo galimos taršos patalpose oras išleidžiamas į kaminą valant aerosoliniais ir anglies filtrais [82].

Reaktoriaus dujinio kontūro dujos, oras su vandens radiolizės produktais ir dujiniais dalijimosi produktais iš apsaugos valdymo sistemos ir turbinų kondensatoriaus, valomos dujų valymo sistemoje [85]. Dujinio kontūro schema pateikta 2.1.4 pav. Kontūro paskirtis – aušinti grafito klojinį ir saugoti jį nuo oksidacijos. Metalinės konstrukcijos taip pat saugomos nuo korozijos.

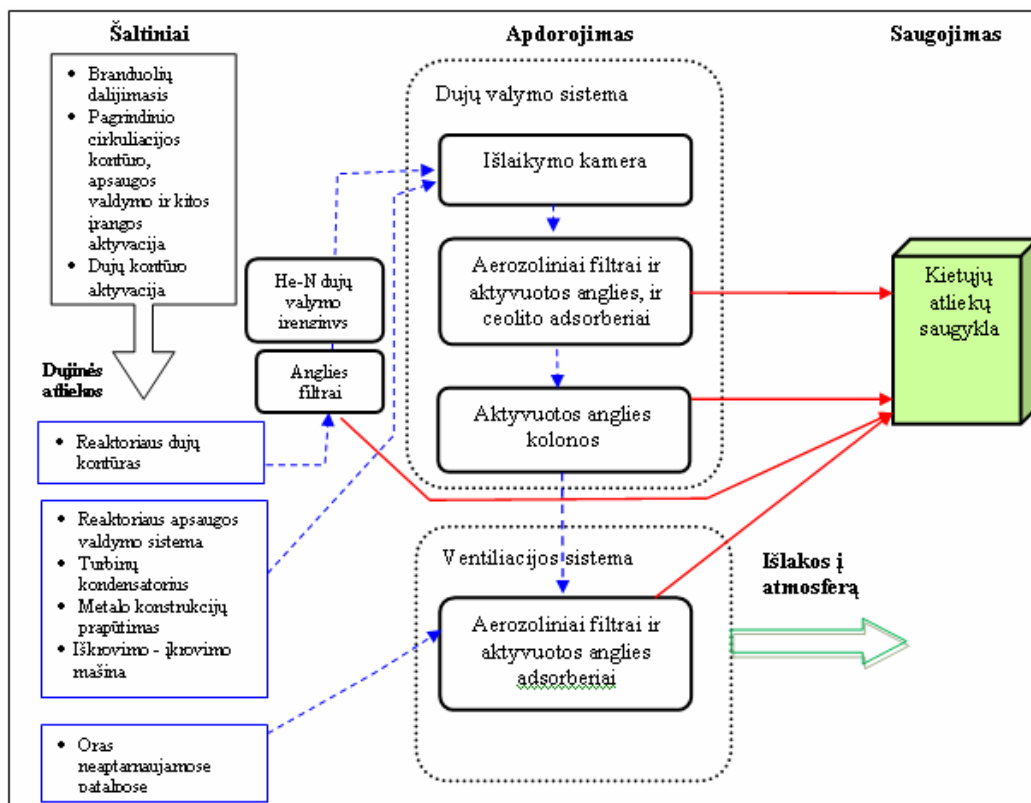


2.1.4 pav. Reaktoriaus dujų kontūro ir dujų valymo sistemų schema [82]. 1 – kuro kanalų hermetiškumo stebėjimo sistema, 2 – vakuuminis siurblys, 3 – elektrinis šildytuvas, 4 – dujų kontūro kondensatorius, 5 – jodo filtrai, 6 – helio kompresorius, 7- rezervuaras, 8 – azoto tiekimo ir reguliavimo sistema, 9 –helio-azoto tiekimo ir reguliavimo sistema, 10 – He-N dujų valymo įrenginys, 11 – dujų išlaikymo kamera, 12 - filtras, 13 – aktyvumo sumažinimo įrenginys, 14 – ventiliacijos sistema

Dujų kontūre kontroliuojamas kuro kanalų sandarumas. Padidėjęs dujų mišinio slėgis rodo, kad kanalas nesandarus, o į dujų mišinį patekę garai – kad kanalas įtrūkęs. Dujos, į kurias patenka garai, šalinamos iš kontūro. Cirkuliacijos režime dujų srautas po kuro kanalų sandarumo sistemos per kolektorių ir anglies filtrus patenka į helio kompresorių ir valymo įrenginį. Esant nuotėkiui kuro kanale grupiniai vienos ar kelių zonų vožtuvai

perjungiami į sustiprinto siurbimo režimą. Dujų mišinys nukreipiamas į kondensatorių, džiovintuvą ir galiausiai patenka į helio kompresorių [82].

Principinė dujinių atliekų tvarkymo schema pateikia 2.1.5 pav. Reaktoriaus dujų kontūro helio-azoto mišinio valymo sistemos išlėkos per ventilacijos sistemą išleidžiamos į atmosferą. Į dujų valymo sistemą taip pat patenka oras iš išsaugos valdymo sistemos ir turbinų kondensatoriaus. Čia nukreipiamas ir azotas, kuris naudojamas reaktoriaus metalo konstrukcijų prapūtumui. Kelis kartus per parą į dujų valymo sistemą išleidžiamos dujos iš helio-azoto mišinio valymo įrenginio. Perkraunant kurą, čia taip pat nukreipiamas oras iš kuro iškrovimo-įkrovimo mašinos.



2.1.5 pav. Dujinių atliekų tvarkymo schema IAE.

Dujų valymo sistemoje dujas pumpuoja dviejų vakuuminių 750 m³/val. našumo siurbliai. Dujų valymo sistemą, kurioje valomos dujų kontūro dujos ir turbinų kondensatoriaus bei apsaugos valdymo sistemos oras, sudaro išlaikymo kamera, filtrai bei aktyvumo mažinimo įrenginys. Išlaikymo kameroje dujos sulaikomos iki 10 val. ir šiuo laikotarpiu suskyla radionuklidai, turintys

trumpesnę nei 30 min pusėjimo trukmę. Po išlaikymo kameros dujos filtruojamos aktyvuotos anglies adsorbentu ir aerosoliniais filtrais. Prieš patenkant į aktyvumo mažinimo įrenginį ceolito adsorbentais sumažinama dujų drėgmė. Aktyvumo mažinimo įrenginyje chromatografinėse aktyvuotos anglies kolonose atliekama dinaminė sorbcija. Toliau dujos patenka į ventiliacijos sistemą. Prieš išleidžiant dujas per 150 m aukščio kaminą į atmosferą, jos valomos aktyvuotos anglies ir aerosoliniais filtrais [82, 86].

Kietos būsenos medžiagų paviršiai dėl sąlyčio su skystosiomis ir dujinėmis radioaktyviosiomis atliekomis užteršiami radionuklidais, ir taip susidaro kietosios radioaktyviosios atliekos. Tokiu būdu susidaro didžiausia kietųjų atliekų dalis. Likusi dalis susidaro dėl reaktoriaus konstrukcinių dalių aktyvacijos neutronų sraute.

Poskyrio išvados

Radionuklidų, susidariusių reaktoriaus aktyviojoje zonoje vykstant branduoliams virsmams, sklaida vyksta per priverstinės cirkuliacijos ir dujų kontūrus. Išnagrinėjus dujinių ir skystųjų radioaktyviųjų atliekų susidarymo atominėje elektrinėje schemas, pastebėta, kad šių atliekų radionuklidinė sudėtis dėl vykdomų technologinių procesų gali kisti. Norint įvertinti radioaktyviųjų atliekų srautų radiacines charakteristikas, atsižvelgiant į elektrinės technologinius procesus, būtina parengti radioaktyviųjų atliekų srautų susidarymo schemą, kuri įvertintų kiekvienų atliekų nuklidinę sudėtį formuojančių technologinių grandžių įtaką srautų susidarymo procesui. Schema parodytų radioaktyviųjų atliekų kelią nuo radionuklidų susidarymo branduoliniame kure ir aktyvuojamuose reaktoriaus komponentuose iki radioaktyviųjų atliekų šalinimo esamais ir planuojamais būdais.

2.2 *Proporcingumo daugiklių nustatymo metodai*

Norint charakterizuoti radioaktyvias atliekas, reikia nustatyti joms būdingus nuklidinius vektorius, t. y. būdingą radionuklidinę sudėtį. Taikant nuklidinius vektorius radionuklidų koncentracijoms atliekose įvertinti, tiesiogiai matuojami tik vienas ar du lengviausiai matuojamų, atraminių nuklidų (^{60}Co ir ^{137}Cs), savitieji aktyvumai. Kitų saugai svarbių radionuklidų savitieji aktyvumai įvertinami padauginus lengvai matuojamų nuklidų savitruosius aktyvumus iš proporcingumo daugiklių. Proporcingumo daugikliai Ignalinos AE atliekoms buvo nustatyti derinant tiesioginio matavimo bei analitinius metodus.

2.2.1 *Eksperimentinis proporcingumo daugiklių nustatymas*

Pats tiksliausias būdas nustatyti proporcingumo daugiklius – tiesiogiai išmatuoti radionuklidų koncentracijas. Tačiau tokiu būdu lengvai galima nustatyti ne visų svarbių saugai radionuklidų koncentracijas, nes kai kurių ilgaamžių radionuklidų savitieji aktyvumai yra maži, jų skilimo schemose nėra vidutinės arba didelės energijos gama linijų, taip pat – dėl jonizuojančiosios spinduliuotės (visų pirma dėl alfa dalelių) sugerties atliekų medžiagose ir pakuotėse. Tokiems sunkiai matuojamiems radionuklidams priklauso dauguma transuraninių radionuklidų, kurie yra alfa spinduliavimą, dalijimosi produktai, pvz., ^{90}Sr , ^{99}Tc , kurie spinduliuoja išskirtinai tik beta daleles, aktyvacijos produktai, pvz., ^{59}Ni , ^{63}Ni , ^{55}Fe , kurių radioaktyvusis skilimas taip pat vyksta spinduliuojant beta spinduliuotę. Sunkiai matuojamų radionuklidų savitųjų aktyvumui nustatyti reikia taikyti sudėtingesnius matavimo ir bandinių paruošimo metodus. Proporcingumo daugikliai radionuklidams, kurie išmatuojami α -, β - ir γ - spektrometriniais metodais, nustatomi atliekant matavimų serijas ir statistiškai apdorojus rezultatus pagal tiriamų radionuklidų koreliaciją su atraminiais. Norint užtikrinti patikimus rezultatus, išmatuotos savitojo aktyvumo vertės turi patekti į pasikliautiną reikšmių sritį ir tenkinti

Grubbs'o testą. Viršutinė ir apatinė proporcingumo daugiklio ribos gaunamos iš koreliacijos funkcijos pasiklovimo intervalo.

Taikant matavimo metodus, galima nustatyti daugumos reikšmingųjų radionuklidų proporcingumo daugiklius. Fizikos institute išplėtotas gama spektrometrinis metodas radionuklidų aktyvumui matuoti. Šiame metode radioaktyviųjų branduolių fotoninė spinduliuotė yra registruojama gryno germanio (HPGe) detektoriumi [87]. Naudojant stacionarų ir nešiojamą γ spinduliuotės spektrometrus, su puslaidininkiniais gryno germanio detektoriais, atliekama kokybinė ir kiekybinė gama spektrometrinė analizė. Vadovaujantis dokumento [88] reikalavimais, stacionariais spektrometrais, naudojant tris germanio detektorius, iš kurių vienas leidžia atlikti matavimus taip vadinamojoje "šulinio" geometrijoje, atlikta kiekybinė analizė.

Detektorių santykinis efektyvumas – 38%, 30% ir 15% bei 2,05 keV, 1,80 keV ir 1,80 keV energinė skyra ties 1333 keV. ^{137}Cs ir ^{60}Co aptikimo riba, esant 100000 s matavimo trukmei, atitinkamai yra: detektoriumi su "šulinio" – 0,012 Bq ir 0,020 Bq, 30% santykinio efektyvumo detektoriumi – 0,13 Bq ir 0,15 Bq ir 15% santykinio efektyvumo detektoriumi – 0,15 Bq ir 0,18 Bq. Spektrometrai 122-1461 keV energijos ruože leidžia nustatyti visų radionuklidų absoliutinį aktyvumą su ne didesne kaip 6% paklaida [87]. Skaičiuojant radionuklidų, pasižyminčių skilimo schema su kaskadiniais šuoliais (^{60}Co , ^{94}Nb , ^{134}Cs), aktyvumą naudota sutapčių registravimo pataisa. Atliktos matavimo efektyvumo vertės pataisos dėl tiriamosios dalos tankio ir išmatuoto aktyvumo vertės dėl radioaktyviojo skilimo. Daugkartinės priverstinės cirkuliacijos kontūro vandenyje susidariusių trumpaamžių radionuklidų aktyvumas matuotas nešiojamu spektrometru, iškart paėmus aušalo ėminį. Radionuklidų aktyvumo neapibrėžtis – ne didesnė kaip 30%. Ge detektoriaus santykinis efektyvumas – 20%, energinė skyra – 1,80 keV ties 1333 keV. Šiuo spektrometru atlikti ir „in-situ“ matavimai Ignalinos AE pramoninės aikštelės sektoriuose, kuriuose kaupiamos ir rūšiuojamos gamybinės atliekos. Spektrometras leidžia nustatyti visų radionuklidų absoliutinį aktyvumą su ne didesne kaip 15% paklaida.

Sudėtingesnių metodų reikalauja α ir β spinduolių matavimas. Savitiesiems aktyvumams nustatyti taikomi radiocheminio atskyrimo metodai. Paprasčiausia paruošti tričio matavimo mėginius. Distiliuojamas visas tiriamojo 50 ml mėginys. Distiliavimo pabaigoje kolboje-gaudyklėje turi būti apie 50 ml distiliato. Distiliato tiriamosios dalos kiekis (4 ml) sumaišomas su scintiliatoriumi OptiPhase TriSafe (16 ml). Gautas tirpalas išmatuojamas scincilaicinių impulsų skaitikliu. Trichio matavimo efektyvumas – 0,35, o aptikimo riba 4,5 Bq/kg. Sudėtingesnis yra ir ^{14}C radiocheminis paruošimas. Iš tiriamųjų mėginių ^{14}C išskiriamas, pervedant organinę ir mineralinę anglį į CO_2 , o šią - į Na_2CO_3 . Na_2CO_3 susidaro leidžiant CO_2 per NaOH tirpalą. Natrio karbonato preparato tiriamosios dalos kiekis (4 ml) sumaišomas su scintiliatoriumi OptiPhase HiSafe 3 (16 ml), ir šis scintiliacinis tirpalas matuojamas impulsų skaitikliu. ^{14}C matavimo efektyvumas – 0,4, aptikimo riba – 0,05 Bq/kg.

Siekiant išlaikyti ėminio homogeniškumą ir sumažinti darbo sąnaudas, atskirų radionuklidų radiocheminės procedūros buvo pritaikytos kompleksiniam radionuklidų nustatymui iš vieno ėminio. Tam tikslui sukurta metodika, leidžianti iš to paties ėminio išskirti ir kiekybiškai nustatyti ^{55}Fe ir ^{90}Sr . ^{55}Fe ir ^{90}Sr išskyrimui naudotas ekstrakcinės chromatografijos metodas. Pirmiausia atominės adsorbcijos spektrofotometru nustatoma cheminių elementų koncentracija mėginyje. Atsižvelgiant į ėminio matricą, naudoti du radionuklidų grupavimo metodai: Fe ir Ni izotopus nusodinant į nuosėdas, o Sr jonams liekant filtrate; Fe jonus atskiriant nuo Ni, susidarius tirpiems Ni kompleksiniams junginiams, Fe lieka nuosėdose, o Sr - filtrate kartu su Ni jonais. Fe cheminės išėigos nustatymui į tiriamąją dalą, išskyrus metalo konstrukcijų mėginius, įvestas stabilios geležies žymeklis. Sr cheminės išėigos nustatymui į tiriamąją dalą įvestas stabilus stroncis ir ^{85}Sr žymeklis. Pvz., iš mėginio, atitinkamai jį paruošus, ^{90}Sr koncentruotas nusodinant etano dirūgštimi, o iš tiriamosios dalos ^{90}Sr išskirtas naudojant spec. Sr dervą, kad jį atskirtume nuo trukdančių beta spektrometriškai nuklidų (stabilių Ba, Ca, Pb jonų, ^{140}Ba , ^{40}K). Tiriamosios dalos kiekis nustatomas pagal ^{137}Cs ir ^{60}Co

savituosius aktyvumus, atlikus gama spektrometrinę analizę. Analizės pabaigoje atominės adsorbcijos spektrofotometru vėl įvertinus Sr^{2+} kiekį, apskaičiuojamas radiocheminės analizės efektyvumas. Cheminio išskyrimo efektyvumas ^{55}Fe – 0,65, ^{63}Ni – 0,8-0,85, ^{90}Sr – 0,6-0,7. Mėginių mineralizacijos sistema gali būti naudojama tik tuo atveju, kai tiriamoji dala yra $5 \cdot 10^{-4}$ - $2 \cdot 10^{-2}$ kg. Didesnio analizės kiekio mėginiai yra deginami mufelinėje krosnyje arba naudojamas deginimas rūgštimis [89 - 92].

Kaip pavyzdys, pateikiama vieno iš svarbiausių neutronų aktyvacijos būdu susidarančių radionuklidų – ^{63}Ni išskyrimo iš aušalo procedūra. ^{63}Ni išskiriant iš aušalo taikoma tokia procedūra:

1. Pirmiausia paimama tiriamojo mėginio apibrėžta dala, joje AAS su grafitiniu atomizatoriumi nustatomas pagrindinių matricoje esančių cheminių elementų kiekis (metodo paklaida 5 - 10 %).
2. Matavimo cilindru paimama 0,25 l aušalo.
3. Įnešami stabilūs Ni (2 mg Ni^{2+}), Cs, Co, Sr, Y, Fe nešikliai.
4. Kaitinama ant el. plytelės iki 70-80 °C.
5. Su 6 mol/l natrio hidroksidu pradedami nusodinti hidroksidai. Reakcijos pabaiga (pH yra 9) pasiekama su 1 mol/l natrio hidroksidu.
6. Filtruojama (FILTRAK 390 filtriniu popieriumi).
7. Hidroksidų nuosėdos praplaunamos demin. vandeniu su keliais lašais azano, filtratas išpilamas.
8. Hidroksidų nuosėdos ištirpinamos minimaliame 12 mol/l vandenilio chlorido tirpalo kiekyje.
9. Skiedimo būdu tirpalo koncentracija padaroma 9 mol/l.
10. Chromatografijos kolonėlė užpildoma jonų mainų derva Bio RaD AG 1x4, Cl- forma.
11. Kolonėlė praplaunama 30 ml 9 mol/l vandenilio chlorido tirpalu.
12. Tirpalas 1 ml/min. greičiu leidžiamas per jonų mainų dervą chromatografijos kolonėlėje.
13. Kolonėlė praplaunama 20 ml 9 mol/l ir 40 ml 4 mol/l vandenilio chlorido tirpalais.

14. Tiriamojo mėginio ir plovimo tirpalų eliuatus surenkame į naują cheminę stiklinę ir išgariname.
15. Nuosėdos ištirpinamos 2 ml 1 mol/l vandenilio chlorido tirpale.
16. Įpilama 2 ml 2 mol/l 2-hidroksi-1,2,3-propantrikarboksirūgšties amonio druskos tirpalas, kurio pH 8-9.
17. Ni kolonėlei paruošti naudojamas 15 ml 0,2 mol/l 2-hidroksi-1,2,3-propantrikarboksirūgšties amonio druskos tirpalas, kurio pH 8-9.
18. Leidžiamas tiriamasis tirpalas.
19. Kolonėlė praplaunama 25 ml 0,2 mol/l 2-hidroksi-1,2,3-propantrikarboksirūgšties amonio druskos tirpalu, kurio pH 8-9.
20. Nikelio jonai išplaunami iš kolonėlės 15 ml 3 mol/l vandenilio trioksonitratu.
21. Eliuatas išgarinamas, o nuosėdos ištirpinamos 2 ml vandens.
22. Iš to tūrio, naudojant automatinę pipetę, 1 ml pernešamas į specialų spektrometrinio matavimo indelį. ^{63}Ni cheminio išskyrimo efektyvumas nustatomas pagal įneštą nikelio jonų kiekį esantį tiriamojoje daloje.

Pu, Am, Cm izotopų koncentracijų nustatymo atliekose metodas, išskiriant radionuklidus iš kietųjų atliekų, remiasi jonų mainų chromatografijos metodu, o išskiriant radionuklidus iš skystųjų atliekų ekstrakcinės chromatografijos metodu [93 - 97]. Cheminei išėigai nustatyti, kaip žymekliai naudojami ^{242}Pu ir ^{243}Am , įpilant standartinių jų tirpalų. Virinant druskos ir azoto rūgščių mišinyje plutonis ir americis išplaunami iš sudeginto kietųjų atliekų laboratorinio ėminio matricos. Geležies hidroksidai naudojami kaip nuosėdos, su kuriomis minėti elementai kokybiškai dalyvauja sąsėdoje. Palaikant juos trivalenčių jonų formoje, druskos rūgšties tirpale uranas, geležis, polonis yra ekstrahuojami triizooktilamino tirpalu ksilene. Azoto rūgštyje plutonis formuoja nitratinį anijoninį kompleksą $[\text{Pu}(\text{NO}_3)_6]^{2-}$, kuris yra sorbuojamas ant anijonito. Americis atskiriamas, nes tokio komplekso neformuoja. Urano nitratinis kompleksas išplaunamas nuo anijonito azoto rūgšties tirpalu, o toris, kaip keturvalentis katijonas, — druskos rūgšties tirpalu.

Jonų mainų chromatografija kartojama du kartus reikiamam išvalymui užtikrinti. Americis atskirtas pirmo jonų mainų metu toliau nusodinamas su geležies hidroksidais, kurie tirpinami druskos rūgštyje. Iš rūgšties americis nusodinamas kalcio oksalatu. Taip išvaloma nuo geležies. Sudegintos kalcio oksalato nuosėdos tirpinamos azoto rūgštyje, ir toris nitratinio anijoninio komplekso pavidalu sorbuojamas ant anijonito. Toliau atliekamas americio išvalymas nuo lantanidų, anijonų mainų chromatografijos iš metanolinio azoto rūgšties tirpalo būdu. Plaunant anijonitą tiocianato tirpalu, lantanidai išsiplauna tiocianatinių kompleksų pavidalu. Toliau plaunant azoto rūgšties metanoliniu tirpalu išsiplaunama geležis. Americis išsiplaunamas druskos rūgšties metanoliniu tirpalu. Pu ir Am/Cm atliekant elektrolizę, nusodinami ant poliruotų nerūdijančio plieno diskų ir matuojami alfa spektrometru.

Skystosiose atliekose esantys Pu, Am ir Cm izotopai atskiriami naudojant ekstrakcinės chromatografijos dervas U/TEVA ir TRU (gamintojas Eichrom Industries, JAV). U/TEVA derva skirta urano ir keturvalenčių aktinoidų atskyrimui nuo matricos. Jos sudedamosios dalys yra dipentil pentilfosfonatas sorbuotas ant inertinio polimerinio nešėjo "Amberlite XAD-7" arba "AmberchromCG-71ms. TRU derva, skirta transuraninių elementų išskyrimui. Jos sudedamosios dalys – octil(fenil)-N,N-diizobutylkarbamoil fosfano oksidas ištirpintas tributil fosfate ir užneštas ant inertinio nešėjo "Amberlite XAD-7". Kolonėlės, užpildytos dervomis U/TEVA ir TRU, naudojamos aktinoidų radiocheminiam valymui ir atskyrimui. Po mėginio mineralizacijos neorganinėmis rūgštimis, jis praleidžiamas per nuosekliai sujungtas U/TEVA ir TRU kolonėles. U/TEVA ir TRU išardomos ir procedūra tęsiama naudojant TRU kolonėlę. TRU kolonėlė praplaunama 0,1 molio natrio nitrito dviejų molių azoto rūgšties tirpalu tam, kad oksiduoti Pu(III) iki Pu(IV). Devynių molių druskos rūgštis naudojama tam, kad kolonėlėje pakeistų nitratų aplinką į chloridų. Americis kartu su kiuriu išplaunami iš kolonėlės keturių molių druskos rūgštimi. Cheminio išskyrimo efektyvumas Pu – 0,5. Plutonio ir americio/kiurio frakcijos išgarinamos ir naudojamos ruošiant alfa spindulių šaltinius plutonio, americio ir kiurio izotopams matuoti. Atliekant elektrolizę,

Pu ir Am/Cm nusodinami ant poliruotų nerūdijančio plieno diskų ir išmatuojami alfa spektrometru.

^{129}I išskyrimui iš Ignalinos AE eksploatacinių radioaktyviųjų atliekų taip pat naudojamas jonų mainų chromatografijos ir skysčių ekstrakcijos metodas [98-102]. Kai analizuojamas kietos matricos mėginys, pirmiausiai atliekamas tiriamosios dalos sulydymas, o po to naudojami aukščiau minėti metodai. Cheminei išėigai nustatyti į tiriamąją dalą įdedamas stabilus jodo nešiklis ir ^{125}I žymeklis. Cheminio išskyrimo efektyvumas ^{129}I – 0,5. Tiriamosios dalos kiekis nustatomas pagal ^{131}I savitąjį aktyvumą, atlikus gama spektrometrinę analizę.

Scintiliacinių tirpalų spektrometru (STS) atliekama analizė beta spinduolių ^3H , ^{14}C , ^{55}Fe , ^{63}Ni , ^{90}Sr , ^{129}I , ^{241}Pu aktyvumams nustatyti [103-112], kurios rezultatai naudojami mėginio savitojo aktyvumo (Bq/kg) arba tūrinio aktyvumo (Bq/l) skaičiavimui pagal formulę:

$$C = \frac{A \cdot v}{m(v_t)E_f}, \quad (2.2.1.1)$$

čia A - STS matavimo rezultatas, Bq/ml, v – galutinis tūris, į kurį pervedama tiriamoji dala, ml, m – tiriamosios dalos masė, kg, v_t – tiriamosios dalos tūris, ml, E_f – radiocheminio išskyrimo efektyvumas, vieneto dalimis.

Kiekybinei β spinduolių analizei atliekamas scintiliacinių tirpalų spektrometro Quantulus-1220 matavimo efektyvumo priklausomybės nuo scintiliacinio tirpalo gesinimo laipsnio tyrimas. Tam naudojami standartiniai ^3H , ^{55}Fe , ^{63}Ni , ^{90}Sr tirpalai, kurių aktyvumai žinomas. Buvo sudarytos matavimo efektyvumo priklausomybės nuo gesinimo laipsnio kreivės. Nustačius matavimo efektyvumą ^3H – 0,035, ^{55}Fe – 0,3, ^{63}Ni – 0,7, ^{90}Sr – 0,85, ^{241}Pu – 0,35 įvertintos radionuklidų aptikimo ribos, kai matavimo trukmė 1 val. - ^3H – 0,03 Bq, ^{55}Fe – 0,036 Bq, ^{63}Ni – 0,022 Bq, ^{90}Sr – 0,027 Bq, ^{241}Pu – 0,032 Bq. Sunkiai matuojamų radionuklidų aktyvumo matavimų neapibrėžtis ne didesnė kaip 10%.

Aktinoidų aktyvumas išmatuotas α spektrometru, kurio aptikimo slenkstis, esant 100000 s matavimo trukmei, yra 0,001 Bq. Tai atitinka savitąjį

aktyvumą 0,4 Bq/kg, esant 22% matavimo neapibrėžčiai. Aktyvumams nustatyti naudojamas greitas, jautrus ir užtikrinantis puikų apvalymo laipsnį metodas, kurio galimybes gerai parodo plutonio frakcijos apvalymo nuo įvairių nuklidų daugikliai: Po $\geq 1,2 \times 10^4$, Ra $\geq 2,9 \times 10^6$, Th $\geq 5,5 \times 10^4$, U $\geq 5,2 \times 10^5$, Np $\geq 1,5 \times 10^2$, Am $\geq 3,4 \times 10^5$, Cm $\geq 3,8 \times 10^5$, Cf $\geq 2,2 \times 10^6$ (ėminiai papildomai valomi nuo Np, kurio papildomą apvalymo daugiklį nustatyti nebuvo galimybės). Cheminės išėigos kinta: Pu nuo 70% iki 90%, Am nuo 60% iki 80%, U nuo 70% iki 90%. Minimalus aptikimo slenkstis: Pu – 0,001 Bq/ėminyje, Am – 0,0015 Bq/ėminyje, U – 0,001 Bq/ėminyje.

2.2.1.1. lentelė. Radiometrijai naudotų prietaisų sąrašas ir matuoti radionuklidai

Eil. Nr.	Prietaiso pavadinimas	Registruojama spinduliuotė	Matuoti radionuklidai
1-2 3	Stacionarūs gama spektrometrai: EG&G Spectrum Master 919 (arba CANBERRA Inspector) su jutikliais GWL-170230 ir GMX-130180 EG&G ORTEC DSPEC jr 2.0 su jutikliu GEM-15P4	Gama	^{137}Cs , ^{60}Co , ^{58}Co , ^{59}Fe , ^{54}Mn , ^{51}Cr , ^{65}Zn , ^{94}Nb , ^{95}Zr , ^{95}Nb , $^{110\text{m}}\text{Ag}$, ^{131}I , ^{140}Ba , ^{140}La , ^{134}Cs , $^{166\text{m}}\text{Ho}$, ^{181}Hf
4	Nešiojamas gama spektrometras CANBERRA Inspector 2000 su jutikliu GC-2018	Gama	^{130}I , ^{132}I , ^{133}I , ^{134}I , ^{135}I , ^{41}Ar , ^{133}Xe , ^{135}Xe , ^{138}Cs , ^{239}Np , ^{104}Tc , ^{99}Mo , ^{56}Mn , ^{187}W , ^{87}Kr , ^{88}Kr , ^{82}Br , ^{93}Sr
5 6	Skystų scintiliatorių spektrometras. PerkinElmer Quantulus-1220 Proporcinis beta skaitiklis EBERLINE FHT 770 T6	Beta	^3H , ^{14}C , ^{55}Fe , ^{63}Ni , ^{90}Sr , ^{129}I , ^{241}Pu
7 8	Vienkanalis alfa spektrometras su jutikliu CANBERRA Aštuonių kanalų alfa spektrometras EG&G ORTEC Octete Plus	Alfa	^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am , ^{243}Cm , ^{244}Cm

2.2.2 Kompiuterinio modeliavimo metodas

Kai radionuklido savitasis aktyvumas radioaktyviojoje atliekoje mažesnis už turimo matavimo prietaiso aptikimo ribą, jį galima įvertinti tik

modeliuojant. Tam naudojami branduolinio kuro evoliucijos reaktoriuje ir reaktoriaus konstrukcijų aktyvacijos kompiuteriniai modeliai. Kompiuterinis modeliavimas gali būti naudojamas ir tais atvejais, kai atlikti matavimus yra per daug sudėtinga arba brangu. Jeigu radionuklidas reaktoriuje susidaro dėl neutronų sąveikos su medžiaga, tai, žinant reaktoriaus darbo režimą bei branduolinio kuro išdegimą modeliuojant kompiuterinėmis programomis, tokiomis kaip SCALE su ORIGEN, galima suskaičiuoti radionuklidų aktyvumus branduoliniame kure ir reaktoriaus konstrukciniuose elementuose [57]. Tokių kompiuterinių programų taikymas RBMK reaktoriams yra pademonstruotas [5-9, 12-14, 16, 18, 23, 24]. Norint panaudoti radionuklidų santykius su atraminiais radionuklidais (gautus skaičiuojant), reikia atskirai įvertinti šių radionuklidų pernašą į radioaktyvias atliekas. Tačiau tai nebūtina, kai yra kitas pagalbinis radionuklidas, kurio fizinės ir cheminės savybės panašios į nematuojamo radionuklido savybes, ir kurio aktyvumas taip pat gali būti įvertintas kompiuteriniu modeliavimu. Geriausiai tam tinka kitas to paties elemento izotopas. Tokiu atveju galima nustatyti teorinį šių dviejų radionuklidų aktyvumų santykį. Pagalbinio radionuklido savitasis aktyvumas radioaktyviosiose atliekose gali būti nustatytas tiesiogiai išmatuojant, arba pusiau empiriniu metodu (pvz., pagal santykį su atraminiu radionuklidu). Nematuojamo radionuklido savitasis aktyvumas A_i gali būti nustatomas pagalbinio radionuklido savitąjį aktyvumą padauginus iš šių dviejų radionuklidų aktyvumo branduoliniame kure santykio:

$$A_i = k_{ij} \times k_j \times A_a, \quad (2.2.2.1)$$

čia A_a – atraminio radionuklido aktyvumas, k_j – pagalbinio radionuklido proporcingumo koeficientas, k_{ij} – proporcingumo koeficientas tarp nematuojamo ir pagalbinio radionuklido aktyvumų.

Toks įvertinimas (naudojant pagalbinį radionuklidą) paprastai taikomas alfa spinduoliams, kurių aktyvumas gali būti susietas su ^{238}U , ^{239}Pu , ^{244}Cm arba bendru alfa spinduolių aktyvumu, taip pat gali būti taikomas ^{129}I , kaip pagalbinį radionuklidą naudojant ^{131}I . Aktyvacijos proceso modeliavimo

rezultatai gali būti naudojami tokių radionuklidų, kaip ^{59}Fe ir ^{55}Fe bei ^{93}Zr ir ^{95}Zr , aktyvumų santykiams nustatyti.

Ignalinos AE eksploatacinėse radioaktyviosiose atliekose neįmanoma, arba dėl didelių išlaidų netikslinga, išmatuoti $^{93\text{m}}\text{Nb}$, ^{93}Zr savituosius aktyvumus. Šių radionuklidų savitieji aktyvumai gali būti įvertinti modeliuojant, kai žinomas teorinis ^{93}Zr ir ^{95}Zr arba ^{93}Zr ir ^{94}Nb bei $^{93\text{m}}\text{Nb}$ ir ^{94}Nb aktyvumų santykis. Sunku atskirai išmatuoti ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{243}Cm ir ^{244}Cm aktyvumą, nes alfa spektrometrijos būdu neatskiriamos ^{239}Pu ir ^{240}Pu bei ^{243}Cm ir ^{244}Cm smailės, o matuojamas tik suminis dviejų plutonio ar dviejų kiurio izotopų aktyvumas. Modeliavimo būdu apskaičiuotas ^{239}Pu ir ^{240}Pu , ^{243}Cm ir ^{244}Cm aktyvumų santykis naudojamas atskirai nematuojamų radionuklidų aktyvumams pagal jų suminį aktyvumą nustatyti.

Pirmiausia atliekami skaičiavimai, panaudojant branduolinio kuro evoliucijos reaktoriuje ir reaktoriaus konstrukcijų aktyvacijos kompiuterinius modelius. Kadangi reaktoriuje radionuklidai pernešami daugiausiai per aušalą, preliminariai vertinant, galima apsiriboti radionuklidais, susidaranciais daugkartinės priverstinės cirkuliacijos pirminio kontūro vandenyje. Branduolinio kuro sudėtį galima suskaičiuoti programa Origen-ARP. Kompiuteriniam branduolinio kuro evoliucijos modeliavimui reikalingi įvedimo parametrai yra kuro rinklės masė bei geometrija, pradinis kuro išodrinimas, rinklės galios priklausomybė nuo jos buvimo reaktoriuje laiko bei jos išdegimas, konstrukcinių rinklės bei kuro kanalo medžiagų sudėtis. Neutronų sąveika su medžiaga apibūdinama vienos grupės pagavos ir dalijimosi skerspjuviais, kurie paimami iš specialiai RBMK-1500 tipo reaktoriui sudarytų bibliotekų. Bibliotekos buvo sudarytos, naudojant paketo SCALE4.4a programą SAS2 2,0÷3,0% išodrinimo ^{235}U kurui be arba su atitinkamu išdegančio Er priemaišos kiekiu. SAS2 programos panaudojimas RBMK reaktoriui pademonstruotas [113]. Kuro išdegimas gali kisti nuo 0 iki 45 MWd/kgU, aušiklio tankis - 0,1÷1,0 g/cm³ ribose. Modeliuojant pasirinktas pradinio 2,4% išodrinimo ^{235}U kuras su 0,41% Er priemaiša, kurio kiekis buvo didžiausias. Apskaičiuojama kuro sudėtis 12 MW d/kgU išdegimui (vidutinis

kuro išdegimas Ignalinos AE reaktoriuose) ir 30 MWd/kgU išdegimui (maksimalus kuro išdegimas). Modeliuojant laikyta, kad kuro kasetėje yra 112 kg urano, o vidutinė kasetės galia yra 2,464 MW. Taip pat buvo atlikti palyginamieji skaičiavimai 2,0% ir 2,6% išsodinimo kuro atvejams. Nustatyta, kad modeliavimo rezultatai pakinta nereikšmingai, jeigu paimamas kitokio išsodinimo kuras. Palyginimui apskaičiuota kuro sudėtis 5, 16 ir 21 MWd/kgU išdegimui. Kuro apvalkalo, kuro kasetės konstrukcinių medžiagų, kuro kanalo aktyvacija taip pat įvertinta, naudojantis Origen-ARP programa. Konstrukcinių medžiagų sudėtis buvo paimta iš [5, 82]. ORIGEN-ARP aktinidus skaičiuoja kiek didesnės energijos neutronų spektrui ir tai lemia 10-20% paklaidą. Kai kurių radioaktyviųjų srautų charakterizavimui taikyta programinio paketo SCALE 5 seka TRITON [114]. Atsižvelgiama į visas svarbias aktyvacijos požūriū priemaišas, kurių duomenys pateikiami 2.2.2.1 lentelėje. Įvertinama vandens priemaišų aktyvacija, taip pat šilumą išskiriančios kuro rinklės priemaišų aktyvacija.

i -tojo nuklido aktyvumas A_i^s , gautas aktyvuojant priemaišas kuro kanale su šilumą išskiriančia kuro rinkle, buvo panaudotas kuro kanale aktyvuoto nuklido aktyvumo A_i^k apskaičiuoti pagal tokią formulę:

$$A_i^k = (A_i^s - A_i^r) \times K_i, \quad (2.2.2.2)$$

čia A_i^r yra i -tojo nuklido aktyvumas, gautas aktyvuojant priemaišas tik kurą išskiriančioje rinklėje, o

$$K_i = \frac{1 - \exp\left(\frac{-\ln 2t_r}{T_{1/2}}\right)}{1 - \exp\left(\frac{-\ln 2t_k}{T_{1/2}}\right)}, \quad (2.2.2.3)$$

čia t_r – šilumą išskiriančios rinklės buvimo reaktoriuje laikas (dienomis), t_k – kanalo laikas reaktoriuje (dienomis), $T_{1/2}$ – nuklido pusėjimo trukmė (dienomis). Skilimo pataisos koeficientas K_i įvedamas tam, kad atsižvelgtume į i -ojo nuklido suskilimą, kol kuro kanalas ir rinklė yra reaktoriuje.

2.2.2.1. lentelė. Priemaišos vandenyje, šilumą išskiriančioje kuro rinklėje ir kuro kanale su šilumą išskiriančia kuro rinkle

Cheminis elementas	Šilumą išskirianti kuro rinklė		Kuro kanalas su šilumą išskiriančia kuro rinkle	
		Masė, g		Masė, g
Zr	Strypas ir kuro elementų apvaskalai	36026	Strypas, kuro elementų apvaskalai ir kuro kanalas	81826
Nb		483		1659
Hf	ZrNb lydinys ir nerūdijančio plieno gardelė	15	ZrNb lydinys ir nerūdijančio plieno gardelė	33
Fe		728		736
Ni		106		111
Al		2		4
Cr		183		183
Ti		12		15
C		10		23
Be		0,73		1,67
Ca		10,96		25,06
Cd		0,01		0,03
Co		0,74		0,78
Cu		3,86		6,21
Mn		16,70		18,58
N		3,36		3,72
Si		8,128		8,128
Cl	Vanduo	0,005	Vanduo	0,005
S		0,023		0,023
F		0,037		0,037

Vietoje Origen-APR gali būti naudojama ir kita programinė įranga. Anksčiau minėtais kompiuterinių modeliavimų būdais gaunamas ilgas radionuklidų sąrašas, bet ne visi radionuklidai yra vienodai svarbūs, vertinant laidojamų atliekų poveikį žmogui ir aplinkai.

2.3 Eksperimentinių duomenų apdorojimas nustatant proporcingumo daugiklius

Proporcingumo daugikliai skaičiuojami pagal tiesinį logaritmų regresijos metodą, kuris minimas 1.3.2.1 lentelėje. Apdorojant eksperimentiškai gautas radionuklidų aktyvumo vertes, proporcingumo daugiklis tarp atraminio ir sunkiai matuojamų nuklidų aktyvumų (k) išreiškiamas formule:

$$\lg(A_i) = a + b \lg(A_a), \quad (2.3.1)$$

Tiriant sunkiai matuojamo radionuklido priklausomybę nuo atraminio, x ašyje atidedamos atraminio, o y – sunkiai matuojamo radionuklido aktyvumo vertės. Todėl vietoj A_i įrašius Y , o A_a – X , iš (2.3.1) ganama išraiška:

$$Y = 10^a \cdot X^b. \quad (2.3.2)$$

Tuomet proporcingumo daugiklio išraiška:

$$k = (10^a \cdot \bar{X}^b) / \bar{X}, \quad (2.3.3)$$

čia \bar{X} – lengvai matuojamo nuklido vidutinis aktyvumas, a ir b – konstantos.

Aproksimuojant eksperimentinius duomenis, įvertinama aproksimacijos funkcijos pasiklivimo sritis, kuri parodo, kiek teisingai nustatytos aproksimacijos funkcijos vertės nepriklausomiems kintamiesiems x_i . $100 \cdot \alpha\%$ patikimumu galima užtikrinti, kad teisinga funkcijos vertė yra pasiklivimo srities ribose.

Aproksimacijos funkcijos pasiklivimo ribų išraiška:

$$\bar{Y}_{x_0} \pm t(1 - \alpha/2, n - 2) \cdot s\{\bar{Y}_{x_0}\}, \quad (2.3.4)$$

čia: \bar{Y}_{x_0} – tikėtiniausia Y reikšmė taške x_0 , t – Stjudento koeficientas, n – duomenų (laisvės laipsnių) skaičius, $(1 - (1 - \alpha)/2)$ reikšmingumo lygmuo, kur α – pasiklivimo lygmuo (pasirinkta vertė 0,95);

$$s^2\{\bar{Y}_{x_0}\} = S_{\bar{Y}_{x_0}} \cdot [1/n + (x_0 - \bar{x})^2 / \sum (x_i - \bar{x})^2], \quad (2.3.5)$$

čia, $S_{\bar{Y}_{x_0}}$ – vidutinis kvadratinis dydžio \bar{Y}_{x_0} nuokrypis.

Tai pat įvertiname reikšmių išsibarstymo sritį α pasiklovimo lygiui. Į šią sritį, atliekant pakartotinį nepriklausomą matavimą, patektų $100 \cdot \alpha\%$ visų išmatuotų reikšmių. Prognozuojamos išsibarstymo reikšmių ribos išreiškiamos:

$$\bar{Y}_{x_0} \pm t(1 - \alpha / 2, n - 2) \cdot s\{prog\}, \quad (2.3.6)$$

$$s^2\{prog\} = S_{Y_{x_0}} + s^2\{\bar{Y}_{x_0}\}. \quad (2.3.7)$$

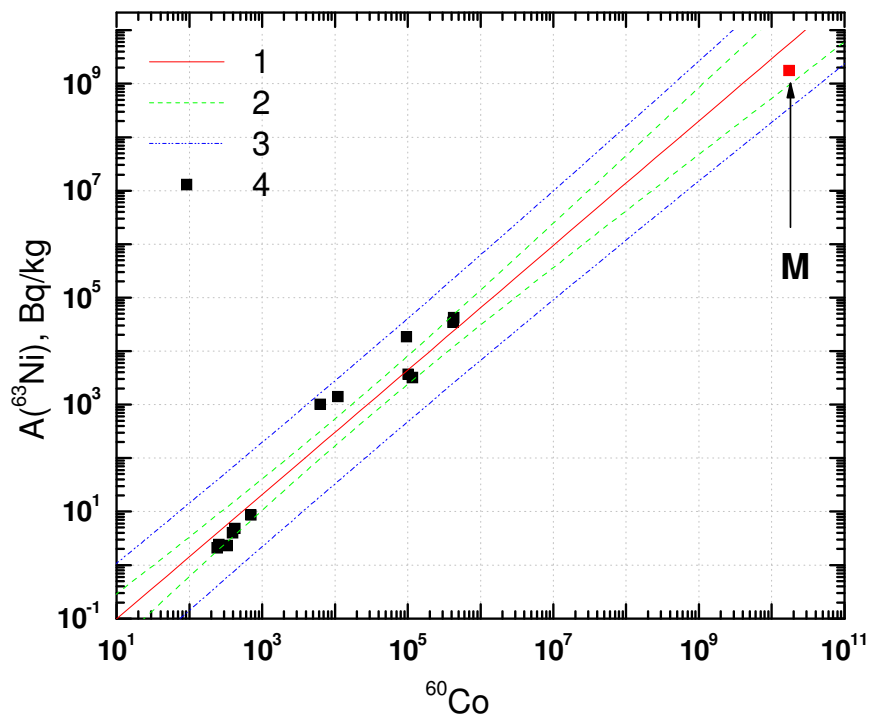
Taikant proporcingumo daugiklių metodą, įvertinamas koreliacijos koeficientas tarp išmatuotų radionuklidų ir atraminio radionuklido aktyvumo verčių. Koreliacijos koeficiento išraiška:

$$R = \frac{n \sum xy - \sum x \sum y}{\sqrt{[n \sum x^2 - (\sum x)^2][n \sum y^2 - (\sum y)^2]}}, \quad (2.3.8)$$

čia n – bandinių skaičius, o x ir y – išmatuotos kintamųjų reikšmės.

Kaip matyti iš (2.3.2) išraiškos, logaritmuotus eksperimentinius duomenis aproksimuojant tiesinės regresijos metodu, radionuklidų aktyvumų priklausomybes patogiu atvaizduoti logaritminėje skalėje. Pvz., 2.3.1 paveikslėlyje pateikiama ^{63}Ni aktyvumo priklausomybė nuo ^{60}Co bitumuotose atliekose. Čia: 1 - tiesinė duomenų aproksimacija, 2 - aproksimacijos pasiklovimo srities ribos (pasiklovimo lygmuo 0,95), 3 - prognozuojamo išsibarstymo ribos (pasiklovimo lygmuo 0,95), 4 - garinimo liekanos ir bitumuotų atliekų matavimų duomenys, M – suskaičiuotas santykis modeliuojant reaktoriaus konstrukcijų aktyvaciją. Aproksimuojant duomenis, gauti šie parametrai: $a = -2,17208$ (paklaida 0,26359) ir $b = 1,16387$ (paklaida 0,05565). Apatinei pasiklovimo srities ribai $a = -2,7464$, $b = 1,04262$, viršutinei pasiklovimo srities ribai $a = -1,59776$, $b = 1,28512$. Išmatuotų bandinių skaičius $n = 14$. Gauta koreliacijos koeficiento reikšmė $R = 0,98656$. Koeficientas a nurodo aproksimacijos kreivės kryptį ir nusako proporcingumo daugiklį. Koeficientas b idealiu atveju būtų lygus vienetui. Tuomet proporcingumo daugiklis būtų taikytinas bet kokiai savitųjų aktyvumų sričiai. Šiuo atveju b nelygus vienetui, tai apriboja proporcingumo daugiklių metodo taikymą

aktyvumų srityje, kurią aprėpia kontroliniai eksperimentiniai duomenys. Pagal koeficiento b nukrypimą nuo vieneto galima spręsti, kokią paklaidą darytume proporcingumo daugiklių metodą taikydami platesnei aktyvumų sričiai.



2.3.1 pav. ^{63}Ni ir ^{60}Co aktyvumų priklausomybė bitumuotose atliekose.

Norint įvertinti, ar duomenyse nėra išsiskiriančių taškų, taikytas Grubb's testas. Duomenų seka x_i , kai $i = 1, 2, \dots, n$ išrikiuota didėjančia tvarka. Norint įvertinti, ar didžiausias stebimas dydis yra išsišokęs, naudojant Grubbs'o testą, reikia suskaičiuoti Grubbs'o statistinį dydį G_p ,

$$G_n = (x_n - \bar{x}) / S_x,$$

čia \bar{x} - aritmetinis vidurkis, S_x - vidutinis kvadratinis x nuokrypis.

Norint įvertinti mažiausio stebimo dydžio svarbą, reikia suskaičiuoti dydį

$$G_p = (\bar{x} - x_1) / S_x. \quad ($$

a) Jei šio dydžio vertė, kai statistinis reikšmingumas (p vertė) yra lygus 5%, mažesnė ar lygi jo kritinei vertei, tuomet tiriamas dydis laikomas priimtiniu ir teisingu.

b) Jei šio dydžio vertė, kai statistinis reikšmingumas yra lygus 5%, yra didesnė negu jo kritinė vertė ir, kai statistinis reikšmingumas yra lygus 1%, yra mažesnė už jo kritinę vertę, tuomet tikrinamas dydis vadinamas „atsilikėliu“.

c) Jei šio dydžio vertė, kai statistinis reikšmingumas yra lygus 1%, yra didesnė negu jo kritinė vertė, tuomet tikrinamas dydis vadinamas „statistiniu išsišokėliu“.

Grubbs'o testo kritinės vertės pateikiamos 2.3.1-ojoje lentelėje. Kai bet kokie „atsilikėliai“ ir/ar „statistiniai išsišokėliai“ lieka nepaaiškinti ar atmesti, „atsilikėliai“ yra išsaugomi kaip teisingi, o „statistiniai išsišokėliai“, jei nėra pagrįstų priežasčių jų palikti, – išmetami.

2.3.1. lentelė. Grubbs' testo kritinės vertės [64]

Ėminių Skaičius	Statistinis reikšmingumas		Ėminių skaičius	Statistinis reikšmingumas	
	1%	5%		1%	5%
3	1,155	1,155	22	3,060	2,758
4	1,496	1,481	23	3,087	2,781
5	1,764	1,715	24	3,112	2,802
6	1,973	1,887	25	3,135	2,822
7	2,139	2,020	26	3,157	2,841
8	2,274	2,126	27	3,178	2,859
9	2,387	2,215	28	3,199	2,876
10	2,482	2,290	29	3,218	2,893
11	2,564	2,355	30	3,236	2,908
12	2,636	2,412	31	3,253	2,924
13	2,699	2,462	32	3,270	2,938
14	2,755	2,507	33	3,286	2,952
15	2,806	2,549	34	3,301	2,965
16	2,852	2,585	35	3,316	2,979
17	2,894	2,620	36	3,330	2,991
18	2,932	2,651	37	3,343	3,003
19	2,968	2,681	38	3,356	3,014
20	3,001	2,709	39	3,369	3,025
21	3,031	2,733	40	3,381	3,036

Skyriaus išvados:

Metodiniame skyriuje aptarta įranga ir taikomos metodikos leidžia eksperimentiškai nustatyti literatūros apžvalgoje nagrinėtų šalių praktikoje

įvardytų reikšmingais saugai radionuklidų ^3H , ^{14}C , ^{63}Ni , ^{90}Sr , ^{129}I , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Pu , ^{241}Am koncentracijas.

Eksperimentinis tikslumas: γ – spinduolių savitųjų aktyvumų neapibrėžtis 6% 40-1280 keV energijų intervale, β – spinduolių savitojo aktyvumo neapibrėžtis neviršija 10%, α – spinduolių aktyvumų neapibrėžtis 22%. Tokio tikslumo pakanka, norint nustatyti proporcingumo daugiklius.

Jei savitojo aktyvumo vertė nesiekia eksperimentinės aptikimo ribos, kompleksiskai turi būti taikomi teoriniai ir eksperimentiniai metodai nustatant nuklidinį vektorių.

3 REZULTATAI

3.1 Reikšmingų radionuklidų sąrašo sudarymas

Origen-ARP programa modeliuojant branduolinio kuro evoliuciją reaktoriuje ir neutroninę aktyvaciją kuro kanale ir šilumą išskiriančioje rinklėje, sudarytas pradinis pilnas radionuklidų sąrašas, suskaičiuoti aktyvumai ir skilimo pataisos koeficientai K_i atsižvelgiant į i-ojo nuklido suskilimą, kol kuro kanalas ir rinklė yra reaktoriuje pateikti 3.1.1 lentelėje.

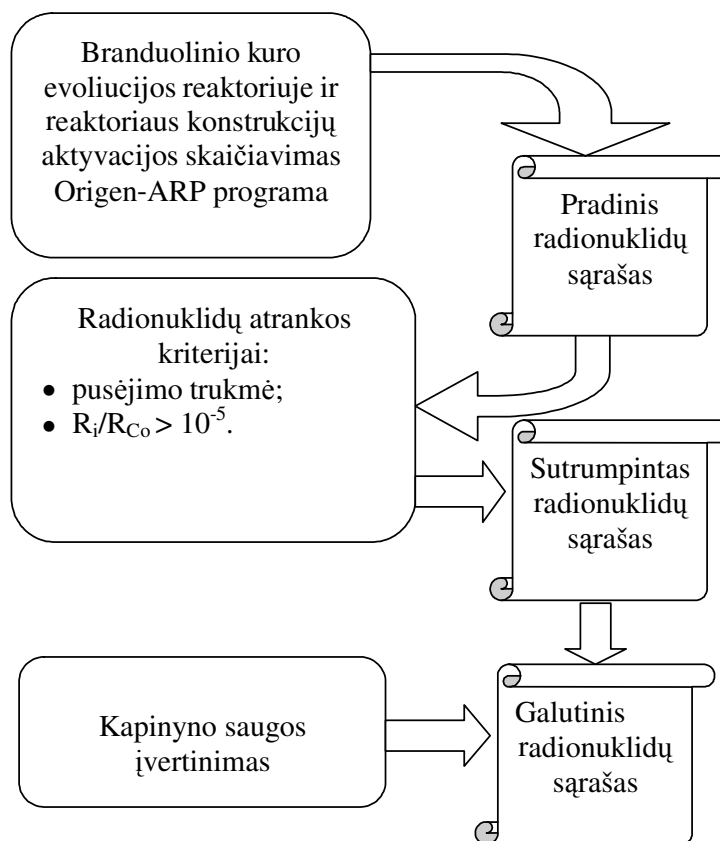
3.1.1. lentelė. Nuklidų aktyvumai ir skilimo pataisos koeficientai vienai rinklei

Nuklidas	Aktyvacijos produktų aktyvumas, Bq		Dalijimosi produktų ir aktinoidų aktyvumas, Bq	K_i
	Šilumą išskirianti kuro rinklė	Kuro kanalas		
^3H	$8,03 \cdot 10^8$	$7,33 \cdot 10^9$	$7,10 \cdot 10^{11}$	8,46
^{14}C	$1,24 \cdot 10^9$		$1,78 \cdot 10^5$	
^{36}Cl	$2,01 \cdot 10^5$			
^{41}Ca	$1,42 \cdot 10^7$	$1,79 \cdot 10^7$		1,00
^{45}Ca	$7,33 \cdot 10^{10}$	$1,26 \cdot 10^{12}$		13,53
^{51}Cr	$3,54 \cdot 10^{13}$			
^{54}Mn	$2,89 \cdot 10^{11}$	$2,96 \cdot 10^9$		1,00
^{56}Mn	$8,29 \cdot 10^{13}$	$1,32 \cdot 10^{13}$		1,43
^{55}Fe	$7,33 \cdot 10^{12}$	$7,40 \cdot 10^{10}$		1,00
^{59}Fe	$7,29 \cdot 10^{11}$	$2,35 \cdot 10^{10}$		3,18
^{58}Co	$6,96 \cdot 10^{11}$	$3,33 \cdot 10^{10}$		1,00
^{60}Co	$1,73 \cdot 10^{12}$	$6,69 \cdot 10^{10}$		1,01
^{59}Ni	$9,77 \cdot 10^8$	$2,33 \cdot 10^8$		5,25
^{63}Ni	$1,24 \cdot 10^{11}$	$7,51 \cdot 10^{10}$		13,53
^{65}Zn	$5,70 \cdot 10^8$	$4,51 \cdot 10^9$		12,70
^{79}Se			$1,04 \cdot 10^8$	
^{88}Rb			$2,09 \cdot 10^{15}$	
^{89}Rb			$2,77 \cdot 10^{15}$	
^{90}Sr	$1,96 \cdot 10^5$	$2,48 \cdot 10^5$	$1,38 \cdot 10^{14}$	1,00
^{93}Zr	$2,06 \cdot 10^8$	$2,60 \cdot 10^8$		1,00
^{95}Zr	$1,21 \cdot 10^{14}$	$2,08 \cdot 10^{15}$	$4,51 \cdot 10^{15}$	13,53
$^{93\text{m}}\text{Nb}$	$3,60 \cdot 10^{11}$	$5,15 \cdot 10^{11}$	$6,36 \cdot 10^7$	1,00
^{94}Nb	$1,95 \cdot 10^{10}$	$2,60 \cdot 10^{11}$	$1,12 \cdot 10^5$	9,36
^{95}Nb	$1,30 \cdot 10^{14}$	$2,26 \cdot 10^{15}$	$4,51 \cdot 10^{15}$	13,52
^{97}Nb	$1,63 \cdot 10^{14}$	$2,06 \cdot 10^{14}$	$4,11 \cdot 10^{15}$	1,00
^{99}Mo	$5,92 \cdot 10^8$	$7,44 \cdot 10^8$	$4,59 \cdot 10^{15}$	1,00
^{99}Tc			$2,19 \cdot 10^{10}$	
^{101}Tc			$4,06 \cdot 10^{15}$	

3.1.1. lentelė. Nuklidų aktyvumai ir skilimo pataisos koeficientai

Nuklidas	Aktyvacijos produktų aktyvumas, Bq		Dalijimosi produktų ir aktinoidų aktyvumas, Bq	K_i
	Šilumą išskirianti kuro rinklė	Kuro kanalas		
^{104}Tc			$2,45 \cdot 10^{15}$	
$^{110\text{m}}\text{Ag}$	$2,62 \cdot 10^4$	$5,22 \cdot 10^4$	$1,22 \cdot 10^{12}$	1,00
^{126}Sn			$6,40 \cdot 10^8$	
^{129}I			$4,37 \cdot 10^7$	
^{130}I			$2,27 \cdot 10^{13}$	
^{131}I			$2,39 \cdot 10^{15}$	
^{132}I			$3,52 \cdot 10^{15}$	
^{133}I			$5,07 \cdot 10^{15}$	
^{134}I			$5,70 \cdot 10^{15}$	
^{135}I			$4,81 \cdot 10^{15}$	
^{133}Xe			$4,92 \cdot 10^{15}$	
^{135}Xe			$1,23 \cdot 10^{15}$	
$^{135\text{m}}\text{Xe}$			$1,01 \cdot 10^{15}$	
^{134}Cs			$7,92 \cdot 10^{13}$	
^{135}Cs			$5,96 \cdot 10^8$	
^{137}Cs			$1,64 \cdot 10^{14}$	
^{138}Cs			$4,77 \cdot 10^{15}$	
^{133}Ba			$2,77 \cdot 10^4$	
^{140}Ba			$4,59 \cdot 10^{15}$	
^{140}La			$4,74 \cdot 10^{15}$	
$^{166\text{m}}\text{Ho}$	$5,92 \cdot 10^7$		$8,70 \cdot 10^4$	
^{181}Hf	$9,84 \cdot 10^{12}$	$1,58 \cdot 10^{14}$		13,46
^{182}Hf	$3,74 \cdot 10^3$	$4,48 \cdot 10^3$		1,00
^{187}W	$2,13 \cdot 10^{12}$			13,53
^{234}U			$4,44 \cdot 10^9$	
^{235}U			$1,11 \cdot 10^8$	
^{236}U			$5,07 \cdot 10^8$	
^{238}U			$1,34 \cdot 10^9$	
^{237}Np			$1,68 \cdot 10^8$	
^{239}Np			$4,14 \cdot 10^{16}$	
^{238}Pu			$5,07 \cdot 10^{11}$	
^{239}Pu			$6,48 \cdot 10^{11}$	
^{240}Pu			$8,29 \cdot 10^{11}$	
^{241}Pu			$1,18 \cdot 10^{14}$	
^{242}Pu			$8,66 \cdot 10^8$	
^{241}Am			$7,22 \cdot 10^{10}$	
^{242}Am			$3,40 \cdot 10^{13}$	
^{243}Am			$2,62 \cdot 10^9$	
^{243}Cm			$1,35 \cdot 10^9$	
^{244}Cm			$8,33 \cdot 10^{10}$	

Didžiausia bendrojo aktyvumo dalis tenka trumpaamžiams radionuklidams, kurių daugumos pusėjimo trukmė neviršija kelių dienų. ^{239}Np ($T_{1/2} - 2,3 \text{ d}$) tenka 36% aktyvumo, o ^{131}I , ^{132}I , ^{133}I , ^{134}I , ^{135}I , ^{133}Xe , ^{135}Xe , ^{138}Cs , ^{140}Ba , ^{140}La , ^{101}Tc , ^{104}Tc , ^{95}Zr , ^{95}Nb , ^{97}Nb , ^{99}Mo , ^{88}Rb , ^{89}Rb – po kelis procentus bendrojo aktyvumo. Visi šie radionuklidai gana greitai suskyla ir ilgalaikės saugos požiūriu yra nereikšmingi. Todėl, charakterizuojant atliekas, nebūtina nurodyti visų susidariusių radionuklidų koncentracijas. Reikšmingų radionuklidų sąrašas priklauso nuo radioaktyviųjų atliekų savybių, susidarymo šaltinio, pernašos iš šaltinio į atliekas kelio bei numatomo atliekų šalinimo būdo. Šį sąrašą galima sudaryti pagal 3.1.1 pav. pateikiamą schemą.



3.1.1 pav. Saugos požiūriu reikšmingų radionuklidų sąrašo sudarymo schema

Pasiūlyti atrankos kriterijai [115], siekiant patikslinti radionuklidų sąrašą, gautą modeliuojant kuro išdegimo ir reaktoriaus konstrukcijų neutronų aktyvacijos procesus, jame palikti tik tuos radionuklidus, kurių kiekius, laidojant radioaktyviausias atliekas, būtina riboti. Visi, į sąrašą patekę

radionuklidai po kompiuterinio modeliavimo patikrinami, siekiant nustatyti, ar jie atitinka parinktus kriterijus. Sąraše paliekami tik tie radionuklidai, kurie tenkina pirmąjį, o po to – antrąjį kriterijus. Siūlomi kriterijai yra:

- Pusėjimo trukmė.
- Aktyvumo santykių proporcija R_i/R_{Co} didesnė už 10^{-5} , t.y. radionuklidų savitųjų aktyvumų C_i^* ir jų nebekontroliuojamųjų lygių C_i [116] santykiai $R_i = C_i^*/C_i$ lyginami su ^{60}Co savitojo aktyvumo C_{60Co}^* ir jo nebekontroliuojamojo lygio C_{60Co} santykiu $R_{Co} = C_{60Co}^*/C_{60Co}$.

Radionuklidų migracija inžineriniais ar gamtiniais barjeriais yra lėtas procesas. Tam užtikrinti įrengiant kapinynus, parenkamos atitinkamų savybių aikštelės. Papildomai įrengiami inžineriniai hidroizoliaciniai barjerai. Todėl kapinyne radionuklidai, kurių pusėjimo trukmės yra pakankamai nedidelės, suskyla greičiau, nei jie iš atliekų prasiskverbia į aplinką pro inžinerinius ir gamtinius barjerus. Net mobiliusių radionuklidų lemtos efektinės dozės didžiausias vertes gyventojams pasiekia po kelių dešimčių metų [117, 118, 119]. Todėl pasirinkus pusėjimo trukmės kriterijų 0,5 metų, t. y. išbraukiant iš sąrašo radionuklidus, kurių pusėjimo trukmė trumpesnė nei pusė metų, pagrįstai galima sutrumpinti kompiuterinio modeliavimo būdu gautą radionuklidų sąrašą. Iš sąrašo išbraukti radionuklidai nepasieks biosferos, nes jų koncentracija jau per penkerius metus sumažės per 1000 kartų. Tokio kriterijaus pakanka ir atliekų laidojimo būdui, kai atliekos neizoliuojamos nuo aplinkos inžineriniais barjeriais ir gali per kelias dešimtis metų pasklisti aplinkoje. Šį kriterijų galima koreguoti, atsižvelgiant į radioaktyviųjų atliekų šalinimo būdą ar kapinyno tipą ir gebėjimą sulaikyti radionuklidus.

Gamtinių radionuklidų aktyvumo matavimai ties Ignalinos AE sanitarinės zonos riba parodė, kad ^{40}K savitasis aktyvumas yra ne mažesnis, kaip 0,2 Bq/g, o ^{226}Ra ir ^{232}Th didesnis negu 0,01. Atsižvelgus į šių gamtinių radionuklidų nebekontroliuojamus lygius, mažiausia R_i/R_{Co} vertė (0,02) gaunama kalio atveju. Todėl, net konservatyviai atsižvelgus į galimas modeliavimo paklaidas, nėra racionalu į deklaruojamų radionuklidų sąrašą įtraukti radionuklidus, kurių

savitojo aktyvumo ir nebekontroliavimo lygio santykis atliekose yra 10^5 kartų mažesnis negu ^{60}Co . Taip pasirinktas antrasis kriterijus [115].

Į sąrašą [116] neįtrauktų radionuklidų nesąlyginiai nebekontroliuojamieji lygiai (savitasis aktyvumas [Bq/g]) buvo prilyginti vienai dešimtajai nereguliuojamojo lygio vertės, išreikštos Bq/g [120]. Kitų radionuklidų nebekontroliavimo lygiai buvo įvertinti pagal dokumentus [121, 122]. Antrajam atrankos kriterijui nustatyti nebekontroliuojamieji aktyvumo lygiai pateikti 3.1.2 lentelėje.

Atliekos, kurių sudėtyje esantys radionuklidai neviršija nebekontroliuojamųjų lygių, nėra radioaktyviosios atliekos. Nebekontroliuojamieji lygiai nustatomi, įvertinus įvairius galimus medžiagų panaudojimo būdus ir išanalizavus galimus radionuklidų poveikio žmonėms scenarijus. Nesąlyginiai nebekontroliuojamieji lygiai nusako, kad juos tenkinančias medžiagas galima naudoti be jokių apribojimų ir sąlygų. Įvairių radionuklidų nebekontroliuojamieji lygiai yra labai skirtingi. Tai patvirtina, kad radionuklidai nevienodai kenksmingi. Pvz., ^3H ir ^{63}Ni leistini savitieji aktyvumai yra 10^4 karto didesni, nei ^{60}Co , ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{94}Nb .

3.1.2. lentelė. Radionuklidų nesąlyginiai nebekontroliuojamieji lygiai [116, 120, 121, 122]

Radionuklidas	Nebekontroliuojamasis lygis, Bq/g
^{241}Am , $^{242\text{m}}\text{Am}^{**}$, $^{243}\text{Am}^{**}$, $^{243}\text{Cm}^{**}$, ^{244}Cm , ^{237}Np , $^{238}\text{Pu}^{**}$, ^{239}Pu , ^{240}Pu , $^{242}\text{Pu}^{**}$, ^{232}Th , ^{234}U , ^{235}U	0,1
$^{110\text{m}}\text{Ag}$, ^{60}Co , ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{54}Mn , ^{94}Nb , ^{226}Ra , ^{65}Zn	0,4
$^{236}\text{U}^*$, $^{238}\text{U}^*$	1
^{90}Sr , $^{126}\text{Sn}^{**}$, $^{133}\text{Ba}^{**}$, $^{166\text{m}}\text{Ho}^{**}$	4
$^{40}\text{K}^*$, $^{241}\text{Pu}^*$	10
^{129}I , $^{182}\text{Hf}^{**}$	40
$^{135}\text{Cs}^*$, $^{93\text{m}}\text{Nb}^*$, $^{59}\text{Ni}^*$, $^{93}\text{Zr}^*$	100
^{14}C , ^{36}Cl , $^{41}\text{Ca}^*$, ^{55}Fe , $^{79}\text{Se}^*$, ^{99}Tc	400
^{45}Ca , ^3H , ^{63}Ni	4000

* - radionuklidai, įtraukti į lentelę, remiantis [120] duomenimis.

** - radionuklidai, įtraukti į lentelę, remiantis [121, 122] duomenimis.

3.1.2 lentelėje radionuklidai suskirstyti į devynias grupes pagal nebekontroliuojamojo lygio vertę. Šios grupės atspindi radionuklidų

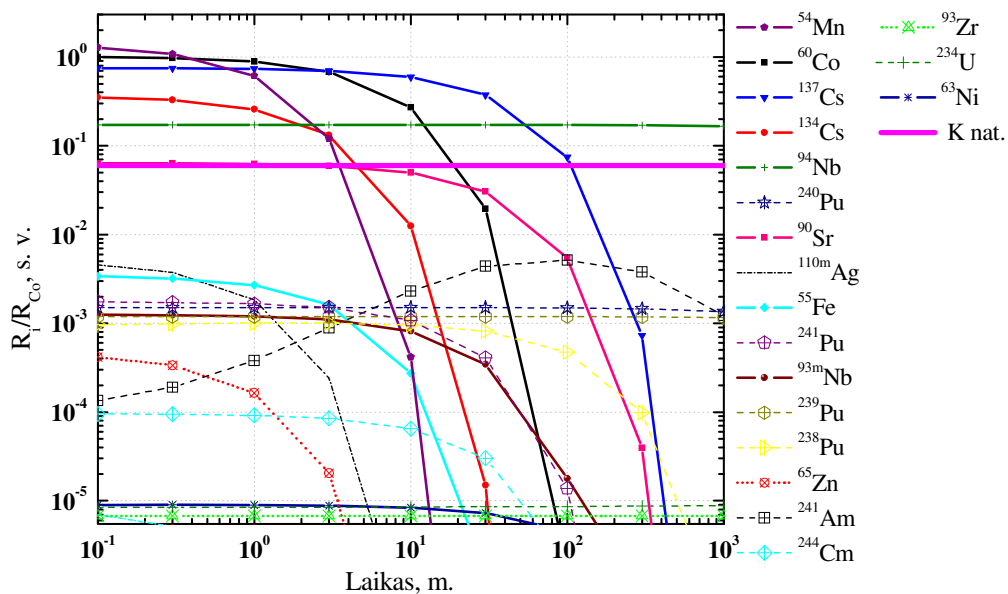
radiotoksiškumą. Mažiausia nebekontroliuojamųjų lygių vertė skirta α daleles spinduliuojantiems aktinoidams.

Pritaikius pasirinktus atrankos kriterijus (0,5 m pusėjimo trukmė ir $R_i/R_{Co} > 10^{-5}$), gaunamas toks radionuklidų sąrašas: ^{54}Mn , ^{55}Fe , ^{60}Co , ^{65}Zn , ^{90}Sr , ^{93}Zr , $^{93\text{m}}\text{Nb}$, ^{94}Nb , $^{110\text{m}}\text{Ag}$, ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu , ^{241}Am , ^{244}Cm . Nors ir nedaug, ^{93}Zr netenkina antrojo kriterijaus, tačiau jis įtrauktas į sąrašą siekiant geriau atsižvelgti į RBMK-1500 reaktoriaus savitumą.

Kadangi nebuvo modeliuota reaktoriaus aktyviosios zonos medžiagu aktyvacija neutronų sraute, negalima laikyti, kad sąrašė pateiktos visos RBMK reaktoriams būdingos radioaktyviosios atliekos. Todėl šis sąrašas daugiau taikytinas eksploatacinėms atliekoms, užterštoms dėl sąlyčio su aušalu.

Radionuklidų, tenkinančių antrąjį kriterijų, aktyvumo santykių su nebekontroliuojamaisiais lygiais priklausomybė nuo laiko pavaizduota 3.1.2 pav. Aktyvumo santykiai lyginami su pradiniu ^{60}Co aktyvumo ir nebekontroliuojamojo lygmens santykiu kuro kasetės iškrovimo iš reaktoriaus metu, t. y. neatsižvelgiama į ^{60}Co skilimą. Kaip matyti, pirmaisiais metais didžiausias aktyvumo santykių vertes turi ^{54}Mn , ^{60}Co , ^{137}Cs ir kiek mažesnes ^{134}Cs , ^{94}Nb ir ^{90}Sr , o kitų radionuklidų vertės daugiau kaip šimtą kartų mažesnės. Pirmųjų penkių radionuklidų vertės viršija natūralaus ^{40}K . Tačiau per pora dešimčių metų ^{54}Mn ir ^{134}Cs , o per šimtą metų ir ^{60}Co , suskyla. Po 100 metų didžiausią aktyvumo santykių vertę jau turi ^{94}Nb , kuri per tą laikotarpį išliko beveik nepakitusi. Antroji pagal dydį išlieka ^{137}Cs vertė. O ^{90}Sr aktyvumų santykių vertė susilygina su ^{241}Am , kurio aktyvumas šimtą metų auga skylant ^{241}Pu , o paskui ima mažėti. ^{93}Zr , ^{239}Pu ir ^{240}Pu aktyvumų santykio vertės beveik nepakinta, o ^{63}Ni , ^{238}Pu – mažėja lėtai. Tai rodo, kad ilgalaikiai saugai šie radionuklidai bei ^{94}Nb tampa svarbiausi.

3.1.3 ir 3.1.4 lentelėse pateikta aktyvumo santykių pradinės ^{60}Co santykio vertės atžvilgiu kaita 300 metų. Lentelėse pateiktas ilgesnis nei gautas atrinkus pagal kriterijus radionuklidų sąrašas. Radionuklidai iš sutrumpinto sąrašo lentelėse paryškinti.



3.1.2 pav. R_i/R_{Co} priklausomybė nuo laiko

3.1.3. lentelė. Aktyvacijos ir dalijimosi produktų aktyvumo santykiai su nebecontroliuojamuoju lygiu atraminio radionuklido ^{60}Co pradinio aktyvumą santykio atžvilgiu

Nuklidas	Laikas, m.			
	0,1	1	30	300
^{110m}Ag	$4,58 \cdot 10^{-3}$	$1,84 \cdot 10^{-3}$	$3,14 \cdot 10^{-16}$	0
^{133}Ba	$1,20 \cdot 10^{-11}$	$1,13 \cdot 10^{-11}$	$1,67 \cdot 10^{-12}$	$3,13 \cdot 10^{-20}$
^{14}C	$1,27 \cdot 10^{-6}$	$1,27 \cdot 10^{-6}$	$1,27 \cdot 10^{-6}$	$1,23 \cdot 10^{-6}$
^{41}Ca	$1,19 \cdot 10^{-7}$	$1,19 \cdot 10^{-7}$	$1,19 \cdot 10^{-7}$	$1,19 \cdot 10^{-7}$
^{45}Ca	$7,00 \cdot 10^{-6}$	$1,74 \cdot 10^{-6}$	$5,88 \cdot 10^{-26}$	0
^{36}Cl	$9,25 \cdot 10^{-13}$	$9,25 \cdot 10^{-13}$	$9,25 \cdot 10^{-13}$	$9,24 \cdot 10^{-13}$
^{60}Co	1,00	$8,91 \cdot 10^{-1}$	$1,96 \cdot 10^{-2}$	$7,37 \cdot 10^{-18}$
^{134}Cs	$3,49 \cdot 10^{-1}$	$2,58 \cdot 10^{-1}$	$1,51 \cdot 10^{-5}$	0
^{135}Cs	$1,07 \cdot 10^{-8}$	$1,07 \cdot 10^{-8}$	$1,07 \cdot 10^{-8}$	$1,07 \cdot 10^{-8}$
^{137}Cs	$7,49 \cdot 10^{-1}$	$7,34 \cdot 10^{-1}$	$3,75 \cdot 10^{-1}$	$7,33 \cdot 10^{-4}$
^{55}Fe	$3,38 \cdot 10^{-3}$	$2,69 \cdot 10^{-3}$	$1,70 \cdot 10^{-6}$	0

3.1.3. lentelė. Aktyvacijos ir dalijimosi produktų aktyvumo santykiai su nebekontroliuojamuoju lygiu atraminio radionuklido ^{60}Co pradinio aktyvumų santykio atžvilgiu

Nuklidas	Laikas, m.			
	0,1	1	30	300
^3H	$3,23 \cdot 10^{-7}$	$3,07 \cdot 10^{-7}$	$6,02 \cdot 10^{-8}$	$1,54 \cdot 10^{-14}$
^{182}Hf	$2,91 \cdot 10^{-10}$	$2,91 \cdot 10^{-10}$	$2,91 \cdot 10^{-10}$	$2,91 \cdot 10^{-10}$
$^{166\text{m}}\text{Ho}$	$2,57 \cdot 10^{-8}$	$2,57 \cdot 10^{-8}$	$2,53 \cdot 10^{-8}$	$2,16 \cdot 10^{-8}$
^{129}I	$2,00 \cdot 10^{-9}$	$2,02 \cdot 10^{-9}$	$2,02 \cdot 10^{-9}$	$2,02 \cdot 10^{-9}$
^{54}Mn	1,28	$6,14 \cdot 10^{-1}$	$3,74 \cdot 10^{-11}$	0
$^{93\text{m}}\text{Nb}$	$1,25 \cdot 10^{-3}$	$1,20 \cdot 10^{-3}$	$3,45 \cdot 10^{-4}$	$8,56 \cdot 10^{-7}$
^{94}Nb	$1,72 \cdot 10^{-1}$	$1,72 \cdot 10^{-1}$	$1,72 \cdot 10^{-1}$	$1,70 \cdot 10^{-1}$
^{59}Ni	$2,90 \cdot 10^{-6}$	$2,90 \cdot 10^{-6}$	$2,90 \cdot 10^{-6}$	$2,88 \cdot 10^{-6}$
^{63}Ni	$8,97 \cdot 10^{-6}$	$8,93 \cdot 10^{-6}$	$7,32 \cdot 10^{-6}$	$1,13 \cdot 10^{-6}$
^{79}Se	$4,81 \cdot 10^{-10}$	$4,81 \cdot 10^{-10}$	$4,80 \cdot 10^{-10}$	$4,80 \cdot 10^{-10}$
^{126}Sn	$2,85 \cdot 10^{-7}$	$2,85 \cdot 10^{-7}$	$2,85 \cdot 10^{-7}$	$2,84 \cdot 10^{-7}$
^{90}Sr	$6,38 \cdot 10^{-2}$	$6,24 \cdot 10^{-2}$	$3,05 \cdot 10^{-2}$	$3,95 \cdot 10^{-2}$
^{99}Tc	$1,03 \cdot 10^{-7}$	$1,03 \cdot 10^{-7}$	$1,03 \cdot 10^{-7}$	$1,02 \cdot 10^{-7}$
^{65}Zn	$4,17 \cdot 10^{-4}$	$1,64 \cdot 10^{-4}$	$1,37 \cdot 10^{-17}$	0
^{93}Zr	$6,81 \cdot 10^{-6}$	$6,81 \cdot 10^{-6}$	$6,81 \cdot 10^{-6}$	$6,81 \cdot 10^{-6}$

Iš pateiktų duomenų matosi, kad daugumos neitrauktų į sąrašą aktinoidų ir ^{14}C , ^{41}Ca , ^{36}Cl , ^{135}Cs , ^{182}Hf , $^{166\text{m}}\text{Ho}$, ^{129}I , ^{59}Ni , ^{79}Se , ^{126}Sn , ^{99}Tc aktyvumas per tris šimtus metų pasikeičia labai mažai. Todėl ilgalaikės saugos požiūriu jie gali būti svarbūs priklausomai nuo jų mobilumo inžineriniuose ir gamtiniuose kapinynų barjeruose. Todėl, pritaikius atrankos kriterijus, sąrašas gali būti papildytas radionuklidais, kurie yra svarbūs atliekant kapinyno saugos vertinimą. Įvertinus kapinyno veiksmingumą sulaikant radionuklidus ir galimą radiologinį poveikį žmogui ir aplinkai, identifikuojami radionuklidai, kurie turi didžiausią įtaką vertinamam poveikiui. Reikšmingi radionuklidai yra tie, kurių buvimas kapinyne, atsižvelgus į kapinyno ir jį supančios aplinkos savybes, gali sukelti nepageidajamų radiologinių pasekmių.

3.1.4. lentelė. Aktinoidų aktyvumo santykiai su nebekontroliuojamuoju lygiu atraminio radionuklido ^{60}Co pradinio aktyvumą santykio atžvilgiu

Nuklidas	Laikas, m.			
	0,1	1	30	300
^{241}Am	$1,35 \cdot 10^{-4}$	$3,80 \cdot 10^{-4}$	$4,40 \cdot 10^{-3}$	$3,77 \cdot 10^{-3}$
^{242}Am	$4,59 \cdot 10^{-6}$	$4,57 \cdot 10^{-6}$	$3,96 \cdot 10^{-6}$	$1,05 \cdot 10^{-6}$
^{243}Am	$3,40 \cdot 10^{-6}$	$3,40 \cdot 10^{-6}$	$3,39 \cdot 10^{-6}$	$3,31 \cdot 10^{-6}$
^{243}Cm	$1,86 \cdot 10^{-6}$	$1,82 \cdot 10^{-6}$	$8,99 \cdot 10^{-7}$	$1,26 \cdot 10^{-9}$
^{244}Cm	$9,51 \cdot 10^{-5}$	$9,19 \cdot 10^{-5}$	$3,03 \cdot 10^{-5}$	$9,77 \cdot 10^{-10}$
^{237}Np	$3,32 \cdot 10^{-7}$	$3,32 \cdot 10^{-7}$	$3,59 \cdot 10^{-7}$	$7,62 \cdot 10^{-6}$
^{238}Pu	$9,67 \cdot 10^{-4}$	$1,01 \cdot 10^{-3}$	$8,19 \cdot 10^{-4}$	$9,83 \cdot 10^{-5}$
^{239}Pu	$1,19 \cdot 10^{-3}$	$1,19 \cdot 10^{-3}$	$1,19 \cdot 10^{-3}$	$1,18 \cdot 10^{-3}$
^{240}Pu	$1,50 \cdot 10^{-3}$	$1,50 \cdot 10^{-3}$	$1,50 \cdot 10^{-3}$	$1,46 \cdot 10^{-3}$
^{241}Pu	$1,74 \cdot 10^{-3}$	$1,66 \cdot 10^{-3}$	$4,09 \cdot 10^{-4}$	$9,04 \cdot 10^{-10}$
^{242}Pu	$1,27 \cdot 10^{-6}$	$1,27 \cdot 10^{-6}$	$1,27 \cdot 10^{-6}$	$1,27 \cdot 10^{-6}$
^{234}U	$8,46 \cdot 10^{-6}$	$8,46 \cdot 10^{-6}$	$8,54 \cdot 10^{-6}$	$8,79 \cdot 10^{-6}$
^{235}U	$2,04 \cdot 10^{-7}$	$2,04 \cdot 10^{-7}$	$2,04 \cdot 10^{-7}$	$2,04 \cdot 10^{-7}$
^{236}U	$9,92 \cdot 10^{-8}$	$9,92 \cdot 10^{-8}$	$9,93 \cdot 10^{-8}$	$1,00 \cdot 10^{-7}$
^{238}U	$2,48 \cdot 10^{-7}$	$2,48 \cdot 10^{-7}$	$2,48 \cdot 10^{-7}$	$2,48 \cdot 10^{-7}$

Nustatant reikšmingus radionuklidus, lemia jų fizikinės-cheminės savybės, kapinyno egzistavimo laikas (projektinis kapinyno eksploatavimo periodas ir uždaryto kapinyno priežiūros laikas), kapinyno konstrukcija ir ji supančios aplinkos savybės. Tik įvertinus galimą gyventojų ir darbuotojų apšvitą eksploatuojant kapinyną, ir išanalizavus kapinyno normalios raidos bei galimus įsibrovimo, uždarius kapinyną, scenarijus gali būti identifikuoti didžiausią įtaką apšvitai turintys radionuklidai. Šiame darbe toks vertinimas neatliekamas. Tačiau, remiantis pasauline praktika, sudarytas sąrašas gali būti papildytas tokiais radionuklidais, kaip ^3H , ^{14}C , ^{135}Cs , ^{235}U , ^{238}U , ^{237}Np , ^{59}Ni , ^{99}Tc ir ^{129}I , kurie laikomi svarbūs kapinyno saugos vertinimui, nors jie ir netenkina antrojo kriterijaus.

3.2 *Metodų nuklidinei Ignalinos AE radioaktyviųjų atliekų sudėčiai nustatyti analizė*

Sudarius reikšmingų radionuklidų sąrašą, reikia parinkti metodus, kuriais galima nustatyti proporcingumo daugiklius atskiriems sarašo radionuklidams. Jei leidžia matavimų metodikų ir prietaisų tikslumas, proporcingumo daugiklius siekta nustatyti eksperimentiniais metodais. Nepavykus nustatyti eksperimentiškai, arba jei netenkina matavimų tikslumas, taikomi analitiniai metodai. Buvo išnagrinėtas šis pagal 3.1 skyriuje aprašytą metodiką sudarytas reikšmingų radionuklidų sąrašas, papildytas šiais reikšmingais kapinyno saugos vertinimui radionuklidais: ^3H , ^{14}C , ^{54}Mn , ^{55}Fe , ^{59}Ni , ^{63}Ni , ^{60}Co , ^{65}Zn , ^{90}Sr , ^{93}Zr , $^{93\text{m}}\text{Nb}$, ^{94}Nb , ^{99}Tc , $^{110\text{m}}\text{Ag}$, ^{129}I , ^{134}Cs , ^{135}Cs , ^{137}Cs , ^{235}U , ^{238}U , ^{237}Np , ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu , ^{241}Am , ^{244}Cm . Taikant 2.2.1-ame skyriuje aprašytus spektrometrijos metodus pagal spinduliuotės tipą nustatyti: α spinduolių ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am , $^{243+244}\text{Cm}$ savitieji aktyvumai – α spekrometriniais matavimais, β spinduolių ^3H , ^{14}C , ^{55}Fe , ^{63}Ni , ^{90}Sr , ^{129}I , ^{241}Pu – scinciliacinių tirpalų spektrometru, γ spinduolių ^{54}Mn , ^{60}Co , ^{65}Zn , ^{94}Nb , $^{110\text{m}}\text{Ag}$, ^{134}Cs , ^{137}Cs – γ spekrometriniais matavimais. Neišmatuotų radionuklidų arba tų, kurių spektre negalima atskirti nuo kito, koncentracijos įvertintos kompiuterinio modeliavimo metodu, naudojant suskaičiuotą santykį su išmatuojamu pagalbiniu radionuklidu arba suskaičiuotą izotopinę sudėtį, t. y. taikant (2.2.2.1) formulę. Radionuklidų aktyvumo nustatymo metodai, charakterizuojant Ignalinos AE atliekas, pasirinkti įvertinus galimybes nustatyti visų sąraše esančių radionuklidų savituosius aktyvumus ir šių vertinimų racionalumą. Šie duomenys pateikti 3.2.1 lentelėje. Priklausomai nuo paimtų ėminių matavimo rezultatų, t. y. jei nebuvo išmatuoti kai kurių radionuklidų aktyvumai, nes jų savitasis aktyvumas radioaktyviosiose atliekose mažesnis už turimo matavimo prietaiso aptikimo ribą, vietoje proporcingumo daugiklių metodo taikytas kompiuterinio modeliavimo metodas arba proporcingumo daugiklis, darant prielaidą, kad radionuklido koncentracija lygi prietaiso aptikimo ribai. ^{14}C proporcingumo daugiklis nustatytas pagal

proporcingumo daugiklio metodą, bet atliekų srautams, kuriems nepakako eksperimentinių duomenų, t. y., kad ^{14}C ir atraminio radionuklido aktyvumai koreliuotų, taikytas vidutinės koncentracijos atliekų sraute metodas.

Proporcingumo daugikliai įvertinti naudojant pagalbinus radionuklidus, nes koreliacija tarp dalijimosi produktų ar aktinoidų būna geresnė nei tarp aktyvacinių produktų ir aktinoidų bei dalijimosi produktų. Jei yra koreliacija tarp atraminių nuklidų ^{60}Co ir ^{137}Cs , šis gali būti panaudotas kaip pagalbinis, nustatant dalijimosi produktų proporcingumo daugiklius su ^{60}Co . $^{239+240}\text{Pu}$ taip pat patogu naudoti kaip pagalbinį radionuklidą, vertinant aktinoidų proporcingumo daugiklius su ^{60}Co .

3.2.1. lentelė. Radionuklidų savitojo aktyvumo nustatymo Ignalinos AE atliekose metodai

Metodas	Radionuklidai
<i>Tiesioginis matavimas</i>	^{60}Co , ^{137}Cs (atraminiai nuklidai)
<i>Proporcingumo daugiklių metodas</i>	^{14}C , ^{54}Mn , ^{55}Fe , ^{63}Ni , ^{65}Zn , ^{90}Sr , ^{94}Nb , ^{95}Zr , $^{110\text{m}}\text{Ag}$, ^{129}I , ^{134}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Pu , ^{241}Am , $^{243+244}\text{Cm}$
<i>Vidutinė koncentracija sraute</i>	^3H , ^{14}C (jei silpna koreliacija su atraminiu nuklidu)
<i>Kompiuterinis modeliavimas</i>	^{59}Ni (pagal ^{63}Ni), ^{99}Tc (pagal ^{90}Sr arba ^{60}Co), ^{93}Zr (pagal ^{95}Zr arba ^{94}Nb), $^{93\text{m}}\text{Nb}$ (pagal ^{94}Nb), ^{129}I (pagal ^{131}I arba ^{137}Cs), ^{235}U , ^{238}U ir ^{237}Np (pagal ^{239}Pu) $^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$, $^{243}\text{Cm}/^{244}\text{Cm}$

3.3 Ignalinos AE radioaktyviųjų atliekų srautų analizė

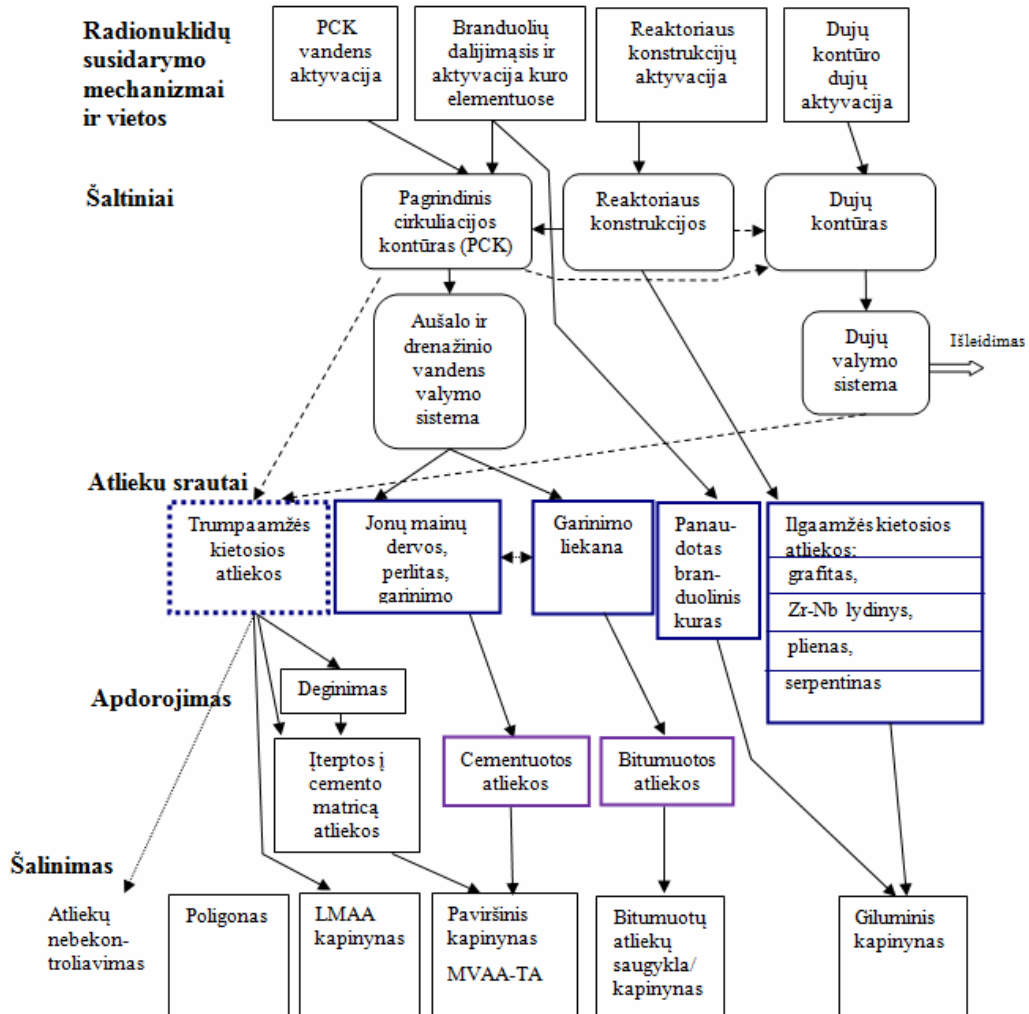
Reaktoriaus aktyviojoje zonoje susidarę radionuklidai patenka į AE technologines grandis ir tuomet susidaro skystosios ir dujinės radioaktyviosios atliekos. Su skysčiais ir dujomis radionuklidai pasklinda į elektrinės įrangą, kur dėl sąlyčio su kietos būsenos medžiagomis susidaro kietosios radioaktyviosios atliekos. Radionuklidai yra skirtingų fizikinių ir cheminių savybių. Dėl to jų

sklaida technologinėse AE grandyse nėra vienoda bei skirsis susidariusių radioaktyviųjų atliekų nuklidinė sudėtis. Siekiant įvertinti radionuklidinės sudėties skirtumus ir tinkamai charakterizuoti atliekas reikia išanalizuoti Ignalinos AE radioaktyviųjų atliekų susidarymo schemą ir atliekų srautus.

Bendra radioaktyviųjų atliekų susidarymo Ignalinos AE schema pateikta 3.3.1 paveikslėlyje. Šemoje pateikti radionuklidų susidarymo mechanizmai ir radioaktyviųjų atliekų šaltiniai, t. y. AE sistemos ir terpės, kuriose vyksta tolesnė radionuklidų sklaida ir formuojasi atskiri radioaktyviųjų atliekų srautai. Taip pat pateikta informacija apie radioaktyviųjų atliekų apdorojimo būdus ir esamą bei numatytą atliekų šalinimo (laidojimo) būdą.

Radionuklidų susidarymo mechanizmai - branduolių dalijimasis ir aktyvacija neutronų sraute. Branduolinio kuro elementai, reaktoriaus konstrukcijos, priverstinės cirkuliacijos kontūro vanduo ir dujų kontūras yra pagrindinės radionuklidų susidarymo vietos.

Branduolių dalijimosi produktai dėl kuro elementų apvalkalo trūkių patenka į priverstinės cirkuliacijos kontūro (PCK) vandenį. PCK yra didžiausias reaktoriaus eksploatavimo metu susidariusių eksploatacinių radioaktyviųjų atliekų šaltinis. Vanduo cirkuliuojantis PCK ir jame esančios priemaišos taip pat aktyvuojamas neutronų sraute. Iš PCK radionuklidai pasklinda į atliekų srautus. Kitas radioaktyviųjų atliekų šaltinis – aktyvuotos reaktoriaus konstrukcijos. Tai aukštesnio aktyvumo ir ilgaamžių radioaktyviųjų atliekų šaltinis. Dėl reaktoriaus konstrukcijų korozijos produktai taip pat patenka į PCK. Todėl yra ryšys tarp dviejų radioaktyviųjų atliekų šaltinių – reaktoriaus aktyvuotų konstrukcijų ir PCK. Dar vienas radioaktyviųjų atliekų šaltinis – reaktoriaus dujų kontūras. Iš šio kontūro sklindantys radionuklidai taip pat teršia medžiagas. Atsiradus kanalų trūkiams, į dujų kontūrą patenka garų iš PCK. Todėl schemoje brūkšnine linija pažymėtas PCK ryšys su dujų kontūru.



3.3.1 pav. Radioaktyviųjų atliekų susidarymas ir srautai Ignalinos AE

Aušalo ir drenažinio vandens valymo sistemoje susidaro koncentruotos skystosios atliekos – tai garinimo proceso liekana ir joje esančios nuosėdos. Dėl aušalo bei drenažinio vandens valymo jonų mainų ir perlito filtrais, pastarieji taip pat užteršiami radionuklidais. Analogišku radioaktyviųjų atliekų šaltiniu įvardinta ir dujų valymo sistema, kurioje užteršiami dujų kontūro ir dujinių radioaktyviųjų atliekų valymo sistemose naudojami filtrai.

Schemoje išskirti penki radioaktyviųjų atliekų srautai: trumpaamžių kietųjų radioaktyviųjų atliekų, garinimo liekanos (bitumuojamos atliekos), jonų mainų dervų, perlito ir garinimo liekanos nuosėdų (cementuojamos atliekos), ilgaaamžių kietųjų radioaktyviųjų atliekų ir panaudoto branduolinio kuro.

Kiekvienas iš atliekų srautų gali skirtis radionuklidine sudėtimi, tai priklauso nuo skirtingų atliekų susidarymo mechanizmų tiesioginės aktyvacijos, sąlyčio su technologiniu vandeniu arba dujomis. Trumpaamžės kietosios radioaktyviosios atliekos susidaro dėl tiesioginio aušalo sąlyčio su įranga (betonu, šilumine izoliacija, metaliniais komponentais, pvz., vamzdžiais ir kt.) aušalui cirkuliuojant, ar dėl aušalo nuotėkių į drenavimo sistemas. Šis atliekų srautas yra nevienalytis, nes atliekos susidaro iš kelių šaltinių. Be to, radionuklidinė sudėtis atskirose AE sistemose ir įrangoje gali skirtis dėl jose vykstančių technologinių procesų. Pvz., vykstant PCK vandens garinimui, kis radionuklidinė vandens-garų mišinio sudėtis, todėl dalis sistemų turės sąlytį su kitos sudėties aušalu. Dalis degių atliekų bus deginamos. Nuklidinis vektorius atliekas sudeginus keičiasi, ir į tai būtina atsižvelgti. Vandens valymo sistemoje vanduo yra garinamas ir filtruojamas, dėl to garinimo liekanos ir filtravimo medžiagų nuklidiniai vektoriai nebus vienodi. Ilgaamžių kietųjų atliekų srautas taip pat nėra vienalytis. Dėl reaktoriaus komponentų aktyvacijos susidaro keli aktyvuotų medžiagų srautai - grafitas, Zr-Nb lydinio ir plieno kuro kanalai bei reaktoriaus atraminės ir apsauginės plokštės užpildytos serpentinu. Šių medžiagų sudėtis skiriasi, todėl aktyvuotų medžiagų radionuklidinė sudėtis yra skirtinga. Dėl skirtingos aktyvuojamų reaktoriaus komponentų medžiagų sudėties gali skirtis ir reikšmingų radionuklidų sąrašas.

Visos užterštos medžiagos apdorojamos keičiant jų tūrį ir jas sukietinant. Trumpaamžės kietas atliekas numatoma sukietinti, jas patalpinus į konteinerius ir užpilant betonu. Jonų mainų dervos, perlitas ir garinimo liekanos nuosėdos nustatytomis proporcijomis maišomos su cementu ir bentonitu, o garinimo liekana – maišoma su bitumu.

Apdorotos radioaktyviosios atliekos yra tas galutinis produktas, kurį reikia charakterizuoti, kad būtų galima patikrinti, ar jos atitinka nebekontroliavimo ar atliekų priimtumo laidoti kriterijus. Galiausiai atliekos yra šalinamos: nebekontroliuojamosios atliekos išvežamos ir tvarkomos kaip paprastos atliekos, o radioaktyviosios atliekos turi būti laidojamos kapinynuose. Dalis šių atliekų, vadinamųjų pramoninėmis, kurių paviršinė

dozės galia 10 cm atstumu nuo paviršiaus neviršija $0,6 \mu\text{Sv/h}$, supilamos į specialiai skirtą vietą AE teritorijoje – poligoną ir užpilamos žemėmis. Šios atliekos atskiriamos pagal senąją radioaktyviųjų atliekų klasifikavimo sistemą, kuri naudojama AE, ir galios iki tol, kol bus įdiegta naujoji. Dalis šių atliekų tenkina nebekontroliuojamuosius lygius. Kita dalis labai nedaug lygius viršija. Tokios atliekos laikomos labai žemo aktyvumo atliekomis ir joms saugoti numatoma įrengti pilkapio tipo kapinyną. Mažo ir vidutinio aktyvumo trumpaamžes atliekas numatoma laidoti paviršiniame kapinyne. Jei pavyks pagrįsti saugą, dabartinė bitumuotų atliekų saugykla gali būti pertvarkyta į paviršinį kapinyną. Ilgaamžės atliekos turi būti laidojamos giluminiame kapinyne.

Analizuojant radioaktyviųjų atliekų susidarymo dėl sąlyčio su PCK aušalu būdą, svarbūs pakitimai vyksta radionuklidams pereinant iš vienos terpės į kitą (pvz., iš kuro matricos į tarpelį tarp kuro ir apvalkalo, iš PCK aušalo – ant įrangos paviršiaus). Dėl skirtingų fizikinių ir cheminių savybių keičiasi skirtingų cheminių elementų aktyvumų santykiai. Dėl to radionuklidų izotopinė sudėtis branduoliniame kure ir radioaktyviosiose atliekose skiriasi ir tiesiogiai taikyti suskaičiuotus radionuklidų santykius kure visoms atliekoms negalima. Eksperimentinėmis ir analitinėmis priemonėmis būtina nustatyti reikšmingų saugai radionuklidų aktyvumų santykius radioaktyviosiose atliekose – nuklidinį vektorių. Priklausomai nuo radionuklidų sklaidos ypatumų, radioaktyviosioms atliekoms charakterizuoti taikomi keli nuklidiniai vektoriai.

Išnagrinėjus radioaktyviųjų atliekų srautus nuo jų susidarymo iki šalinimo būdų, galima numatyti, kad šiems charakterizuoti reikės tokių nuklidinių vektorių:

- Trumpaamžėms kietosioms atliekoms. (Pramoninėms, A, B, C klasių atliekoms proporcingumo daugikliai turėtų būti tie patys. Gali skirtis tik reikšmingų radionuklidų sąrašai). Tačiau dėl atliekų srauto nevienalytiškumo vieno nuklidinio vektoriaus visam srautui gali nepakakti.

- Cementuojamoms jonų mainų dervoms ir perlitui bei garinimo liekanos nuosėdoms.
- Bitumuotoms garinimo liekanoms.
- Ilgaamžėms kietosioms atliekoms. Nuklidiniai vektoriai skirsis kiekvienai šių atliekų medžiagai: grafitui, Zr-Nb lydiniai, plienai, serpentiniui.

Eksploatuojant reaktorių, priverstinės cirkuliacijos kontūre lieka nuosėdų. Todėl, nutraukiant eksploatavimą, deaktyvuojant PCK ir kitas sistemas, susidarys deaktyvacijos tirpalai, kurie bus tvarkomi toje pačioje vandens valymo sistemoje. Tuomet garinimo liekanos ir jonų mainų dervų bei perlito nuklidinė sudėtis gali pasikeisti, todėl nuklidinių vektorių reikės pakoreguoti. Išmontuojant deaktyvuotas sistemas, reikia patikslinti ir kietųjų atliekų nuklidinį vektorių, nes radionuklidų deaktyvavimo koeficientai gali būti skirtingi, ir atliekų radionuklidinė sudėtis po deaktyvacijos pasikeis.

Kadangi atraminių radionuklidų Co^{60} ir Cs^{137} pusėjimo trukmės, palygti su ilgaamžiais, gana trumpos, nustatytus nuklidinius vektorius reikia periodiškai perskaičiuoti, įvertinant radionuklidų skilimą.

3.4 Nuklidinių vektorių analizė Ignalinos AE radioaktyviųjų atliekų srautuose

Tam, kad pademonstruotume galimybę taikyti proporcingumo daugiklius RBMK-1500 Ignalinos AE reaktoriaus atliekoms, būtina įvairiose technologinėse grandyse ištirti radionuklidų aktyvumą koreliaciją su atraminių radionuklidų aktyvumu. Idealiu atveju visai AE nuklidinių vektorių skaičius galėtų būti lygus radionuklidų susidarymo mechanizmų (dalijimasis, aktyvacija) skaičiui. To pakaktų, jei reaktorius būtų homogeniškas radioaktyviųjų atliekų šaltinis. Tačiau reaktoriaus komponentai - nehomogeniški. Radionuklidų sklaida nuo susidarymo šaltinio (difuzija kuro matricoje, išėjimas į kuro elemento tarpelį, sklaida PCK, aušalo valymas filtrais, skirtingi medžiagų taršos būdai) ir skirtingos fizikinės-cheminės radionuklidų savybės lemia tai, kad reikia taikyti skirtingus nuklidinius

vektorius. Teoriškai, kiekviena sistema gali būti charakterizuojama atskiru nuklidiniu vektoriumi, bet praktiškai naudinga jų skaičių sumažinti.

Darbe nagrinėjami trys charakterizuoti radioaktyviųjų atliekų srautai: 1) cementuotos jonų mainų dervos ir perlitas, bei garinimo liekanos nuosėdos, 2) bitumuotos garinimo liekanos, 3) trumpaamžės kietosios atliekos. Cementuotoms atliekoms charakterizuoti imti ne tik panaudotų dervų, perlito ir nuosėdų ėminiai, bet ir garinimo liekanos. Bitumuotoms atliekoms charakterizuoti – bitumuotų atliekų, garinimo liekanos ir vandens iš panaudoto kuro dėklų ėminiai. Kietosioms atliekoms charakterizuoti ištirti pramoninių atliekų (paviršinė dozės galia 10 cm atstumu $< 0.6 \mu\text{Sv/val}$) ėminiai, dalis jų – iš IAE teritorijoje esančio pramoninių atliekų poligono. Buvo išmatuoti turbinų salės, avarinio reaktoriaus aušinimo įrangos ir dujų kontūro įrangos ėminiai. Ištirti PCK vandens, per kurį užteršiamos kietosios medžiagos, ėminiai, taip pat dujinio kontūro įrangos ir vamzdynų tepinėliai bei filtrų ėminiai.

Reikšmingų saugai radionuklidų sąrašas pakoreguotas įvertinus atliekų srauto savybes ir to srauto atliekų šalinimo būdą. Radioaktyvioms atliekoms, kurias planuojama laidoti paviršiniame kapinyne, charakterizuoti naudotas reikšmingųjų radionuklidų sąrašas, kuriam Radioaktyviųjų atliekų tvarkymo agentūra (RATA) nustatė preliminarias ribinio savitojo aktyvumo vertes [42]. Palyginus RATA patvirtintą ir 3.1 skyriuje pateiktą radionuklidų sąrašus, matyti, kad radionuklidai, kurių pusėjimo trukmė keli ar keliolika metų, ^{54}Mn , ^{55}Fe , ^{60}Co , ^{65}Zn , $^{110\text{m}}\text{Ag}$, ^{134}Cs , $^{93\text{m}}\text{Nb}$, laikomi nebesvarbiais. ^{93}Zr ir ^{244}Cm taip pat neišskirti kaip svarbūs, o nuklidų sąrašą papildė ^{36}Cl , ^{226}Ra , ^{234}U .

Panaudojus 3.1 skyriuje aprašytą radionuklidų aktyvumų santykio su nebereguliuojamuoju lygiu pradinio ^{60}Co santykio atžvilgiu skaičiavimo modelį bei atliktų matavimų rezultatus buvo nustatyta, kad dviejų radionuklidų, kuriems RATA patvirtino ribinio savitojo aktyvumo vertes, koncentracija permaža, kad būtų tikslinga juos įtraukti į Ignalinos AE radioaktyviosiose atliekose deklaruojamų radionuklidų sąrašą. Nustatyta, kad Ignalinos AE radioaktyviosiose atliekose esančio ^{226}Ra , kuris yra ^{238}U dukterinis produktas, koncentracija yra pernelyg maža ir negali pastebimai

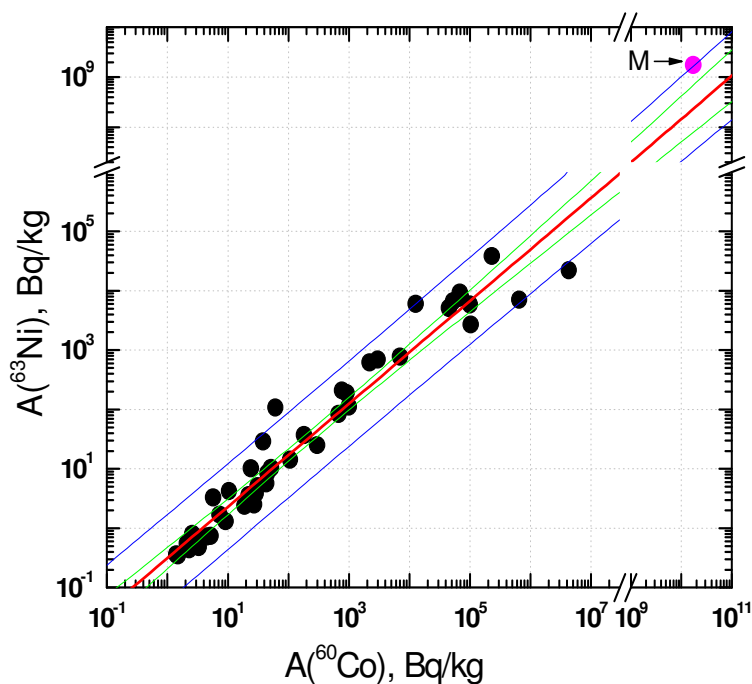
pakeisti šio radioaktyviojo izotopo gamtinio paplitimo nulemtų koncentracijos verčių. Vertinant Ignalinos AE eksploatavimo atliekose susidarančio ^{36}Cl koncentracijos vertę, buvo atsižvelgta į reaktoriaus aktyviosios zonos aušalo kiekį, jo atsinaujinimo spartą [123, 124] bei aušale išmatuotą chloro koncentraciją, ir nustatyta, kad ^{36}Cl koncentracija yra 10^7 kartų mažesnė negu reaktoriaus PCK vandenyje išmatuota ^{137}Cs koncentracija. Todėl ši radionuklidą eksploatacinėms radioaktyviosioms atliekoms taip pat netikslinga įtraukti į Ignalinos AE saugai reikšmingų radionuklidų sąrašą. Panaudojus kompiuterinį modeliavimą, nustatyta, kad ^{135}Cs savitasis aktyvumas yra maždaug $2,5 \cdot 10^5$ kartų mažesnis negu ^{137}Cs . Todėl ^{135}Cs taip pat neįtrauktas į nagrinėtų radionuklidų sąrašą.

Bitumuotose radioaktyviosiose atliekose dėl papildomo garinimo liekanos garinimo bitumavimo įrenginyje, skirtingai negu Ignalinos AE cementuotose radioaktyviosiose atliekose, yra mažai vandens (ne daugiau kaip du procentai). Anksčiau atlikti matavimai parodė, kad skystoje garinimo liekanos frakcijoje tričio yra 4300 Bq/l. Todėl bitumuotose radioaktyviosiose atliekose tričio yra mažiau negu 86 Bq/l ($4300 \text{ Bq/l} \times 0,02 = 86 \text{ Bq/l}$). Pagal Higienos normą HN 48:2001 [125] tričio geriamame vandenyje gali būti iki 100,0 Bq/l, todėl tritis neįtrauktas į Ignalinos AE bitumuotose radioaktyviosiose atliekose svarbių radionuklidų sąrašą.

Dalis kietųjų radioaktyviųjų atliekų gali būti nebekontroliuojamos, nes radionuklidų koncentracijos jose neviršija nebereguliuojamųjų aktyvumo lygių, o kitą dalį reikės laidoti kapinynuose. Todėl šioms atliekoms taikomas bendrasis sąrašas, sudarytas iš 3.1 skyriuje parengto ir RATA nustatyto sąrašo [42] radionuklidų, kuriems nustatyti preliminarūs ribiniai aktyvumai: ^3H , ^{14}C , ^{54}Mn , ^{55}Fe , ^{59}Ni , ^{63}Ni , ^{60}Co , ^{65}Zn , ^{90}Sr , ^{93}Zr , $^{93\text{m}}\text{Nb}$, ^{94}Nb , ^{99}Tc , $^{110\text{m}}\text{Ag}$, ^{129}I , ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{235}U , ^{238}U , ^{237}Np , ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu , ^{241}Am , ^{244}Cm . Tas pats sąrašas naudotas turbinų salės įrangai, avarinio reaktoriaus aušinimo sistemai ir dujų kontūro įrangai.

Tos pačios kilmės, kaip ir atraminis ^{60}Co , radionuklidų aktyvumų koreliacijos koeficientas buvo aukštas. ^{54}Mn ir ^{60}Co koreliacijos koeficientas

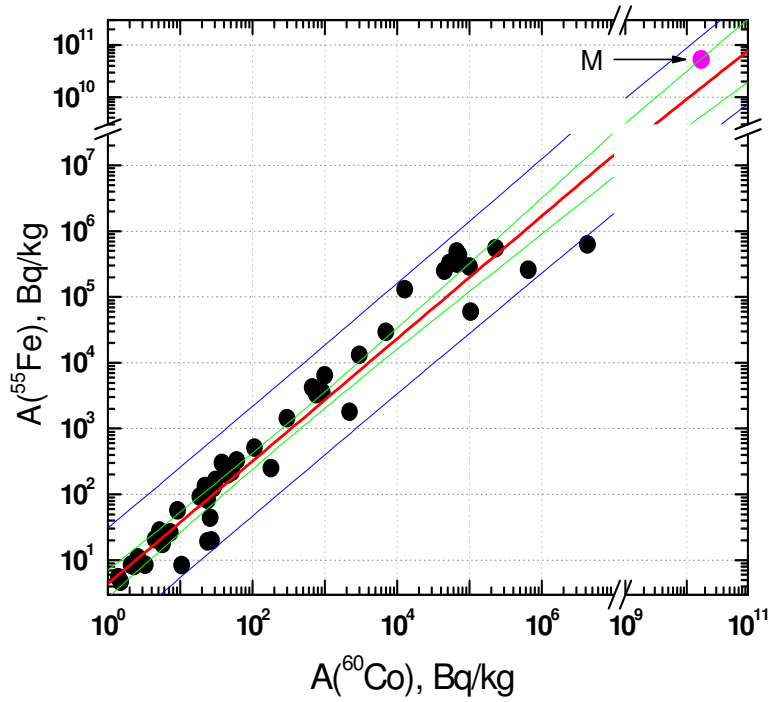
pramoninėse atliekose, avarinio reaktoriaus aušinimo sistemoje ir dujų kontūre buvo 0,95 - 0,96, o turbinų salės įrangoje – 0,84. ^{55}Fe ir ^{60}Co koreliacijos koeficientas atitinkamose atliekose buvo 0,93 – 0,98 ir 0,83. ^{63}Ni ir ^{60}Co aktyvumų koreliacijos koeficientai buvo: 0,7 – turbinų salės įrangai, 0,94 – dujų kontūro įrangai, 0,96 filtrams, 0,97 – avarinio reaktoriaus aušinimo kontūro įrangai, 0,99 - bitumuotoms atliekoms ir 1,0 – cementuotoms atliekoms. ^{94}Nb ir ^{60}Co koreliacijos koeficientai pramoninėse atliekoms - 0,92, dujų kontūro įrangai - 0,96. Pvz., 3.4.1 pav. pateikta ^{63}Ni ir ^{60}Co , o 3.4.2 paveiksle ^{55}Fe ir ^{60}Co priklausomybės pramoninėse atliekose.



3.4.1 pav. ^{63}Ni ir ^{60}Co savitųjų aktyvumų koreliacija pramoninėse atliekose. M – modeliuota branduolinio kuro sudėtis. $a=-0,5\pm 0,09$, $b=0,87\pm 0,03$, ėminių skaičius $n=48$, koreliacijos koeficientas $R=0,97$.

3.4.1 ir 3.4.2 paveikslėliai rodo, kad, atlikus kompiuterinį modeliavimą, ^{63}Ni ir ^{60}Co bei ^{55}Fe ir ^{60}Co santykiai pramoninėse atliekose atitinka suskaičiuotą kuro rinklėje. Tai parodo, kad Ni ir Fe izotopų išėjimo iš kuro matricos greitis yra artimas ^{60}Co . Suskaičiuotas santykis patenka į proporcingumo daugiklio reikšmių išsibarstymo sritį. Artimas vienetui aproksimacijos pagal (2.3.2) formulę parametras b parodo, kad nežymi

paklaida galima ir aktyvumams, kurie yra už eksperimentinių duomenų ribų. Gera aktyvacijos produktų koreliacija leidžia naudoti proporcingumo daugiklių metodą ir nustatyti sunkiai matuojamų radionuklidų koncentracijas.

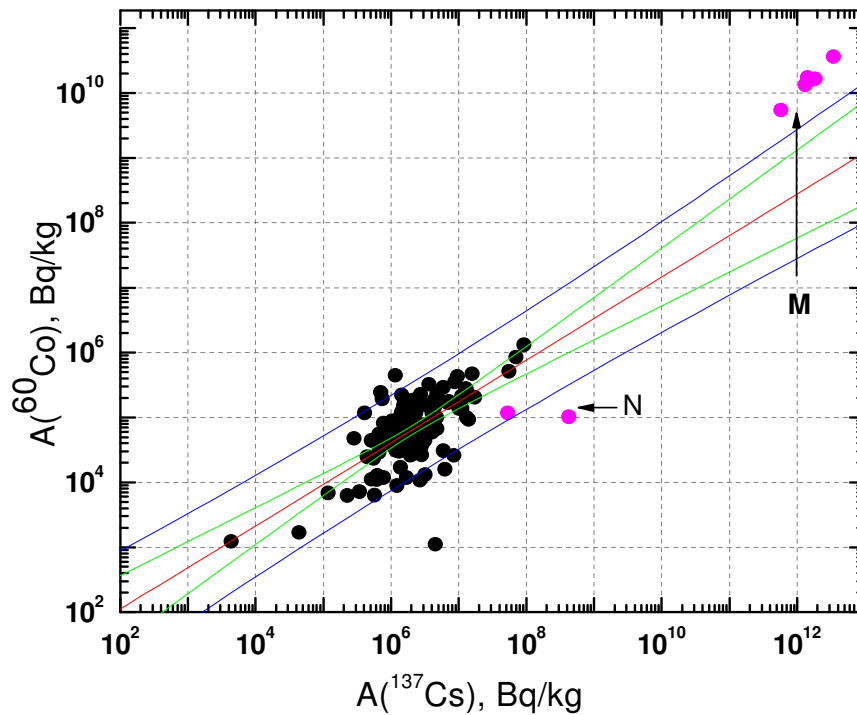


3.4.2 pav. ^{55}Fe ir ^{60}Co koreliacija pramoninėse atliekose. M – modeliuta branduolinio kuro rinklės sudėtis. $a=0,64\pm 0,10$, $b=0,93\pm 0,03$, ėminių skaičius $n=48$, koreliacijos koeficientas $R=0,97$.

Skirtingos kilmės radionuklidų koreliacija priklauso nuo atliekų srauto. Pvz., dalijimosi produkto ^{137}Cs ir korozinės kilmės ^{60}Co koreliacija pramoninėse atliekose ($R=0,93$), cementuotose atliekose ($R=0,97$), avarinio reaktoriaus aušinimo sistemos įrangoje ($R=0,84$) buvo gera, tačiau turbinų salės įrangai ($R=0,23$), dujų filtruose ($R=0,25$) – koreliacija silpna. Tai parodo, kad radionuklidai sklinda skirtingai. Silpną ^{60}Co ir ^{137}Cs aktyvumų koreliaciją, nagrinėjant kartu visas turbinų salės ir dujų kontūro įrangos atliekas lemia tai, kad yra keli atliekų srautai, kuriuose labai skiriasi ^{60}Co ir ^{137}Cs aktyvumų santykiai.

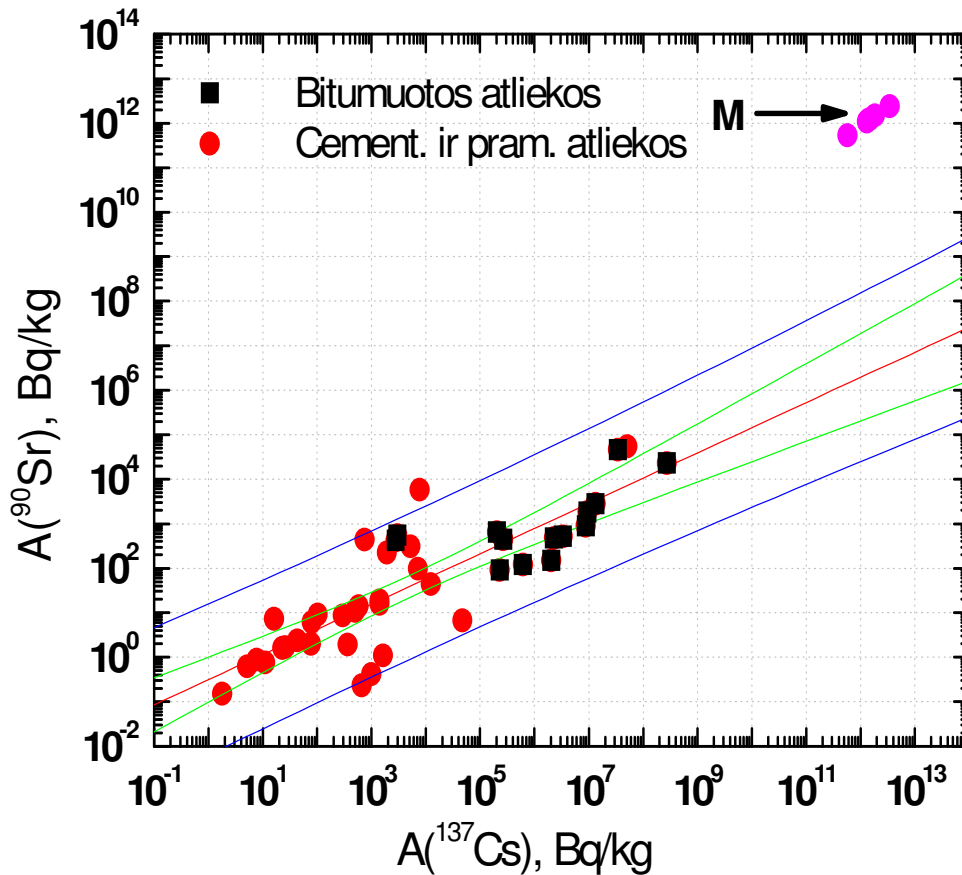
Koreliacija tarp tos pačios kilmės radionuklidų yra geresnė. Todėl nustatant proporcingumo daugiklius, patogiu naudotis pagalbiniais radionuklidais. Dėl geresnės koreliacijos ^{137}Cs naudotas kaip pagalbinis

radionuklidais, norint sustatyti proporcingumo daugiklius ^{90}Sr ir ^{134}Cs . Paprastai ^{60}Co ir ^{137}Cs koreliacija yra daug geresnė dėl matavimų paprastumo (abu radionuklidai lengvai matuojami), o tai leidžia išmatuoti daugiau bandinių ir sumažinti proporcingumo daugiklio paklaidą. O ^{137}Cs ir dalijimosi produktų koreliacija yra geresnė dėl to paties fizikinio susidarymo proceso. Todėl geriau, naudojant pagalbinį nuklidą, perskaičiuoti proporcingumo daugiklį nei jį tiesiogiai nustatyti iš matavimų. Dėl tos pačios priežasties aktinoidų proporcingumo daugikliai nustatyti naudojantis koreliacija su suminiu $^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$ aktyvumu.



3.4.3 pav. ^{60}Co ir ^{137}Cs aktyvumų koreliacija bitumuotose atliekose. $a=0,77\pm 0,38$, $b=0,64\pm 0,06$, $R=0,71$. M - modeliuota branduolinio kuro sudėtis, N - matuotos vertės nehermetiškų rinklių dėkluose.

Iš 3.4.3 paveikslėlio matosi, kad ^{60}Co ir ^{137}Cs santykis suskaičiuotas kuro rinklei ir išmatuotas atliekose skiriasi, tai parodo, kad šių radionuklidų išėjimo į aušalą greitis skiriasi.



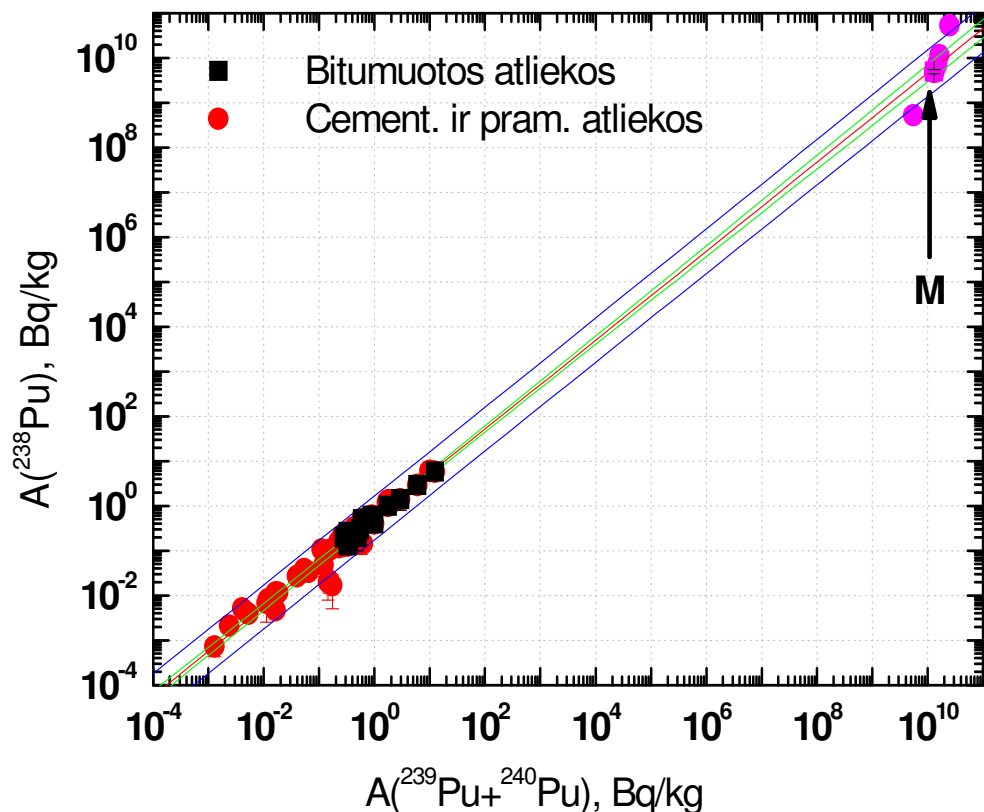
3.4.4 pav. ^{90}Sr ir ^{137}Cs savitųjų aktyvumų koreliacija radioaktyviose atliekose.

$a = -1,94 \pm 0,34$, $b = 1,01 \pm 0,06$, $R = 0,93$.

Iš 3.4.4 paveikslėlio matyti, kad ^{90}Sr ir ^{137}Cs sklidimo sparta skiriasi. Tai lemia skirtingos Cs ir Sr išeigos iš kuro matricos į reaktoriaus priverstinės cirkuliacijos kontūrą. 3.4.5 paveikslėlyje parodoma, kad Pu izotopai sklinda vienodai.

Proporcingumo daugikliai ^{59}Ni , ^{93}Zr , $^{93\text{m}}\text{Nb}$, ^{99}Tc , ^{129}I , ^{234}U , ^{235}U , ^{238}U , ^{237}Np nustatyti naudojantis suskaičiuotu santykiu su pagalbiniu radionuklidu, kurio proporcingumo daugiklis nustatytas eksperimentiškai. ^{59}Ni proporcingumo daugikliui nustatyti pagalbiniu radionuklidu buvo ^{63}Ni ; ^{93}Zr ir $^{93\text{m}}\text{Nb}$ - ^{94}Nb ; ^{99}Tc - ^{90}Sr arba ^{60}Co (vertinant konservatyviai, nes išmatuotas nehermetiškų kuro rinklių dėklų vandenyje $^{99}\text{Tc}/^{60}\text{Co}$ santykis tris kartus mažesnis, nei gautas modeliuojant); ^{129}I - ^{131}I arba ^{137}Cs (atsižvelgiant į I ir Cs išėjimo iš kuro elementų greičio santykį); ^{234}U , ^{235}U , ^{238}U ir ^{237}Np - ^{239}Pu .

Dalijimosi produkto ^{110m}Ag proporcingumo daugikliui su ^{60}Co nustatyti taip pat naudotas pagalbinis ^{137}Cs nuklidas.



3.4.5 pav. ^{238}Pu ir $^{239+240}\text{Pu}$ savitųjų aktyvumų koreliacija radioaktyviose atliekose. M modeliuota branduolinio kuro sudėtis. $a=-0,27\pm 0,03$, $b=0,99\pm 0,1$, $R=0,998$.

Kadangi α spektrometru sunku atskirti ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{243}Cm ir ^{244}Cm , nes ^{239}Pu ir ^{240}Pu bei ^{243}Cm ir ^{244}Cm , smailės spektre neišskiriamos. Atskirų radionuklidų aktyvumas įvertintas pagal kompiuteriniu modeliavimu gautą santykį.

Proporcingumo daugikliai tirtuose atliekų srautuose ir tarpinėse radionuklidų sklaidos terpėse pateikti 3.4.1 lentelėje. ^{60}Co patogiu rinktisi atraminis radionuklidu, nes jo aktyvumas sudaro didžiąsą dalį bendrojo γ aktyvumo bei didelės energijos γ spinduliuotės. Išimtis yra tik bitumuotos atliekos, kuriose ^{60}Co aktyvumas yra tik 2.5% ^{137}Cs aktyvumo. Dėl silpnos ^{60}Co ir ^{137}Cs aktyvumų koreliacijos ^{137}Cs kaip atraminis nuklidas ^{129}I ir ^{134}Cs taikytinas turbinų salės ir dujų kontūro įrangai bei dujų filtrams. Turbinų salės įrangos, dujų kontūro ir ventiliacijos įrangos bei avarinio reaktoriaus aušinimo

sistemų įrangos proporcingumo daugikliai perskaičiuoti pirmojo Ignalinos AE bloko sustabdymo datai 2004-12-31, kad būtų patogiau proporcingumo daugiklius lyginti tarpusavyje ir su daugikliais eksploatacinėms atliekoms: pramoninėms, cementuotoms ir bitumuotoms. Daugikliai pakoreguoti dėl gana trumpos atraminio nuklido ^{60}Co pusėjimo trukmės. Kadangi nuklidiniai vektoriai nustatinėti avarinio reaktoriaus aušinimo sistemai ir dujinio kontūro bei ventiliacijos sistemos įrangai pusė metų ir metais vėliau, nei turbinų salės įrangai, tai ilgaamžiams radionuklidams proporcingumo daugikliai gali skirtis dešimtadaliu ar penktadaliu vien dėl ^{60}Co skilimo, nes reaktorius sustabdytas. O trumpaamžiams radionuklidams, kurių pusėjimo trukmė mažesnė, nei ^{60}Co , proporcingumo daugikliai gali pakisti ir kelis kartus.

3.4.1 lentelėje pateikti duomenys parodo radionuklidų sklaidos per aušalą ir dujines atliekas ypatybes. Dėl skirtingų radionuklidų cheminių savybių atsiranda skirtumai atliekų srautų radionuklidinėje sudėtyje. Šiems skirtumams nagrinėti pasirenkami eksperimentiškai nustatyti proporcingumo daugikliai ^{14}C , ^{54}Mn , ^{55}Fe , ^{63}Ni , ^{65}Zn , ^{90}Sr , ^{94}Nb , ^{137}Cs , Pu izotopams, ^{241}Am ir ^{244}Cm .

Eksperimentinių duomenų nepakako nustatyti ^{14}C koreliacijai su atraminio radionuklidu. Todėl taikytas aritmetinis vidurkis. Taip pat įvertintas turbinų salės įrangos ^{94}Nb proporcingumo daugiklis ir ^3H koncentracija cementuotose atliekose. Turbinų salės ir avarinio reaktoriaus aušinimo įrangos ^{65}Zn ir $^{110\text{m}}\text{Ag}$ aktyvumai nesiekė matavimo įrangos aptikimo ribos. Todėl jų daugikliai nustatyti modeliuojant. Bitumuotų atliekų ^{94}Nb aktyvumas taip pat nesiekė matavimo įrangos aptikimo ribos. Proporcingumo daugiklis pervertintas darant prielaidą, kad aktyvumas lygus aptikimo ribai. Kituose atliekų srautuose daugelyje ėminių ^{94}Nb aktyvumas taip pat nesiekė aptikimo ribos. Todėl matavimo duomenų yra mažiau ir mažesnis proporcingumo daugiklio nustatymo tikslumas. Darant prielaidą, kad aktyvumas lygus aptikimo ribai, nustatytas avarinio reaktoriaus aušinimo įrangos ^{90}Sr proporcingumo daugiklis.

3.4.1. lentelė. Proporcingumo daugikliai k_{60Co}

Nuklidai	Bran-duolinis kuras* ²	PCK aušalas	Ce-men-tuotos atliekos	Bitu-muo-tos atliekos	Pra-mo-ni-nės atliekos	Turbinų salės įranga	Avari-nio reakto-riaus aušini-mo įr.	Venti-liaci-jos siste-ma	Dujų kontū-ro įranga	Dujų filtrai
¹⁴ C	$6,9 \cdot 10^{-4}$		$7 \cdot 10^{-2}$	$2 \cdot 10^{-2}$		$7 \cdot 10^{-4}$	$2 \cdot 10^{-3}$	$8 \cdot 10^{-2}$	17	$8 \cdot 10^{-2}$
⁵⁴ Mn	0,16	2			0,3	0,7	0,7	0,6	0,6	0,7
⁵⁵ Fe	4,12	0,4			3	5	13	3	3	1
⁵⁹ Ni	$5,7 \cdot 10^{-4}$		$1 \cdot 10^{-3}$	$4 \cdot 10^{-4}$		$2 \cdot 10^{-3}$	$1 \cdot 10^{-4}$	$5 \cdot 10^{-4}$	$5 \cdot 10^{-4}$	$5 \cdot 10^{-4}$
⁶³ Ni	$7,2 \cdot 10^{-2}$	$1 \cdot 10^{-2}$	0,2	$4 \cdot 10^{-2}$		0,2	0,1	$7 \cdot 10^{-2}$	$7 \cdot 10^{-2}$	$7 \cdot 10^{-2}$
⁶⁵ Zn	$5,2 \cdot 10^{-4}$	$1 \cdot 10^{-1}$			$1 \cdot 10^{-2}$	$1 \cdot 10^{-3}$	$2 \cdot 10^{-3}$	$3 \cdot 10^{-3}$	$3 \cdot 10^{-3}$	$3 \cdot 10^{-3}$
⁹⁰ Sr	77	$1 \cdot 10^{-4}$	$4 \cdot 10^{-3}$	$2 \cdot 10^{-2}$	$8 \cdot 10^{-3}$	$1 \cdot 10^{-3}$	$1 \cdot 10^{-3}$	$1 \cdot 10^{-4}$	0,2	0,4
⁹³ Zr	$2,6 \cdot 10^{-4}$				$1 \cdot 10^{-4}$	$3 \cdot 10^{-5}$	$1 \cdot 10^{-5}$	$1 \cdot 10^{-4}$	$1 \cdot 10^{-4}$	$3 \cdot 10^{-6}$
^{93m} Nb	$4,9 \cdot 10^{-1}$				0,1	0,3	0,1	0,2	0,2	$8 \cdot 10^{-3}$
⁹⁴ Nb	$6,2 \cdot 10^{-2}$		$7 \cdot 10^{-4}$	$3 \cdot 10^{-3}$	0,01	$2 \cdot 10^{-2}$	$1 \cdot 10^{-3}$	$1 \cdot 10^{-2}$	$1 \cdot 10^{-2}$	$3 \cdot 10^{-4}$
⁹⁹ Tc	$1,2 \cdot 10^{-2}$		$1 \cdot 10^{-5}$	$1 \cdot 10^{-2}$		$2 \cdot 10^{-5}$	$1 \cdot 10^{-5}$	$1 \cdot 10^{-5}$	$1 \cdot 10^{-5}$	$1 \cdot 10^{-5}$
^{110m} Ag	$6,8 \cdot 10^{-1}$				$3 \cdot 10^{-2}$	$7 \cdot 10^{-3}$	$1 \cdot 10^{-2}$	$2 \cdot 10^{-2}$	$2 \cdot 10^{-2}$	$2 \cdot 10^{-2}$
¹²⁹ I	$2,4 \cdot 10^{-5}$		$2 \cdot 10^{-7}$	$2 \cdot 10^{-5}$			$2 \cdot 10^{-7}$	$5 \cdot 10^{-8}$		
¹³⁴ Cs	44				0,1		$5 \cdot 10^{-2}$	$7 \cdot 10^{-3}$		
¹³⁷ Cs	91	$6 \cdot 10^{-1}$	1	40	0,2		0,5	$9 \cdot 10^{-2}$		
²³⁴ U	$2,5 \cdot 10^{-3}$		$3 \cdot 10^{-8}$	$1 \cdot 10^{-7}$		$3 \cdot 10^{-7}$	$1 \cdot 10^{-7}$	$9 \cdot 10^{-7}$	$9 \cdot 10^{-7}$	$2 \cdot 10^{-8}$
²³⁵ U	$6,2 \cdot 10^{-5}$		$7 \cdot 10^{-10}$	$3 \cdot 10^{-9}$		$7 \cdot 10^{-9}$	$3 \cdot 10^{-9}$	$2 \cdot 10^{-8}$	$2 \cdot 10^{-8}$	$4 \cdot 10^{-10}$
²³⁸ U	$7,5 \cdot 10^{-4}$		$9 \cdot 10^{-9}$	$3 \cdot 10^{-8}$		$1 \cdot 10^{-7}$	$4 \cdot 10^{-8}$	$3 \cdot 10^{-7}$	$3 \cdot 10^{-7}$	$7 \cdot 10^{-9}$
²³⁷ Np	$9,4 \cdot 10^{-5}$		$1 \cdot 10^{-9}$	$4 \cdot 10^{-9}$		$2 \cdot 10^{-8}$	$8 \cdot 10^{-9}$	$6 \cdot 10^{-8}$	$6 \cdot 10^{-8}$	$1 \cdot 10^{-9}$
²³⁸ Pu	$2,8 \cdot 10^{-1}$	$2,6 \cdot 10^{-5}$	$5 \cdot 10^{-6}$	$2 \cdot 10^{-5}$	$7 \cdot 10^{-5}$	$1 \cdot 10^{-4}$	$5 \cdot 10^{-5}$	$2 \cdot 10^{-4}$	$2 \cdot 10^{-4}$	$4 \cdot 10^{-6}$
²³⁹ Pu	$3,6 \cdot 10^{-1}$	$2 \cdot 10^{-5}$	$4 \cdot 10^{-6}$	$2 \cdot 10^{-5}$	$5 \cdot 10^{-5}$	$5 \cdot 10^{-5}$	$2 \cdot 10^{-5}$	$1 \cdot 10^{-4}$	$1 \cdot 10^{-4}$	$3 \cdot 10^{-6}$
²⁴⁰ Pu	$4,6 \cdot 10^{-1}$	$2 \cdot 10^{-5}$	$6 \cdot 10^{-6}$	$2 \cdot 10^{-5}$	$6 \cdot 10^{-5}$	$9 \cdot 10^{-5}$	$4 \cdot 10^{-5}$	$2 \cdot 10^{-4}$	$2 \cdot 10^{-4}$	$6 \cdot 10^{-6}$
²⁴¹ Pu	66	$7 \cdot 10^{-3}$	$2 \cdot 10^{-4}$	$2 \cdot 10^{-3}$	$1 \cdot 10^{-2}$	$7 \cdot 10^{-3}$	$2 \cdot 10^{-3}$	0,1	0,1	$8 \cdot 10^{-4}$
²⁴¹ Am	$4,0 \cdot 10^{-2}$	$2 \cdot 10^{-5}$	$1 \cdot 10^{-5}$	$4 \cdot 10^{-5}$	$1 \cdot 10^{-4}$	$1 \cdot 10^{-4}$	$1 \cdot 10^{-4}$	$3 \cdot 10^{-5}$	$3 \cdot 10^{-5}$	$3 \cdot 10^{-6}$
²⁴⁴ Cm	$4,6 \cdot 10^{-2}$	$3 \cdot 10^{-5}$			$2 \cdot 10^{-4}$	$8 \cdot 10^{-5}$	$1 \cdot 10^{-4}$	$1 \cdot 10^{-4}$	$1 \cdot 10^{-4}$	$2 \cdot 10^{-6}$

* - santykis skaičiuotas kuro išskrovimo metu

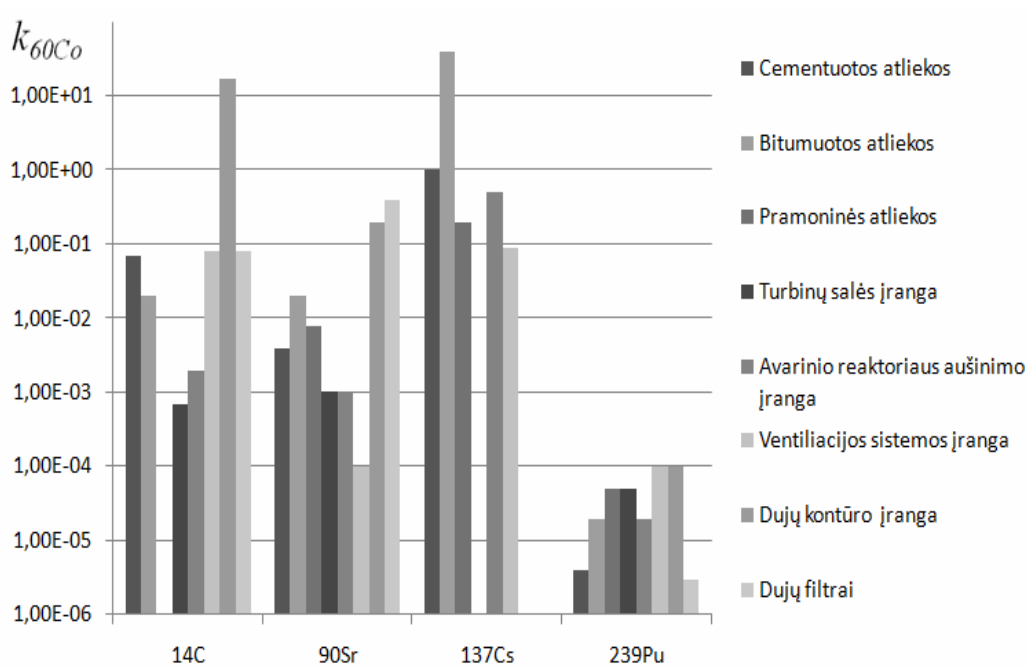
Visų atliekų srautų aktyvacinių radionuklidų ^{54}Mn , ^{55}Fe , ^{63}Ni , ^{94}Nb proporcingumo daugikliai ne daugiau kaip 10 kartų skiriasi nuo atlikus kompiuterinį modeliavimą suskaičiuoto santykio. Eksperimentiškai nustatyti proporcingumo santykiai aušale nuo suskaičiuotų skiriasi apie 10 kartų: ^{54}Mn suskaičiuotas santykis yra 12,5 kartų mažesnis, ^{55}Fe – apie 10 kartų, o ^{63}Ni – 7 kartus didesnis. Dalijimosi produktų ^{90}Sr ir ^{137}Cs proporcingumo daugikliai aušale mažesni nei kuro rinklės atitinkamai apie 10^5 ir 10^2 karto, o atliekų srautų – 10^3 - 10^5 , 10 - 10^4 karto. Aktinoidų proporcingumo daugikliai aušale 10^3 - 10^4 mažesni nei kuro rinklės ir nuo dešimčių iki šimtų kartų skiriasi atskiruose atliekų srautuose. Tokie rezultatai rodo, kad, charakterizuojant radioaktyvias atliekas, negalima atliekų dalijimosi produktų ir aktinoidų koncentracijų vertinti pagal suskaičiuotus santykius branduoliniame kure.

Pastebėta, kad bitumuotose atliekose būdingi mažesni korozinių radionuklidų proporcingumo daugikliai, o dalijimosi produktų ^{137}Cs ir ^{90}Sr – didesni nei kituose atliekų srautuose. ^{14}C proporcingumo daugiklis srautuose, kuriuose proporcingumo daugiklio vertė yra mažiausia ir didžiausia, skiriasi apie 10^4 karto.

Analizuojant tyrimų rezultatus, pastebėta, kad proporcingumo daugikliai dalijimosi produktams ir aktinoidams atliekų srautuose, kuriuose dominuoja radioaktyviųjų atliekų susidarymo dėl salyčio su priverstinės cirkuliacijos kontūro aušalu būdas, skiriasi nuo srautų, kuriuose dominuoja salyčio su dujų kontūro dujomis būdas. Dujų kontūro įrangos ^{14}C ir ^{90}Sr proporcingumo daugikliai labai skiriasi nuo kitų atliekų srautų: ^{90}Sr – proporcingumo daugiklis yra apie 100 kartų didesnis, ^{14}C – šimtus (lyginant su cementuotomis ir bitumuotomis atliekomis) ar tūkstančius (lyginant su kitomis kietosiomis atliekomis) kartų didesnis. ^{90}Sr proporcingumo daugiklis išsiskiria iš kitų atliekų srautų ir dujų valymui naudojamuose filtruose. Dujų filtruose aktinoidų proporcingumo daugikliai dešimtis ar apie šimtą kartų mažesni nei dujų kontūro ir ventiliacijos sistemos įrangoje. Tyrimų rezultatai patvirtina, kad nuklidiniai vektoriai priklauso nuo radioaktyviųjų atliekų susidarymo šaltinių.

4.1.6 pav. parodyta aukščiau minėtų radionuklidų proporcingumo daugiklių

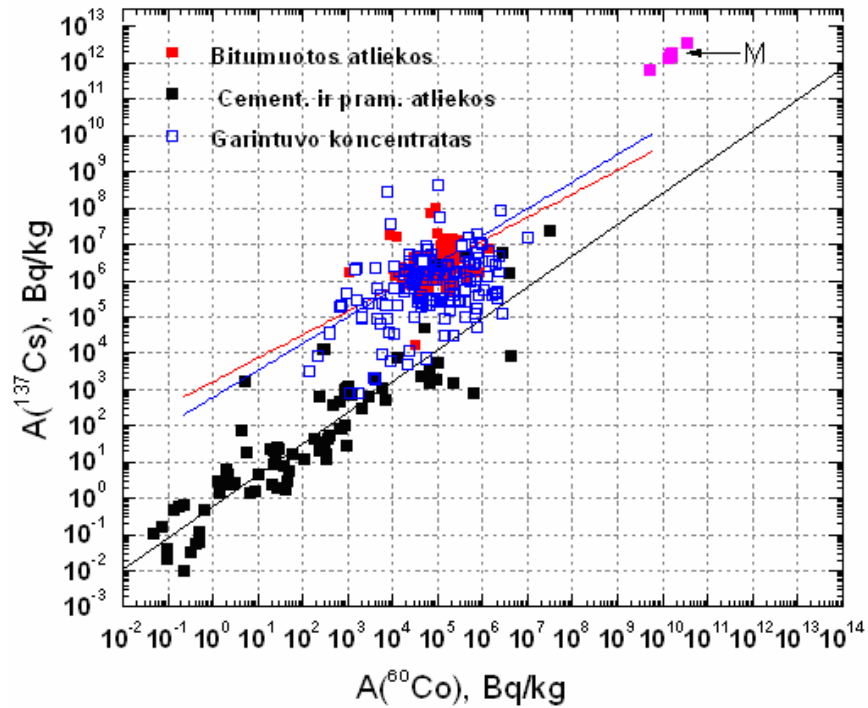
priklausomybė nuo atliekų srauto. Charakterizuojant kietąsias radioaktyvias atliekas būtina taikyti kelis nuklidinius vektorius.



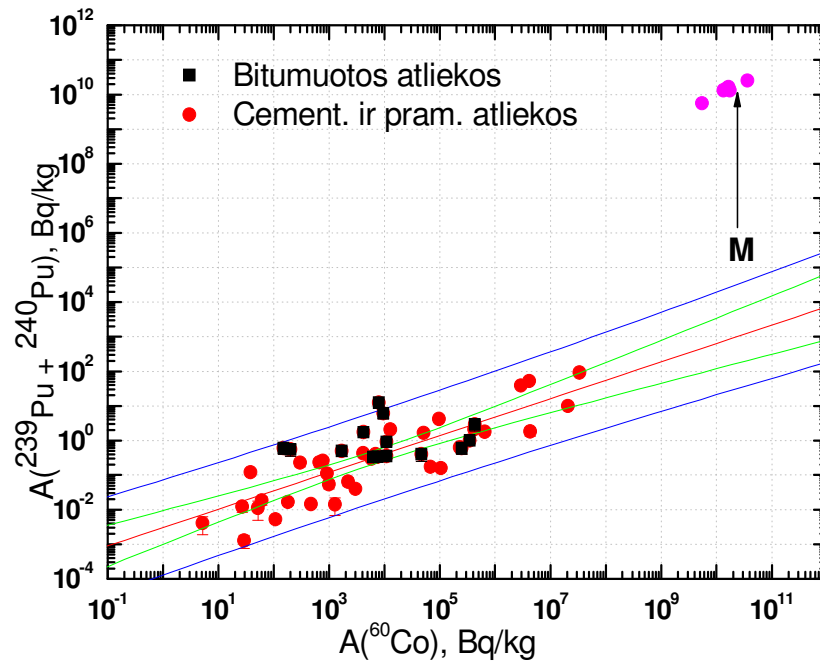
4.1.6 pav. ^{14}C , ^{90}Sr , ^{137}Cs ir ^{239}Pu proporcingumo daugiklių priklausomybė nuo atliekų srauto.

4.1.7 pav. taip pat parodo atliekų srautų nuklidinės atliekų sudėties skirtumą. Paveikslėlyje pateikti eksperimentiniai duomenys patvirtina, kad skystosios būsenos atliekose bus didesnė radionuklidų tirpiuose cheminiuose junginiuose koncentracija. O netirpūs radionuklidai lieka nuosėdose ir didesnė koncentracija bus vandens valymo sistemose naudojamuose filtruose ir kietose atliekose. Garinimo liekanai proporcingumo daugiklis yra artimas bitumuotų atliekų, tačiau aproksimacijos kreivės kryptis skiriasi ir dalis reikšmių patenka į vandens valymo filtrų ir kietųjų atliekų daugiklių sritį.

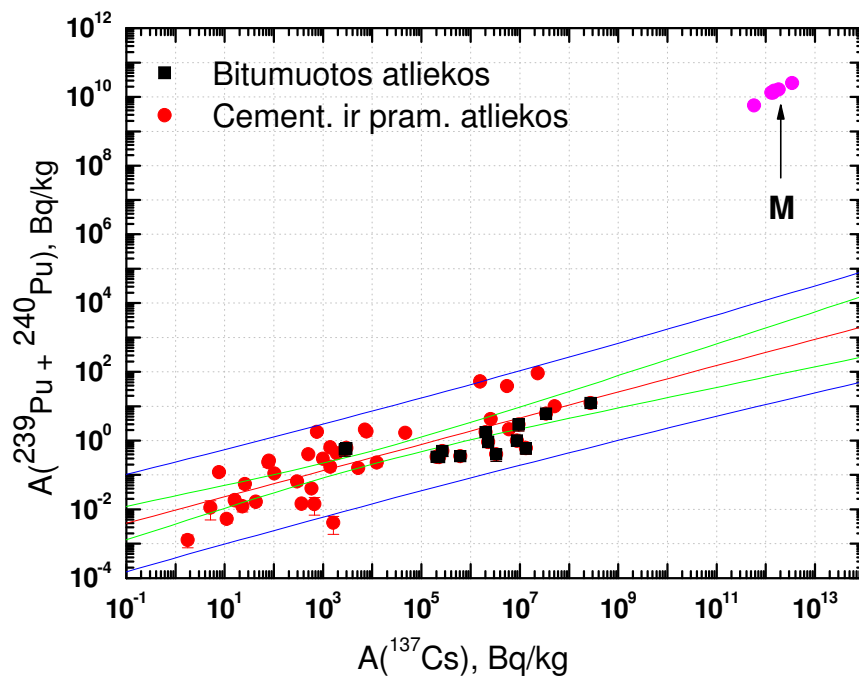
Palyginus 4.1.8 paveikslėlyje $^{239+240}\text{Pu}$ ir ^{60}Co aktyvumų santykius radioaktyviosiose atliekose, pastebima, kad Pu izotopų proporcingumo daugikliai yra panašūs tiek bitumuotų atliekų, tiek kitų atliekų srautuose. 4.1.8 ir 4.1.9 paveikslėliuose parodyta, kad labai skiriasi dalijimos produkto ^{60}Co , ^{137}Cs ir Pu izotopų sklaida iš kuro ir aktyvuotų komponentų į atliekas.



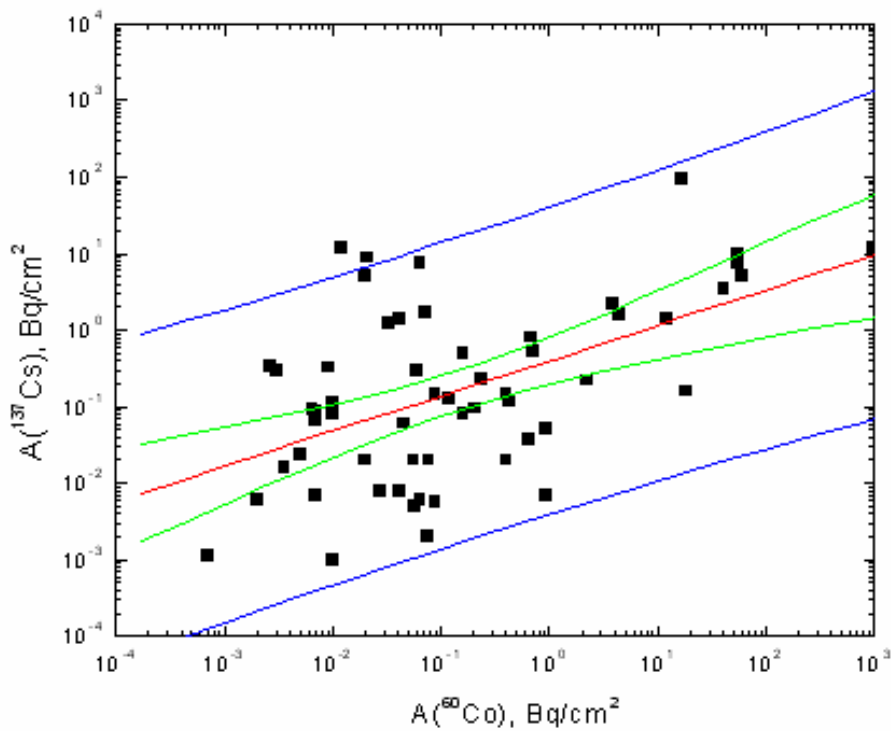
4.1.7 pav. ^{137}Cs ir ^{60}Co savitųjų aktyvumų koreliacija. M modeliuota branduolinio kuro sudėtis.



4.1.8 pav. $^{239+240}\text{Pu}$ ir ^{60}Co savitųjų aktyvumų koreliacija. M modeliuota branduolinio kuro sudėtis. $a = -2,51 \pm 0,24$, $b = 0,53 \pm 0,06$, $R = 0,81$.

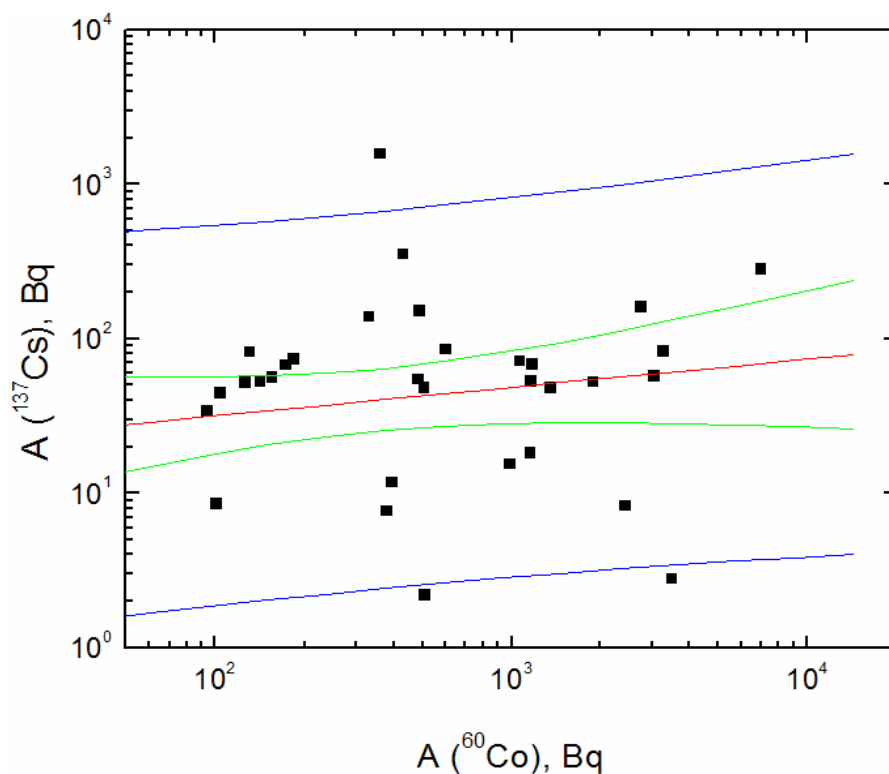


4.1.9 pav. $^{239+240}\text{Pu}$ ir ^{137}Cs savitųjų aktyvumų koreliacija. M modeliuota branduolinio kuro sudėtis. $a=-1,44\pm 0,46$, $b=0,23\pm 0,07$, $R=0,67$.



4.1.10 pav. ^{137}Cs ir ^{60}Co aktyvumų priklausomybė V1 pastato įrangoje. $a=0,4$, $b=0,46$, $R=0,53$.

Eksperimentiniai rezultatai, nustatant turbinų salės įrangos ir V1 pastato, kuriame yra dujų kontūro įranga ir ventiliacijos sistemos, nuklidinių vektorių parodė, kad kietųjų atliekų srautas nėra nehomogeniškas. Pvz., 4.1.10 paveikslėlyje pateikti duomenys rodo, kad V1 pastato įrangos ^{60}Co ir ^{137}Cs koreliacija yra prasta: koeficientas b daug nukrypęs nuo vieneto. Tokiomis sąlygomis gauto proporcingumo daugiklio taikyti negalima. Todėl ^{129}I , ^{134}Cs proporcingumo daugikliai nustatyti pagal ^{137}Cs . Tačiau koreliacija tarp išmatuotų korozijos produktų ^{54}Mn , ^{55}Fe , ^{63}Ni , ^{94}Nb ir ^{60}Co yra gera – koreliacijos koeficientai atitinkamai yra $R=0,95$, $R=0,93$, $R=0,94$ ir $R=0,96$. Taip pat gera koreliacija tarp transuraninių radionuklidų ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{241}Am , $^{243+244}\text{Cm}$ su $^{239+240}\text{Pu}$ - koreliacijos koeficientai atitinkamai $R=0,97$, $R=0,8$, $R=0,9$ ir $R=0,89$ ir koreliacija tarp $^{239+240}\text{Pu}$ ir ^{60}Co - $R=0,93$.



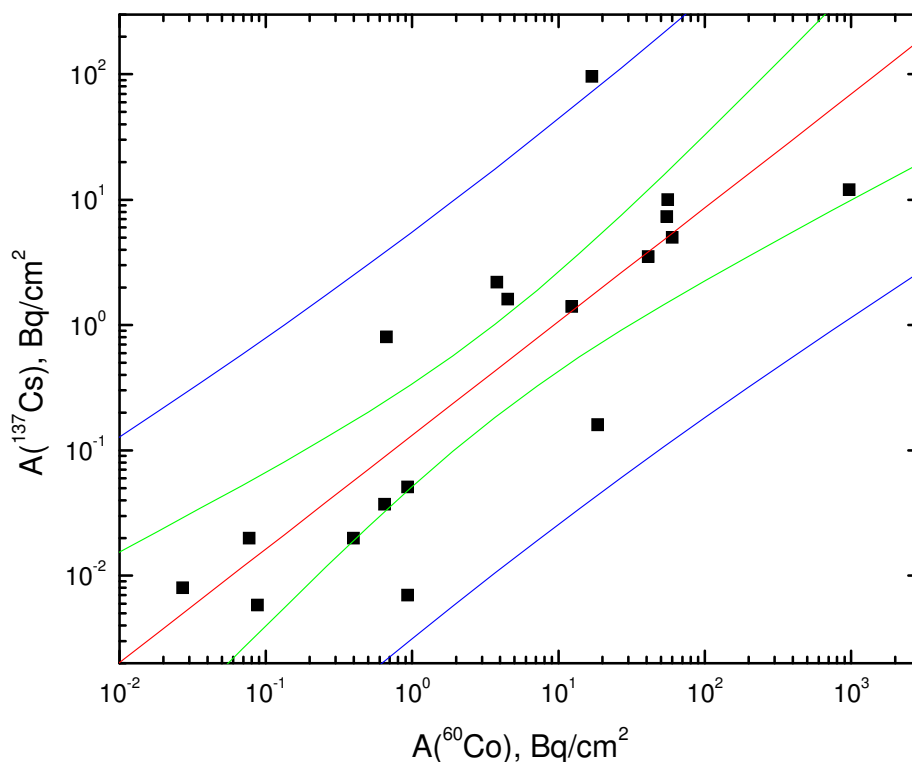
4.1.11 pav. ^{137}Cs ir ^{60}Co aktyvumų priklausomybė turbinų salės įrangoje. $a=1,14\pm 0,36$, $b=0,18\pm 0,13$, $R=0,23$.

Dar prastesnė yra turbinų salės įrangos ^{60}Co ir ^{137}Cs koreliacija (4.1.11 pav.). Tačiau ir čia koreliacija tarp aktyvacijos produktų ^{54}Mn , ^{55}Fe , ^{63}Ni ir

^{60}Co yra gera, atitinkamai $R=0,84$, $R=0,83$ ir $R=0,7$. Gera koreliacija ir tarp transuraninių radionuklidų ^{238}Pu , ^{238}Pu , ^{241}Am , $^{243+244}\text{Cm}$ su $^{239+240}\text{Pu}$, atitinkamai $R=0,98$, $R=0,96$, $R=0,85$ ir $R=0,75$. Tačiau, koreliacija tarp $^{239+240}\text{Pu}$ ir ^{60}Co yra silpnesnė $R=0,51$. Tai, kad turbinų salės įrangos koreliacijos koeficientai mažesni nei kitų atliekų, parodo, kad nepakanka duomenų.

Turbinų salės įrangos ir dujų kontūro įrangos radionuklidinės sudėties vertinimas rodo, kad jei koreliacijos koeficientas mažas, reikia įvertinti ar nesusimaišo keli atliekų srautai su skirtinga nuklidine sudėtimi.

Patalpų V1 įrangą galima suskirstyti į dvi grupes. Į pirmą grupę patenka ventiliacijos ir remontinio aušinimo sistemos, o į antrąją – visa kita įranga, išskyrus dujų valymo sistemą. Taip sugrupavus, gaunama geresnė įrangos ^{60}Co ir ^{137}Cs koreliacija (4.1.12 pav.), o tai leidžia taikyti proporcingumo daugiklių metodą panaudojant atraminį nuklidą ^{60}Co ir pagalbinius radionuklidus. Pirmosios įrangos grupės atliekų gera koreliacija yra tarp ^{90}Sr ir ^{60}Co ($R=0,84$).



4.1.12 pav. ^{137}Cs ir ^{60}Co aktyvumų koreliacija ventiliacijos sistemos įrangoje $a=0,88$, $b=0,91$, $R=0,84$.

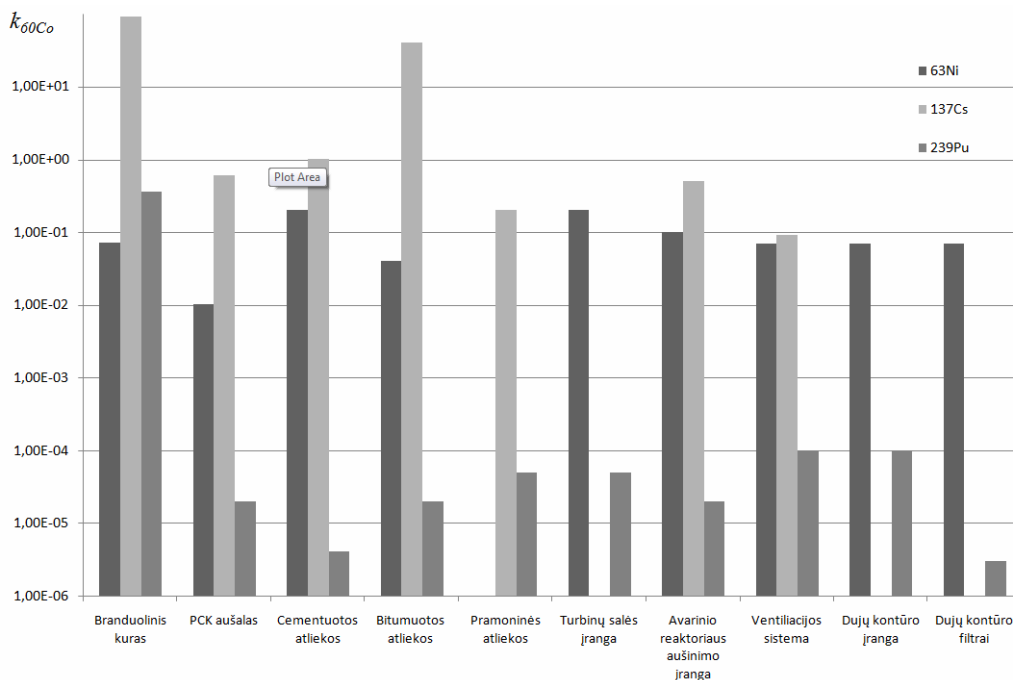
Antrosios atliekų grupės ^{60}Co su ^{137}Cs koreliacija silpna - $R=0,25$. Todėl atliekoms charakterizuoti naudojami du atraminiai nuklidai ^{60}Co ir ^{137}Cs . ^{137}Cs yra atraminis nuklidas ^{134}Cs ir ^{129}I radionuklidams, $k_{137\text{Cs}}^{129}\text{I}$ yra $4,7 \cdot 10^{-7}$, ^{134}Cs - 0,03. Filtrams reikia atskiro nuklidinio vektoriaus, nes radionuklidai absorbuojami nevienodai efektyviai, taip pat ir filtrų radionuklidinė sudėtis kitokia, nei filtruojamų dujų.

Turbinų salėje esančią įrangą galima suskirstyti į 3 grupes taip, kad kiekvienoje grupėje būtų gera ^{60}Co ir ^{137}Cs aktyvumų koreliacija. Pirmojoje grupėje praktiškai nėra ^{137}Cs . Tai aštraus garo, gorotiekių drenažo, pagrindinio kondensato ir maitinančio vandens sistemos. Antrojoje grupėje praktiškai nėra ^{60}Co . Šiai grupei priklauso sprogstamųjų dujų deginimo įrenginys, skirtas sudeginti vandeniliui ir deguoniui, susidariusiems reaktoriuje vykstant rediolizei. Trečiajai grupei išmatuojamas ir ^{137}Cs , ir ^{60}Co . Todėl šios grupės atliekoms charakterizuoti naudojami du atraminiai nuklidai ^{60}Co ir ^{137}Cs . ^{137}Cs yra atraminis nuklidas ^{134}Cs ir ^{129}I radionuklidams, ^{60}Co – visiems likusiems. Atliekų grupėje, kur nėra ^{137}Cs , atraminis nuklidas yra ^{60}Co , o ^{137}Cs , ^{134}Cs ir ^{129}I aktyvumai labai maži ir neviršys nekontroliuojamųjų lygių, todėl šių radionuklidų koncentracijos nenurodomos. Atliekų grupėje, kur nėra ^{60}Co , atraminis nuklidas yra ^{137}Cs . ^{129}I , ^{134}Cs proporcingumo daugikliai $k_{137\text{Cs}}^{129}\text{I}$ - $4,7 \cdot 10^{-7}$, ^{134}Cs - 0,09. Visų radionuklidų, išskyrus ^{137}Cs , ^{134}Cs ir ^{129}I , aktyvumai labai maži ir neviršys nekontroliuojamųjų lygių, todėl šių radionuklidų koncentracijos nenurodomos.

Tai parodo, kad nuklidiniai vektoriai priklauso nuo radioaktyviųjų atliekų technologinių procesų. Radionuklidų sklaidą ir skirtingas atliekų srautų charakteristikas radioaktyviųjų atliekų srautuose lemia skirtingas radionuklidų junginių tirpumas bei RBMK technologinių ypatumai. Charakterizuojant kietasias radioaktyvias atliekas būtini keli nuklidinių vektoriai, atsižvelgiant į charakterizuojamoje įrangoje vykstančius technologinius procesus. Kelių galimų atliekų srautų įtakos rodiklis gali būti silpna koreliacija tarp ^{137}Cs ir ^{60}Co atraminių radionuklidų.

Detaliau nagrinėsime po vieną iš aktyvacijos, dalijimosi produktų ir aktinoidų proporcingumų daugiklių kitimą Ignalinos AE technologinėse grandyse. Skirtingų technologinių grandžių proporcingumo daugikliai pateikti 4.1.13 pav. Pasirenkami ^{63}Ni , ^{137}Cs ir ^{239}Pu .

Palyginę šių radionuklidų proporcingumo daugiklius išmatuotus aušale su kompiuterinio modeliavimo būdu gautais santyškiais kuro rinklėje gauname, kad ^{63}Ni išėjimo greitis iš aktyvuotų konstrukcijų į aušalą yra panašus kaip ^{60}Co (skiriasi nedaugiau 10 kartų). ^{137}Cs išėjimo į aušalą greitis 150 kartų mažesnis nei ^{60}Co , ^{239}Pu – 18000 mažesnis. Atitinkamai sumažėja ir proporcingumo daugikliai. Aušalo ir drenažinio vandens valymo sistemoje atliekų srautas dalijasi į du atliekų srautus: vandens valymui naudojamų jonų mainų filtrų, perlito ir garinimo metu liekančios garinimo liekanos nuosėdų, kurie sucementuoti sudaro cementuotų atliekų srautą ir garinimo liekanos, kuri bitumuojama sudaro bitumuotų atliekų srautą. ^{63}Ni proporcingumo daugiklis kinta nežymiai - cementuotose atliekose padidėja 10 kartų lyginant su daugikliu aušale, o bitumuotose atliekose – 4 kartus. ^{137}Cs proporcingumo daugiklis padidėja iki 2 kartų bitumuotose atliekose ir apie 100 kartų cementuotose. Tai paaiškina, kad ^{137}Cs junginiai labai tirpūs, o ^{63}Ni - netirpūs. Todėl garinimo liekanoje Cs lieka daugiau nei patenka į filtrus ir nuosėdas. O Ni yra atvirkščiai. ^{239}Pu proporcingumo daugiklis kinta nežymiai (5 kartus sumažėja) cementuotose atliekose ir nekinta bitumuotose. ^{239}Pu cheminiai junginiai paprastai būna netirpūs. Trečiasis atliekų srautas, tai dėl sulyčio su aušalu susidarančios kietosios atliekos. Tai pramoninės atliekos, turbinų salės ir reaktoriaus avarinio aušinimo įranga. Šiose atliekose ^{63}Ni ir ^{239}Pu proporcingumo daugikliai kinta nežymiai (ne daugiau kaip 10 kartų). Pramoninėms atliekoms ^{63}Ni neįtrauktas į reikšmingų radionuklidų sąrašą. ^{137}Cs proporcingumo daugiklis priklauso nuo technologinių procesų. Kaip parodė turbinų salės įrangos nuklidinio vektoriaus sudarymas, parodantis, kad į dalį įrangos, kurioje pagrindinę taršą lemia aštrus garas, Cs nepatenka, į sprogstamųjų dujų deginimo įranga patenka tik Cs, o kitai įrangai Cs su ^{60}Co nekoreliuoja.



4.1.13 pav. ⁶³Ni, ¹³⁷Cs ir ²³⁹Pu proporcingumo daugikliai IAE technologinėse grandyse.

Dujinio kontūro, įrangos ir dujų filtrų, kurioje pagrindinę taršą lemia sąlytis su kontūro dujomis, ⁶³Ni proporcingumo daugiklis nežymiai (du kartus mažesnis) skiriasi nuo kietųjų atliekų užterštų dėl sąlyčio su aušalu. Ventiliacijos sistemos įrangoje ⁶³Ni proporcingumo daugiklis toks pats kaip dujų kontūro įrangoje. Dujinio kontūro įrangoje ir dujų filtruose ¹³⁷Cs su ⁶⁰Co nekoreliuoja. Todėl ¹³⁷Cs yra atraminis radionuklidas ¹³⁴Cs ir ¹²⁹I izotopams. Ventiliacijos sistemoje ¹³⁷Cs proporcingumo daugiklis nežymiai skiriasi nuo kitų kietųjų radioaktyviųjų atliekų (ne daugiau kaip 10 kartų). ²³⁹Pu proporcingumo daugiklis dujų kontūro ir ventiliacijos sistemos įrangoje nežymiai (iki 5 kartų didesnis) skiriasi nuo kitų kietųjų radioaktyviųjų atliekų, o dujų filtruose – iki 17 kartų mažesnis.

Palyginus gautus radioaktyviųjų atliekų proporcingumo daugiklius su kitais verdančio vandens tipo reaktorių daugikliais pastebimi ir panašumai, ir skirtumai. RMBK ir BWR reaktorių aktyvacijos produkto ⁶³Ni proporcingumo daugiklis k_{60Co} praktiškai vienodas. Tai parodo, kad reaktorių konstrukcijų medžiagos yra panašios. ⁹⁴Nb proporcingumo daugiklis šimtą kartų didesnis,

nes RBMK kuro kanalai yra iš cirkonio-niobio lydinio, o bendras α spinduolių aktyvumas yra šimtą kartų mažesnis. Tai taip pat parodo reaktorių skirtumus.

4.1.2 lentelė. Proporcingumo daugiklis k_{60Co}

Nuklidas	RBMK-1500	BWR ^[51]
^{14}C	$10^{-3} \div 10^{-1}$	$\sim 6 \cdot 10^{-4}$
^{63}Ni	$10^{-2} \div 10^{-1}$	10^{-1}
^{94}Nb	$10^{-3} \div 10^{-2}$	$10^{-5} \div 10^{-4}$
Bendras α (k_{137Cs})	10^{-4}	$\sim 3 \cdot 10^{-2}$

RBMK – kanalinis reaktoriaus tipas, tai leidžia pasiekti mažesnę išsihermetinusių kuro rinklių lygį. Žymus ^{14}C proporcingumo daugiklio skirtumas taip pat lemiamas RBMK ypatybių, nes neutronų letiklis RBMK reaktoriuje yra grafitas, o dujiniame kontūre cirkuliuojančio azoto aktyvacija taip pat prisideda prie didesnio ^{14}C proporcingumo daugiklio nei BWR reaktoriuose. Tyrimas patvirtina, kad RBMK reaktorius išsiskiria savitu nuklidiniu vektoriumi.

IŠVADOS

1. Parengtas reikšmingų radionuklidų sąrašo sudarymo metodas, kuris remiasi dvejais atrankos kriterijais - radionuklidų pusėjimo trukmės (didesnė nei 0,5 m.) ir radionuklidų savitųjų aktyvumų ir jų nebekontroliuojamųjų lygių santykių - R_i lyginimo su ^{60}Co savitojo aktyvumo ir jo nebekontroliuojamojo lygio santykiu - R_{Co} (R_i/R_{Co} didesnis nei 10^{-5}). Po to sąrašas papildomas kapinyno saugos vertinimui svarbiais radionuklidais, remiantis preliminariais priimtino laidoti atliekas kriterijais. Remiantis šia medodika sudarytas bendras reikšmingų radionuklidų sąrašas, tikslintas kiekvienam srautui atsižvelgiant į radioaktyviųjų atliekų srauto savybes ir atliekų šalinimo būdą.
2. Eksperimentiškai nustatytų korozinių radionuklidų (^{54}Mn , ^{55}Fe , ^{60}Co , ^{63}Ni , ^{65}Zn) tarpusavio aktyvumų koreliacijos koeficientai, dalijimosi produktų tarpusavio aktyvumų koreliacijos koeficientai (^{90}Sr , ^{134}Cs , ^{137}Cs), aktinoidų (^{241}Am , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Pu , $^{243+244}\text{Cm}$) tarpusavio aktyvumų koreliacijos bei atskirų radionuklidų ir atraminių radionuklidų aktyvumų koreliacijos koeficientai Ignalinos atominės elektrinės radioaktyviųjų atliekų srautuose dažniausiai yra tarp 0,8 ir 0,98 (regresijos koeficientas yra artimas vienetui) ir tik retais atvejais tarp 0,7 ir 0,8. Tai pagrindžia nuklidinio vektoriaus metodo tinkamumą charakterizuoti RBMK radioaktyviasias atliekas.
3. Naudojamo metodo nuklidiniam vektoriui nustatyti patikimumą rodo skirtingų Pu izotopų (alfa spinduolių $^{239+240}\text{Pu}$ ir beta spinduolio ^{241}Pu) išmatuotų aktyvumų santykių gera koreliacija (koreliacijos koeficientas yra tarp 0,88 ir 0,98 visais atvejais, išskyrus vieną, kai jis yra lygus 0,8).
4. Atraminius nuklidais charakterizuoti RBMK reaktoriaus radioaktyviasias atliekas tikslinga pasirinkti ^{60}Co ir/arba ^{137}Cs . Kai radionuklido ^{60}Co savitasis aktyvumas yra apytikriai lygus arba didesnis negu radionuklido ^{137}Cs savitasis aktyvumas ir stebima gera šių

radionuklidų aktyvumų koreliacija, atraminiu nuklidu tikslinga pasirinkti ^{60}Co , nes šio radionuklido aptikimo slenkstis radioaktyviųjų atliekų pakuotėse yra mažesnis negu ^{137}Cs ir stebima gera ^{60}Co ir aktinoidų aktyvumų koreliacija (koreliacijos koeficientas yra tarp 0,8-0,93). Jei radionuklido ^{60}Co savitasis aktyvumas yra daug mažesnis negu radionuklido ^{137}Cs savitasis aktyvumas, atraminiu nuklidu tikslinga pasirinkti ^{137}Cs . Tais atvejais, kai šių radionuklidų aktyvumų koreliacija silpna (pvz., kai nagrinėjamas apimantis filtrų sistemą radioaktyviųjų atliekų srautas), reikia pasirinkti du atraminius nuklidus: ^{60}Co ir ^{137}Cs .

5. Korozinių radionuklidų ir ^{60}Co aktyvumų santykiai (porcingumo daugikliai $k_{60\text{Co}}$) praktiškai (dydžio eilės tikslumu) yra vienodi visose RBMK reaktoriaus radioaktyviosiose atliekose. Aktinoidų ir ^{60}Co aktyvumų santykiai įvairiuose RBMK reaktoriaus radioaktyviosiose atliekose kinta nedaug (pvz., mažiausi ^{239}Pu porcingumo daugikliai $k_{60\text{Co}}$ dujų filtruose ir cementuotose atliekose skiriasi nuo didžiausių dujų kontūro įrangoje ir ventiliacijos sistemoje apie 30 kartų). Tačiau dalijimosi produktų ir ^{60}Co aktyvumų santykiai įvairiuose RBMK reaktoriaus radioaktyviosiose atliekose gali žymiai skirtis (pvz., ^{137}Cs porcingumo daugikliai $k_{60\text{Co}}$ kinta nuo $9 \cdot 10^{-2}$ ventiliacijos sistemoje iki 40 bitumuotose atliekose, ^{90}Sr - nuo $1 \cdot 10^{-4}$ iki $2 \cdot 10^{-2}$). ^{14}C ir ^{60}Co aktyvumų santykiai kinta nuo dešimčių iki tūkstančių kartų (pvz., nuo $7 \cdot 10^{-2}$ turbinų salės įrangoje iki 17 dujų kontūro įrangoje). Todėl tikslinga RBMK reaktoriaus radioaktyviosiose atliekose išskirti atskirus atliekų srautus, kuriuose porcingumo daugikliai kinta nedaug, ir šiuos radioaktyviųjų atliekų srautus charakterizuoti skirtingais nuklidiniais vektoriais.
6. Radionuklidų aktyvumo absoliučios vertės atliekose lemia jų saugojimo ir šalinimo būdus, o jie nulemia, kokie radionuklidai atliekose turi būti deklaruojami. Todėl išskiriant skirtingais nuklidiniais vektoriais apibūdinamus radioaktyviųjų atliekų srautus, reikia atsižvelgti ir į tai,

kokie radionuklidai šiose atliekose turi būti deklaruojami. Ištirti trys Ignalinos AE radioaktyviųjų atliekų srautai: cementuotų atliekų, bitumuotų atliekų ir trumpaamžių kietųjų atliekų. Kietųjų atliekų sraute išskirti 8 srautai, apibūdinti atskirais nuklidiniais vektoriais: pramoninių kietųjų atliekų; reaktoriaus avarinio aušinimo sistemos įrangos; turbinų salės įrangos, neįskaitant aštraus garo sistemos įrangos ir sprogstamųjų dujų deginimo įrangos; aštraus garo sistemos įrangos (jame praktiškai nėra ^{137}Cs); sprogstamųjų dujų deginimo įrangos (jame praktiškai nėra korozinių produktų ir aktinoidų); dujų kontūro įrangos, neįskaitant ventiliacijos sistemos įrangos bei dujų filtrų; dujų kontūro ventiliacijos sistemos įrangos; dujų kontūro dujų filtrų.

PADĖKA

Dėkoju visiems kolegoms iš Fizikos instituto ir ypač straipsnių bendraautoriams dalyvavusiems radioaktyviųjų atliekų charakterizavimo darbuose ir sukūrusiems eksperimentinių duomenų bazę, kuria naudojausi rašydamas šį darbą.

Esu ypatingai dėkingas moksliniam vadovui prof., dr. Vidmantui Remeikiui už pasiūlytą įdomią disertacijos temą, vertingus patarimus ir pastabas bei skatinimą.

Dėkoju dr. Artūriui Plukiui, dr. Grigorijui Duškesui ir dr. Laurynui Juodžiui už suteiktas mokslines konsultacijas ir pagalbą.

Esu dėkingas savo šeimai už paramą, kantrybę ir supratimą.

NAUDOTOS LITERATŪROS SARAŠAS

1. Gylys J., Branduolinio kuro ciklas, Technologija, (1999) Kaunas.
2. Radiation Protection recommendations as Applied to the Disposal of Long-lived Solid radioactive Waste, ICRP recommendation 81, Pergamon, Oxford, New York Tokyo, 2000
3. Radiation Protection Recommendations as Applied to the Disposal of Long-lived Solid Radioactive Waste, ICRP Publication 81, Pergamon (1998).
4. Lin C. C., Radiochemistry in Nuclear power Reactors, National Academy press, Washington D. C., (1996)
5. Bylkin B.K. and others, Induced Radioactivity and Waste classification of Reactor Zone Components of the Chernobyl NPP Unit 1 after Final Shutdown, Nuclear Technology, vol. 136, p. 76-88 (2001).
6. Былкин Б.К., Давыдова Г.Б., Краюшкин А.В., Шапошников В.А., Расчетные оценки радиационных характеристик облученного графита после окончательного останова АЭС с РБМК. Атомная энергия, т. 96, вып. 6, с. 451-457, (2004)
7. Былкин Б.К., Давыдова Г.Б., Краюшкин А.В., Шапошников В.А. Радиационные характеристики реакторных конструкций после окончательного останова АЭС с РБМК. Атомная энергия, т. 97, вып. 6, с. 451-457, (2004)
8. Ancius D., RBMK- reaktorius grafito radionuklidinės sudėties evoliucija, Daktaro disertacija, Vilnius, Fizikos institutas, (2006).
9. Šmaižys A., Narkūnas E., Poškas P., Evaluation of Neutron Activation Processes in RBMK-1500 Reactor's Graphite, Lithuanian Journal of Physics, vol. 43, 6:499-503 (2003).
10. Бушуев А. В., Зубарев В. Н., Прошин И. М., Состав и содержание примесей в графите промышленных реакторов, Атомная энергия, т. 92. Вып.4. С. 298-302, (2002).

11. Виргильев, Ю. С. Примеси в реакторном графите и его работоспособность, Атомная энергия, 84. Вып.1. С. 7-15. (1998).
12. Ancius D., Ridikas D., Remeikis V., Plukis A., Plukienė R., Cometto M. Radiological characteristics of the irradiated graphite from RBMK-1500 reactor, Environmental and Chemical Physics, p.p. 140-147, vol 26, No 4 (2004).
13. Ancius D., Ridikas D., Remeikis V., Plukis A., Plukienė R., Cometto M. Evaluation of the activity of irradiated graphite in the Ignalina Nuclear Power Plant RBMK-1500 reactor, Nukleonika, p.p. 113-120, vol 50, No 3 (2005) http://www.ichtj.waw.pl/ichtj/nukleon/back/full/vol50_2005/v50n3p113f.pdf.
14. Narkūnas E., Šmaižys A., Poškas P., Reaktoriaus RBMK-1500 konstrukcinių elementų neutroninės aktyvacijos skaitinis vertinimas. 1. Kuro kanalų (lydinio E125) neutroninės aktyvacijos skaitinis vertinimas, Energetika, Nr. 1, p. 1-8, (2005).
15. Игналинская АЭС Отчет по безопасности, Глава 4. Реактор Раздел 4.13 Физические характеристики реактора (1999).
16. Narkūnas E., Šmaižys A., Poškas P., Reaktoriaus RBMK-1500 konstrukcinių elementų neutroninės aktyvacijos skaitinis vertinimas 2. Atraminių ir apsauginių plieno plokščių neutroninės aktyvacijos skaitinis vertinimas, Energetika, T. 54, Nr. 2, p. 26-32 (2008).
17. Pavaras A., Žvinys J., Plienai. Kaunas: Technologija, (1995).
18. Remeikis, V., Klevinskas, G., Juodis, L., Plukis, A., Plukienė, R., Analysis of the relative release rate of radionuclides from the RBMK-1500 reactor fuel elements. Nucl. Eng. Des. 237 (8), 840-847. (2007).
19. White, R.J., The fractal nature of the surface of uranium dioxide: a resolution of the short-lived /stable gas release dichotomy, J. Nucl. Mater. 295, 133-148 (2001).
20. Lösönen, P., On the behaviour of intragranular fission gas in UO₂ fuel. J. Nucl. Mater. 280, p. 56–72 (2000).

21. Lewis, B.J., Fundamental aspects of defective nuclear fuel behaviour and fission product release. *J. Nucl. Mater.* 160, p. 201–217 (1988).
22. Lewis, B.J., Husain, A., Modelling the activity of ^{129}I in the primary coolant of a CANDU reactor. *J. Nucl. Mater.* 312, p. 81–96. (2003).
23. Klevinskas, G., Juodis, L., Plukiene, R., Plukis A., Remeikis V., Analysis of iodine release from the defective fuel elements of the RBMK-1500 reactor. *Lith. J. Phys.* 47 (2), 211-219. (2007).
24. Klevinskas, G., Juodis, L., Plukis A., Plukiene, R., Remeikis V., Determination of ^{129}I activity in the RBMK-1500 main circulation circuit. *Nucl. Eng. Des.* 238 (7), 1518-1524, (2008).
25. Poškas P., Zujus R., Brazauskaitė A., Kolesnikovas J., and Būdvytis G., Radiological characterization of the main circulation circuit of the first unit at Ignalina NPP, *Lith. J. Phys.*, vol. 43 (6), 493-499 (2003).
26. Poškas P., Zujus R., Brazauskaitė A., Kolesnikovas J., Būdvytis G., Ignalinos AE 1-ojo bloko priverstinės cirkuliacijos kontūro radiologinis įvertinimas, *Energetika*, Nr. 4, (2003).
27. Müller W., Activity determination and declaration – an overview, International Workshop on Determination and declaration of Nuclide Specific Activity Inventories in Radioactive Wastes, Cologne, Germany 2001.
28. Brennecke P., Steyer S., Thiel J.. Determination of Permissible Radionuclide-Specific Activities Due to Disposal Related Safety Investigations. International Workshop on Determination and declaration of Nuclide Specific Activity Inventories in Radioactive Wastes, Cologne, Germany 2001.
29. Grundler D., Stephan G., Applying scaling factors in practice-determination of activities in routine waste declaration. International Workshop on Determination and declaration of Nuclide Specific Activity Inventories in Radioactive Wastes, Cologne, Germany 2001.

30. Dutzer M., From Waste Packages Acceptance Criteria to Waste packages Acceptance process at the Centre De l'Aube Disposal Facility, WADRAP, 23-26 Sep 2002.
31. Brazauskaitė A., Poškas P., Radionuklidų sklaida iš kristalinėse uolienose įrengto kapinyno RBMK-1500 panaudotam branduoliniam kurui laidoti. 2. Geologinio kapinyno saugos įvertinimui svarbių radionuklidų identifikavimas, Energetika Nr. 2, p. 47–56 (2006).
32. Project Opalinus Clay: Models, codes and data for safety assessment. Demonstration of disposal feasibility for spent fuel, vitrified high-level waste and long-lived intermediate-level waste (Entsorgungsnachweis). Nagra Technical Report NTB 02-06, Wetingen, (2002).
33. De Regge P., Vanderlinden F., Verrezen F., Determination of Disposal Critical Nuclides in Waste from PWR Power Plants, SCK·CEN Report (1996)
34. Kekki T., Tiitta A., Evaluation of Radioactive Waste Characterisation at the Olkiluoto Nuclear Power Plant, STUK-YTO-TR 162 (2000)
35. Morales A., El Cabril Low and Intermediate Level Waste Disposal Facility (Spain). New Acceptance Criteria, Conference on Waste Management WM'05, Tuscon, AZ, February 27-March 2005
36. Стефанова И., Погребване на ниско- и средноактивни отпадъци, Термит 97 ЕООД, (2003), София.
37. United States Code of Federal Regulations, Title 10, Part 61, Licensing Requirements for Land Disposal of Radioactive Waste, U.S. NRC, Washington D.C.
38. Husain A., Scaling Factor Development for Ontario Power Generation's Low Level Waste – an Overview, International Workshop on Determination and declaration of Nuclide Specific Activity Inventories in Radioactive Wastes, Cologne, Germany 2001.
39. Mrskova A., Hanusik V., Kopcani I., Stubna M., Performance Assessment of the National Radwaste Repository Mochovce,

Conference on Waste Management WM'01, Tuscon, AZ, 25 February – 1 March 2001.

40. Masui H., Kashiwagi M., Ozaki H., Low-Level Radioactive Waste Evaluation Practice in Japan and Suggestion for Rationalization, Workshop on Determination and declaration of Nuclide Specific Activity Inventories in Radioactive Wastes, Cologne, Germany 2001.
41. Site Selection Procedure for Repository Sites, Recommendations of the AkEnd – Committee on a Site Selection Procedure for Repository Sites, Cologne (2002).
42. Mažo ir vidutinio aktyvumo trumpaamžių sucementuotų radioaktyviųjų atliekų, numatomų laidoti paviršiniame kapinyne, preliminarios ribinio aktyvumo vertės, patvirtintos RATA direktoriaus 2003 kovo -31 d. įsakymu Nr. 15.
43. Robertson D. E., Thomas C. W., Pratt S. L., Lepel E. A., Thomas V. W., Low-level Radioactive Waste Classification, Characterization and Assessment: Waste Streams and Neutron-Activated Metals, NUREG/CR-6567, U. S. NRC, Washington D. C. (2000).
44. Lindgren M., Pettersson M., Wiborgh M., Correlation factors for C-14, Cl-36, Ni-59, Ni-63, Mo-93, Tc-99, I-129 and Cs-135 In operational waste for SFR 1. SKB Rapport R-07-05, (2007).
45. Brown F. J., Palmer J. D., Wood P., Derivation of a Radionuclide Inventory for Irradiated Graphite-Chlorine-36 Inventory Determination.
46. Poncet B. R., Characterization of graphite sleeves from Bugey 1 EDF Plant for Permanent Disposal – Measurement and Calculation of Scaling Factors for Difficult-to-Measure Nuclides, Proceedings of the Conference on Waste Management WM'03, Tucson, USA, February 23-27 2003.
47. Kashiwagi M., Müller W., Lantes B., Considerations of the Activity Determination Method for Low-level Waste Packages and Nuclide Data Comparison Between Different Countries. International conference

Safety of Radioactive Waste Management, Cordoba, Spain, 13-17 March 2000.

48. Efraimsson H., Estimation of radionuclides difficult to measure in nuclear waste – current practices and future regulation in Sweden. Workshop on Determination and declaration of Nuclide Specific Activity Inventories in Radioactive Wastes, Cologne, Germany 2001.
49. Schäfer B., Müller W., Combining Burn-up Calculations with Scaling Factors – A Method to Improve Determination of Alpha Emitters. Workshop on Determination and declaration of Nuclide Specific Activity Inventories in Radioactive Wastes, Cologne, Germany 2001.
50. Masui H., Kashiwagi M. and Ozaki Y. Rationalization of Radioactivity Concentration Determination Method for Low-level Radioactive Waste Generated at Japanese Nuclear Power Plants, International Conference on Environmental Remediation and Radioactive Waste Management: IECM'01, Bruges, (2001).
51. Masui H., Kashiwagi M., Müller W., Lantes B. Suggestion to Waste Classification for Scaling Factor Method, International Conference on radioactive waste management and environmental remediation: IECM'03, Oxford, (2003).
52. W. Wurtinger, W. Müller, Scaling factors, waste characterisation and beyond, Waste Management Conference '98, Tucson, (1998).
53. ISO 2007 Standard 21238, Nuclear energy – Nuclear fuel technology – Scalingfactor method to determine the radioactivity of low- and intermediate-level radioactive waste packages generated at nuclear power plants, (2007)
54. Šmaižys A., Poškas P., Remeikis V. Černobylio AE branduolinio kuro izotopų charakteristikų kitimo modeliavimas ir palyginimas su avarijos metu išmestų elementų tyrimo rezultatais, Energetika, Nr. 2, p. 8-13, (2003)

55. Remeikis V., Plukis A., Kimtys E., et al. Modeling of the actinidic composition of nuclear waste and spectrometric analysis. *Environmental Physics*, vol. 19, No. 2, p. 5-9, (1997).
56. Kimtys E., Plukis A., Plukienė R., Bražiūnas G., Goberis P., Gudelis A., Druteikienė R., Remeikis V., Analysis of plutonium isotopic ratios using the SCALE 4.4A code package. *Environmental and Chemical Physics*, vol 22, No. 3-4, (2000).
57. Bowman, S.M., Hollenbach, D.F., DeHart, M.D., et al., SCALE 5: Powerful new criticality safety analysis tools. In: Proc. 7th Int. Conf. on Nuclear Criticality Safety (ICNC2003), Tokai-Mura, Japan. (2003).
58. Gauld I. C., Hermann O. W., Westfall R. M, ORIGEN-S: SCALE system module to calculate fuel depletion, actinide transmutation, fission product buildup and decay, and associated radiation source terms. Ouk Ridge National Laboratory, Ouk Ridge (2005).
59. Bowman S. M., Leal L. C., ORIGEN-ARP: Automatic Rapid Process for Spent Fuel Depletion, Decay, and Source Term Analysis, ORNL/NUREG/SCD-2/V1/R6. Ouk Ridge National Laboratory, Ouk Ridge (2000).
60. Jordan W. C., Bowman S. M., Scale Cross-Section Libraries. ORNL/NUREG/CSD-2/V3/R6. Ouk Ridge National Laboratory, Ouk Ridge (2000).
61. Galutinis Ignalinos AE 1 ir 2 blokų eksploatavimo nutraukimo planas, ataskaita A1.1/ED/B4/0004, IAE-ENPVG (2004).
62. Eksploatavimo nutraukimo projektas UIDP0 4 skyrius Radiologinis ir kenksmingų medžiagų inventoriai, ataskaita A1.4/ED/B4/0004, IAE-ENPVG (2006).
63. Lemmens A., Centner B. B., Beguin P., Mannaerts K., Determination and Declaration of Critical Nuclide Inventories in Belgian NPP Radwaste Streams, Conference on waste management WM'99, February 28 – March 4, 1999.

64. ISO 1994 Standard 5725-2, Accuracy (trueness and precision) of measurement methods and results - Part 2: Basic method for the determination of repeatability and reproducibility of a standard measurement method, (1994).
65. Considerations in the Development of Near Surface Repositories for Radioactive Waste, Technical reports series No 417, IAEA, Vienna, 2003.
66. Dutzer M., Chastagner F., Ricquart N., Duret F., Disposal of Very Low Level Waste and Safety Assessment, Proceedings of an International Symposium on Disposal of Low Activity Radioactive Waste, Cordoba, 13-17 December 2004.
67. Zuloaga P. Management of Very Low Activity Radioactive Waste in Spain, Proceedings of the International Symposium on Disposal of Low Activity Radioactive Waste, Cordoba, 13-17 December 2004.
68. Potier J.-M., Final Closure of a Low Level Waste Disposal Facility, Proceedings of the International Symposium on Planning and Operation of Low Level Waste Disposal Facilities, Vienna, 17-21 June 1996.
69. Parker F.L. Low Level Radioactive Waste – High Tech Solution? Proc. Int. Symp. on Planning and Operation of Low Level Waste Disposal Facilities, Vienna, 17-21 June 1996
70. Andre T. Experience of an Engineering Company in Shallow Land Disposal of L/ILW, Proceedings of the International Symposium on Planning and Operation of Low Level Waste Disposal Facilities, Vienna, 17-21 June 1996.
71. Zuloaga, P. Guerra-Librero A., Morales A., L/ILW Disposal Experience in Spain After the Startup of El Cabril Disposal Facility, Proceedings of the International Symposium on Planning and Operation of Low Level Waste Disposal Facilities, Vienna, 17-21 June 1996.
72. Status Report on the Development of the 2002 Drigg Post-Closure Safety Case, BNFL report, (2000).

73. Sakabe Y., Disposal Concept and its Development for the Rokkasho Low Level Radioactive Waste Disposal Centre, Proc. Int. Symp. on Planing and Operation of Low Level Waste Disposal Facilities, Vienna, 17-21 June 1996.
74. Grevoz A., The Disposal of Irradiated Grafite in France, Proc. Int. Symp. On Disposal of Low Activity Radioactive Waste, Cordoba, Spain, 13-17 December 2004.
75. Carlsson J. S., Karlson F., Riggare P., Assessment of the Long Term Performance of the Disposal Swedish Final Repository for Radioactive Waste, SFR, Proc. Int. Symp. on Planing and Operation of Low Level Waste Disposal Facilities, Vienna, 17-21 June 1996.
76. Cochran J. R., Hasan A., Greater Confinement Disposal of Radioactive Waste in Borehole Facilities, Proc. Int. Symp. On Disposal of Low Activity Radioactive Waste, Cordoba, Spain, 13-17 December 2004.
77. The Safety on a Repository at Yucca Mountain, U.S. DOE report, (2008).
78. Marschall P., Blümling P., Mazurek M., Geoscientific Basis for making the Safety Case for a SF/HLW/ILW Repository in Opalinus Clay in the Switzerland, III: Repository-induced Effects: EDZ, Repository Gas Release, Self-sealing. First AMIGO Workshop Proceedings, Yverdon-les-Bains, Switzerland 3-5 June 2003, NEA No. 4309, (2004)
79. Martin C D., Christiansson R., Söderhäll J., Rock stability considerations for siting and constructing a KBS-3 repository, SKB technical report TR-01-38, (2001).
80. Åhäll K. I., Final Deposition of High-level Nuclear Waste in Very Deep Boreholes, An evaluation based on recent research of bedrock conditions at great depths, MKG report 2, (2006).
81. Fergus G., Gibb F., High-temperature, very deep, geological disposal: a safer alternative for high-level radioactive waste?, Waste Management, Vol. 19, iss. 3, p. 207-211 (1999).

82. Almenas K., Kaliatka A., Ušpuras E., Ignalina RBMK-1500. A source book. 2nd ed. ISAG Lithuanian Energy Institute, (1998) Kaunas.
83. Antrojo IAE bloko saugos analizės ataskaita, 10 užduotis Radioaktyviųjų atliekų tvarkymas, 1-as skyrius Radioaktyviųjų atliekų šaltinių aprašymas. (2004).
84. Antrojo IAE bloko saugos analizės ataskaita, 1 užduotis Sistemų aprašymas, 16-as skyrius Radiacinės apsaugos sistema. 16.3 skirsnis Skystųjų radioaktyviųjų atliekų perdurbimo kompleksas. (2004)
85. Отчет по анализу безопасности 2-го энергоблока ИАЭС, Задача 10. Обращение с радиоактивными отходами Глава 5. Система обращения с газообразными радиоактивными отходами. (2004)
86. Отчет по анализу безопасности 2-го энергоблока ИАЭС Задача 1. Описание систем, Глава 4. Реактор Раздел 4.17, Газовый контур. (2004).
87. Gudelis A., Remeikis V., Plukis A., Lukauskas D. Efficiency calibration of HPGe detectors for measuring environmental samples. Environmental and Chemical Physics, Vol. 22, 3-4, 117-125, (2000).
88. LIETUVOS RESPUBLIKOS APLINKOS MINISTERIJA. Aplinkos elementų užterštumo radionuklidais matavimas – mėginių gama spektrinė analizė spektrometru, turinčiu puslaidininkinį detektorių. LR aplinkos apsaugos normatyvinis dokumentas LAND 36-2000 2000. LST ISO 78-2, Chemija. Standartų sandara. 2dalis. Cheminės analizės metodai (tapatus ISO 78-2:1999).
89. Warwick P. E., Croudance I. W., Separation of iron-55/59 from fission and activation products using Diisobutylketone-based extraction chromatographic materials. In: Environmental Radiochemical analysis II, ed. P. Warwick (Royal Society of Chemistry, Southampton), p 417, (2002).
90. Testa C., Desideri D., Meli M. A., Roselli C., Extraction Chromatography in Radioecology. Radioactivity Radiochem., Vol. 2, No. 4, 46-55, (1991).

91. Hou X., Ostergaard L. F. Nielsen S. P., Determination of ^{63}Ni and ^{55}Fe in nuclear waste samples using radiochemical separation and liquid scintillation counting. *Analytica Chimica Acta* 535, 297-307, (2005).
92. Maxwell, S.L., Rapid column extraction method for actinides and Sr-89/90 in water samples. *J. of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 267 (3), p. 537-543 (2006).
93. Horwitz E. P., Dietz L., Chiarizia R. M., Diamond H., Maxwell S. L., Nelson M. R., . Separation and preconcentration of actinides by extraction chromatography using a supported liquid anion exchanger: application of the characterization of high-level nuclear waste solutions. *Analytica Chimica Acta* 310, 63-78, (1995).
94. Horwitz E.P., Chiarizia R., Dietz M. L., Diamond H., Nelsen D. M., Separation and preconcentration of actinides from acidic media by extraction chromatography, *Analytica Chimica Acta*, Vol. 281, 361-372, (1993)
95. Horwitz E.P., McAlister D. R., Bond A. H., Barrans Jr. R. E., Novel extraction chromatographic resins based on tetraalkyldiglycolamides: characterization and potential applications. *Solvent Extraction and Ion Exchange* 23, p. 219, (2005).
96. Fern, M., Thakkar, A., Jassin, L., Recent developments in the analysis of technetium-99. *J. of Nuclear and Radiochemical Sciences* 6 (3), 223-225, (2005).
97. Qingjiang Chen, Asker Aarkrog, Sven P. Nielsen, Henning Dahlgaard, Bjørn Lind, A. K. Kolstad and Yixuan Yu., Procedures for Determination of $^{239,240}\text{Pu}$, ^{241}Am , ^{237}Np , $^{234,238}\text{U}$, $^{228,230,232}\text{Th}$, ^{99}Tc and ^{210}Pb - ^{210}Po in Environmental Materials, Risø National Laboratory, Roskilde, February 2001.
98. Hou X. L., Dahlgaard H., Nielsen S. P. Iodine-129 Time series in Danish, Norwegian and Northwest Greenland Coast and the Baltic Sea by Seaweed. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, Vol. 51, 571-584, 2000.

99. Hou X. L., Dahlgaard H., Nielsen S. P. Chemical speciation analysis of ^{129}I in seawater and a preliminary investigation to use it as a tracer for geochemical cycle study of stable iodine. *Marine Chemistry*, Vol. 74, 145-155, 2001.
100. Hou X. L., Dahlgaard H., Nielsen S. P., Kucera J. Level and origin of Iodine -129 in the Baltic Sea. *J. Environ. Radioact.*, Vol. 61, 331-343, 2002.
101. Frechou C., Calmet. ^{129}I in the environment of the La Hague nuclear fuel reprocessing plant – from Sea to Land. *J. Environ. Radioact.*, Vol. 70, 1-2, 43-59, 2003.
102. Schmidt A., Schanabel Ch., Handl J., Jakob D., Michel R., Synal H.-A., Lopez J. M., Suter M. On the analysis of iodine-129 and iodine-127 in environmental materials by accelerator mass spectrometry and ion chromatography. *Sci. Tot. Environ.*, Vol. 223, 131-156, 1998.
103. Povinec P. P., Baxter M. S., Gastaud J., Kwong L., Oregioni B. Low-level liquid scintillation spectrometry of soft beta emitters. In Cook G. T., Harkness D. D., McKenzie A. B., Miller B. F., Scott E. M. *Liquid scintillation spectrometry*, 149-155. (1994).
104. Dodson C. L. Radionuclide identification in liquid scintillation spectrometry. In Cook G. T., Harkness D. D., McKenzie A. B., Miller B. F., Scott E. M. *Liquid scintillation spectrometry*, 361-364 (1994).
105. Scheuerer C., Schupfner R., Schuttelkopf H., A very sensitive LSC procedure to determine Ni-63 in environmental samples, steel and concrete. *J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles*, 193, 1, 127-131. (1995).
106. Konig W., Schupfner R., Schuttelkopf H., A fast and very sensitive LSC procedure to determine Fe-55 in steel and concrete. *J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles*, 193, 1, 119-125. (1995).
107. Darrall K. G., Hammond G. C. M., Tyler J. F. C., The determination of plutonium-241 in effluents. *Analyst*, 98, 358-363. (1973).

108. Reboul S. H., Fjeld R. A., A rapid method for determination of beta-emitting radionuclides in aqueous samples. *Radioactivity & Radiochemistry*, 5(3), 42-49. (1994).
109. Verrezen F., Hurtgen C., The measurement of technetium-99 and iodine-129 in waste water from pressurized nuclear-power reactors. *Appl. Radiat. Isot.* 43 (1/2), 61-68. (1992).
110. Amano H., Yanase N., Measurement of Sr-90 in environmental samples by cation-exchange and liquid scintillation counting. *Talanta*, 37(6), 585-590. (1990).
111. Vajda N., Ghods-Esphahani A., Cooper E., Danesi P. R. Determination of radiostrontium in soil samples using a crown ether. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 162, 307. (1992).
112. Kojima S., Furukawa M., Liquid scintillation counting of low activity ^{63}Ni . *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 95(5), 323-329. (1985).
113. Remeikis, V., Jurkevicius, A., Evolution of the neutron sensor characteristics in the RBMK-1500 reactor neutron flux. *Nucl. Eng. Des.* 231 (3), 271-282. (2004).
114. DeHart M. D., TRITON: a two-dimensional depletion sequence for characterization of spent nuclear fuel, ORNL/TM-2005/39, vol. I, Book 3, Sect. T1. (2005).
115. Remeikis V., Lukauskas D, Baltrūnas D., Plukis A., Fuškesas G., Drūteikienė R., Lukšienė B., Lujanienė G., Gudelis A., Methods of determining safety-relevant radionuclides in the nuclear power plant radioactive waste. *Environmental and Chemical Physics*, Vol. 26, 4, 157-163, (2004).
116. Radionuklidų nebekontroliuojamieji lygiai; medžiagu pakartotinio naudojimo ir atliekų šalinimo sąlygos, Lietuvos Respublikos aplinkos apsaugos normatyvinis dokumentas LAND 34-2000, Lietuvos Respublikos aplinkos ministerija, (2000).

117. V. Jakimavičiūtė-Maselienė, J. Mažeika, R. Petrošius, S. Motiejūnas, Maišiagalos radioaktyviųjų atliekų saugyklos stebėjimai ir saugos vertinimas. Sveikatos mokslai, , 2, p. 28-33 (2004).
118. D. Grigaliūnienė, V. Ragaišis, P. Poškas, Radionuklidų migracijos iš Maišiagalos radioaktyviųjų atliekų saugyklos įvertinimas, Energetika, Nr. 2. (2000).
119. Paviršinio radioaktyviųjų atliekų kapinyno įrengimo PAV ataskaita, RATA, (2007).
120. Pagrindinės radiacinės saugos normos, Lietuvos higienos norma HN 73:2001. Lietuvos Respublikos sveikatos apsaugos ministerija, (2001).
121. Recommended radiological protection criteria for the clearance of buildings and building rubble from the dismantling of nuclear installations, European Commission, Radiation protection 113, (2000).
122. Definition of Clearance Levels for the Release of Radioactively Contaminated Buildings and Building Rubble, European Commission, Radiation protection 114, (1999).
123. Отчет по анализу безопасности 2-го энергоблока ИАЭС. Задача 5. Анализ аварий. Глава 1. Методология анализа аварий. Раздел 1.1. База исходных данных и инженерные справочники. Подраздел 1.1.1. База исходных данных для модели КМПЦ, ИАЭС, код ПТОаб2-0345-5111 В2, (2003).
124. Отчет по анализу безопасности 2-го энергоблока ИАЭС. Задача 1. Описание систем. Глава 5. Контур многократной принудительной циркуляции. Раздел 5.1. Контур многократной принудительной циркуляции. ИАЭС, код ПТОаб2-0345-151В1, (2002).
125. Žmogaus vartojamo žalio vandens kokybės higieniniai reikalavimai, Lietuvos higienos norma HN 48:2001, Lietuvos Respublikos sveikatos apsaugos ministerija, (2001).