

Ильин Л.А.¹, Самойлов А.С.¹, Цовьянов А.Г.¹, Шинкарев С.М.¹, Шандала Н.К.¹, Ганцовский П.П.¹, Карев А.Е.¹, Кухта Б.А.¹, Симаков А.В.¹, Клочков В.Н.¹, Коренков И.П.¹, Лягинская А.М.¹, Парин О.В.¹, Соломатин В.М.², Измestьев К.М.³

РАДИАЦИОННО-ГИГИЕНИЧЕСКИЕ ИССЛЕДОВАНИЯ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОГО ПРОИЗВОДСТВА СМЕШАННОГО НИТРИДНОГО УРАН-ПЛУТОНИЕВОГО ТОПЛИВА НА АО «СХК».

Часть 1: Методы и результаты

¹Федеральный медицинский биофизический центр имени А.И. Бурназяна ФМБА России, Москва.

² АО «Прорыв», Москва

³ АО «СХК», Северск

Контактное лицо: Александр Георгиевич Цовьянов: fmbsc-fmba@bk.ru

РЕФЕРАТ

Цель: Представить методы и результаты исследований факторов радиационного воздействия на персонал, участвующий в изготовлении смешанного нитридного уран-плутониевого (СНУП) топлива на комплексных экспериментальных установках КЭУ-1 и КЭУ-2 АО «СХК».

Материал и методы: На основе изучения динамики мощности амбиентного эквивалента дозы (МАЭД) фотонного и нейтронного излучений на рабочих местах КЭУ-1 и КЭУ-2, инструментального индивидуального дозиметрического контроля эквивалентных доз облучения персонала выявлены закономерности формирования доз внешнего облучения. Для оценки ингаляционного поступления и возможных доз внутреннего облучения проведены исследования физико-химических свойств радиоактивных аэрозолей.

Результаты: Установлено, что основными источниками проникающих излучений в помещениях КЭУ-1 являются боксы, где происходит прессование таблеток, дробление шашек и бракованных таблеток, а также временное хранение продукции. Наибольшие значения МАЭД зарегистрированы в тех боксах, в которых излучение сформировано загрязнением, обусловленным прошлой эксплуатацией, и не связано с фабрикацией СНУП топлива. Выявлен существенный вклад нейтронного излучения в формирование индивидуальных доз персонала, который на отдельных рабочих местах КЭУ-1 превышал вклад гамма-излучения. На КЭУ-2 мощным источником внешнего излучения являлась проходящая над помещениями нефункционирующая труба вытяжной вентиляции. Оценка вклада гамма-излучения со стороны вытяжной трубы во внешнее облучение персонала достигала 85% на отдельных рабочих местах. Исследования физико-химических свойств радиоактивных аэрозолей показали высокую реакционную способность СНУП соединений, приводящую к мгновенному окислению торакальной фракции аэрозолей СНУП топлива при контакте с воздушной средой. Сложный морфологический и дисперсный состав аэрозольных частиц в совокупности со сложным химическим составом, обусловленным процессами старения аэрозолей, может привести к кардинальному отличию процессов биокинетики СНУП аэрозолей, процесса дозообразования и, следовательно, степени радиологической опасности по сравнению с принятыми в моделях МКРЗ для U и Pu.

Результаты проведенных радиационно-гигиенических исследований носят предварительный характер, поскольку объектом исследований являлась экспериментальная установка, на которой проводилась отработка новой технологии производства СНУП топлива. Апробированные на этих экспериментальных установках инструментально-методические подходы по оценке факторов радиационного воздействия на персонал в дальнейшем будут использованы для проведения аналогичных исследований при опытно-промышленной эксплуатации новых модулей фабрикации-рефабрикация СНУП топлива.

Ключевые слова: смешанное нитридное уран-плутониевое топливо, радиационная безопасность, комплексная экспериментальная установка, гамма и нейтронное облучение, радиоактивные аэрозоли

Для цитирования: Ильин Л.А., Самойлов А.С., Цовьянов А.Г., Шинкарев С.М., Шандала Н.К., Ганцовский П.П., Карев А.Е., Кухта Б.А., Симаков А.В., Клочков В.Н., Коренков И.П., Лягинская А.М., Парин О.В., Соломатин В.М., Измestьев К.М. Радиационно-гигиенические исследования экспериментального производства смешанного нитридного уран-плутониевого топлива на АО «СХК». Часть 1: Методы и результаты // Медицинская радиология и радиационная безопасность. 2021. Т. 66. № 5. С.23–32.

DOI: 10.12737/1024-6177-2021-66-4-23-32

Введение

Энергопотребление в мире, несмотря на отдельные потрясения мировой экономики, демонстрирует дальнейший рост. Вместе с тем, накопленный опыт по производству электроэнергии на атомных станциях привел к необходимости существенного пересмотра применяемых ядерных технологий в направлении их большей безопасности и повышения конкурентоспособности по сравнению с другими способами производства энергии [1].

Обеспечение большей безопасности ядерной энергетики подразумевает разработку реакторов естественной безопасности, обладающих не только большей устойчивостью к различным внешним и внутренним факторам воздействия, но и принципиально исключающих такие радиационные аварии, которые требуют эвакуации населения, как это происходило, например, в результате аварий на ЧАЭС и АЭС «Фукусима-1». В качестве основного направления создания реакторов естественной безопасности выбрана разработка и совершенствование реакторных установок на быстрых нейтронах.

Основу современной мировой ядерной энергетики составляют тепловые реакторы с урановым топливом в

режиме открытого ядерного топливного цикла (ЯТЦ). В качестве исходного сырья для топлива тепловых реакторов используется природный уран, содержащий 0,7% делящегося изотопа урана (^{235}U). Ядерное топливо изготавливается из обогащенного урана, содержащего до (4–5) % ^{235}U . В открытом ЯТЦ отходами ядерной энергетики является отработанное ядерное топливо (ОЯТ) и отвалы обогатительного производства – обедненный уран. В открытом ЯТЦ не предусматривается переработка ОЯТ с целью извлечения ядерных материалов и повторного их использования в качестве ядерного топлива. Важной мерой повышения конкурентоспособности ядерной энергетики является переход к замкнутому ЯТЦ, при котором ОЯТ, выгруженное из реактора, перерабатывается для извлечения урана и плутония для повторного изготовления ядерного топлива. Преимущества закрытого ЯТЦ перед открытым ЯТЦ заключаются в радикальной минимизации радиоактивных отходов (РАО). Так, переработка ОЯТ и возврат накопленного плутония и невыгоревшего урана в топливный цикл в закрытом ЯТЦ позволяют до 100 раз сократить потребность в природном уране и примерно в 10 раз – массу тяжелых ядер в высокоактивных РАО [1].

В России были выполнены исследования, направленные на разработку стратегии развития атомной энергетики страны [2], приведшие к принятию в 2010 г. федеральной целевой программы «Ядерные энерготехнологии нового поколения на период 2010 – 2015 годов и на перспективу до 2020 года». Для реализации основных положений этой программы в 2012 г. инициировано проектное направление «Прорыв», в рамках которого развернуты масштабные работы по созданию новой технологической платформы ядерной энергетики в России [3]. Всесторонний анализ показал, что оптимальным вариантом стратегии развития ядерной энергетики на современном этапе является переход в обозримом будущем к двухкомпонентной структуре ядерной энергетики, подразумевающей продолжение использования тепловых реакторов и наращивание применения быстрых реакторов с замыканием ЯТЦ [4].

Проведенные расчетные и экспериментальные исследования привели к важному выводу, что для обеспечения естественной безопасности реакторов на быстрых нейтронах наиболее перспективно использование так называемого плотного ядерного топлива, к которому относят нитридное, карбидное, металлическое и другие виды топлива, превосходящие традиционное оксидное топливо по физической плотности. Кроме того, использование плотного топлива позволяет достичь значений коэффициента воспроизводства топлива в активной зоне реактора ($K_{\text{ВА}} \geq 1,0$). Реакторы с такими значениями $K_{\text{ВА}}$ обладают свойством внутренней безопасности. В то время как реакторы с оксидным топливом имеют $K_{\text{ВА}} < 1,0$ и не обладают этим свойством.

На площадях АО «СХК» возводится уникальный опытно-демонстрационный энергокомплекс (ОДЭК), включающий модуль фабрикации и пусковой комплекс рефабрикации (МФР) плотного смешанного нитридного уран-плутониевого (СНУП) топлива, опытно-демонстрационный энергоблок с реакторной установкой БРЕСТ-ОД-300, модуль переработки (МП) отработанного ядерного топлива реакторов на быстрых нейтронах. Этот комплекс впервые в мире должен продемонстрировать устойчивое функционирование полного комплекса объектов, обеспечивающих замыкание ядерного топливного цикла.

До создания и введения в опытно-промышленную эксплуатацию МФР с перспективой освоения производства и выхода в дальнейшем на проектную мощность проводятся научно-исследовательские и опытно-конструкторские работы на комплексных экспериментальных установках по развитию и отработке новых технологий изготовления СНУП топлива. Эти исследовательские работы ведутся на двух комплексных экспериментальных установках: (1) на КЭУ-1 отработывается экспериментальная технология изготовления СНУП топлива и (2) на КЭУ-2 осваивается промышленная технология изготовления СНУП топлива.

Необходимо отметить, что длительный этап освоения технологий производства, использования и переработки оксидного топлива сопровождался детальным изучением условий труда и обеспечением радиационной безопасности персонала как в период отработки новых для того периода технологий, так и в последующее время при промышленном изготовлении оксидного уран-плутониевого топлива. Естественно, что и на нынешнем этапе освоения новых технологий изготовления СНУП топлива требуется обеспечить радиационную безопасность персонала на основе проведения радиационно-гигиенического изучения факторов радиационного воздействия на работников.

В 2018–2019 гг. сотрудники ФМБЦ им. А.И. Бурназяна ФМБА России приступили к научно-исследовательской работе по изучению факторов радиационного воздействия и обоснованию санитарно-гигиенических требований для обеспечения радиационной безопасности персонала, участвующего в изготовлении СНУП топлива на экспериментальных установках КЭУ-1 и КЭУ-2 АО «СХК». На рабочих местах КЭУ-1 и КЭУ-2 выполнены производственные исследования, включающие изучение физико-химических свойств аэрозолей в производстве СНУП топлива из свежего, не регенерированного сырья, измерение полей фотонного и нейтронного излучений, индивидуальных эквивалентных доз внешнего облучения персонала, ингаляционного поступления радиоактивных аэрозолей работникам и биофизические исследования персонала. Следует отметить, что КЭУ-1 собрана практически из типовых боксов с минимальными изменениями их конфигураций, в то время как КЭУ-2 собрана из специально спроектированных боксов, полностью соответствующих будущей промышленной установке. Работа на КЭУ-1 и КЭУ-2 осуществлялась единым коллективом персонала. Экспериментальные участки КЭУ-1 и КЭУ-2 размещены в смежных помещениях на площадях демонтированных производственных участков.

Цель данной статьи – представить методы и результаты исследований факторов радиационного воздействия на персонал, участвующий в изготовлении СНУП топлива на экспериментальных установках КЭУ-1 и КЭУ-2 АО «СХК».

Необходимо подчеркнуть, что предшествующий многолетний опыт, накопленный многими коллективами исследователей, убедительно свидетельствует о неправомерности механического переноса результатов оценки факторов радиационного воздействия на персонал, полученных на экспериментальных установках, например, по изготовлению СНУП топлива, на их промышленное производство. Это же касается и оценок доз внешнего и внутреннего облучения задействованного персонала. В то же время, апробированные в данных радиационно-гигиенических исследованиях на экспериментальных комплексных установках инструментально-методические подходы по оценке факторов радиационного воздействия на персонал, в дальнейшем будут использованы для проведения аналогичных исследований при опытно-промышленной эксплуатации новых модулей фабрикации-рефабрикация СНУП топлива и реалистичной оценки параметров радиационного воздействия в новых условиях.

Анализ характеристик ионизирующего излучения СНУП топлива *Нейтронное излучение*

Нейтронное излучение на экспериментальном участке производства СНУП топлива формируется в основном за счет (α, n) - реакции на легких ядрах (O, C, N) и реакции спонтанного деления радиоактивных изотопов урана и трансурановых элементов. Основной вклад в выход нейтронов спонтанного деления из топлива вносят изотопы плутония (^{238}Pu , ^{240}Pu и ^{242}Pu) [5]. Суммарная массовая доля данных изотопов в топливном плутонии варьирует от одной пятой до одной трети [6]. За счет этого выход нейтронов спонтанного деления при производстве топлива, содержащего плутоний, на 3–4 порядка выше, чем у уранового топлива.

Сырьем для изготовления СНУП топлива являются порошки оксидов урана и плутония. В этих порошках реакция (α, n) происходит, в основном, на изотопах ^{17}O и ^{18}O , входящих в состав природного кислорода (0,037% и 0,204% соответственно). Порог этой реакции составляет около 1 МэВ, что значительно ниже энергии альфа-частиц излу-

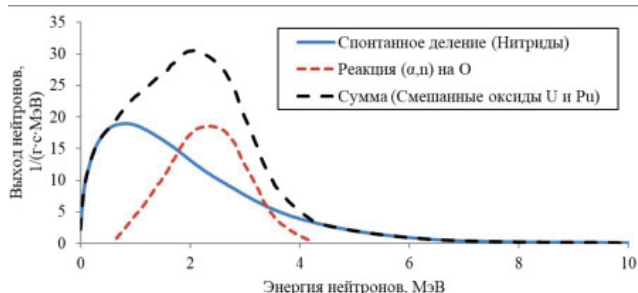


Рис.1. Компоненты энергетического распределения нейтронов, излучаемых различными композициями топлива.

Fig.1. Components of the energy distribution of neutrons emitted by various fuel compositions.

чаемых компонентами топлива, поэтому реакция идет достаточно активно. Согласно представленным оценкам¹, выход нейтронов на 1 г смеси оксидов урана и оксидов плутония по реакции (α, n) составляет 34 н/с и 55 н/с при спонтанном делении. Энергетическое распределение выхода нейтронов уран-плутониевого оксида, являющееся суммой спектра нейтронов, сформированного реакцией (α, n) на кислороде [7], и спектра спонтанного деления [8], приведено на рисунке 1 (черный пунктир). Средняя энергия данного спектра составляет 2,1 МэВ, при этом практически отсутствуют нейтроны с энергией больше 8 МэВ.

После карботермического синтеза, в результате которого образуются нитридные соединения U и Pu, выход нейтронов по реакции (α, n) становится несущественным, поскольку в образовавшейся смеси практически отсутствуют изотопы кислорода и углерода (их примесное содержание оценивается диапазоном от 0,01% до 0,15% по массе) [9], а порог данной реакции на изотопах ^{14}N и ^{15}N (содержание в естественной смеси 99,636% и 0,364%, соответственно) составляет уже более 6 и 8 МэВ [10], что выше максимальной энергии альфа-частиц у компонентов свежего топлива (^{238}Pu – 5,5 МэВ). Таким образом, спектр нейтронов готового СНУП топлива характеризуется спектром спонтанного деления (синяя линия на рис. 1), а выход нейтронов значительно выше, чем у оксидного уранового топлива.

На рабочих местах энергетический спектр нейтронов будет существенно отличен от исходного вследствие замедления, рассеяния и отражения нейтронов. В результате произойдет увеличение вклада тепловых и промежуточных нейтронов в зависимости от конфигурации рабочего места. Для измерения мощности амбиентного эквивалента дозы (МАЭД) нейтронного излучения был использован всеволновой дозиметр радиометр МКС-АТ1117М с блоком детектирования БДКН-03. На рабочих местах с максимальными значениями МАЭД нейтронного излучения были проведены исследования спектра с помощью многошарового спектрометра нейтронного излучения ДСН-01.

Фотонное излучение

Изотопы плутония (^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu и ^{242}Pu) распадаются с испусканием альфа-частиц. В результате α -распада изотопов плутония с некоторой вероятностью (~25%) возбуждается ряд низкоэнергетических состояний изотопов урана, с энергией меньшей энергии связи

K-электронов. Изменение этих состояний происходит посредством внутренней конверсии γ -квантов² с испусканием электронов и впоследствии характеристического рентгеновского излучения с энергией, 13 – 23 кэВ [12]. Расчеты показали, что более 90% фотонов, образующихся при радиоактивном распаде элементов СНУП топлива, имеют энергию менее 25 кэВ.

Очевидно, что эффекты самопоглощения излучения и экранирования защитными конструкциями будут снижать вклад низкоэнергетического излучения, однако, на операциях с порошками, таблетками и шашками, требующими применения ручного труда, могут формироваться высокие значения эквивалентной дозы на кожу рук и хрусталик глаза.

Кроме того, изотоп ^{241}Pu , входящий в состав энергетического плутония, является бета излучателем, при его распаде образуется и со временем накапливается ^{241}Am , который является мягким гамма-излучателем с основной энергией 59,5 кэВ (35,9 % выход на распад).

Незначительный вклад в гамма-излучение свежего топлива также будет вносить гамма-излучение, сопутствующее спонтанному делению компонентов топлива, захватному гамма-излучению (n, γ), тормозному фотонному излучению от β -активных ядер, гамма-излучение в результате реакции $^{14}\text{N}(\alpha, p)^{17}\text{O}$ и гамма-излучение, сопутствующее альфа-распаду изотопов плутония.

Ввиду вышесказанного при обследовании радиационной обстановки на рабочих местах необходимо уделять пристальное внимание облучению кожи рук и хрусталик глаза. Нижняя граница диапазона измерения дозиметра направленного эквивалента дозы Н(0,07) или индивидуального эквивалента дозы Нр(0,07), выбранного для контроля за облучением кожи рук, должна захватывать α -излучение плутония 13 – 23 кэВ. Поэтому в данной работе использовался блок детектирования БДКР-01 дозиметра-радиометра МКС-АТ1117М, нижняя граница диапазона энергий измеряемого излучения которого составляет 5 кэВ, и индивидуальные дозиметры кожи рук МКД тип Б, нижняя граница диапазона энергий измеряемого излучения которых составляет 7 кэВ.

Поскольку работы со СНУП топливом могут проводиться только в герметичных боксах с инертной (азотной) атмосферой, воздействие неэкранированного излучения топлива на кожу лица и хрусталик глаза исключается. Степень эффективности экранирования излучения в мягкой части спектра оценивалась с помощью сравнения показаний приборов, позволяющих измерять значение направленного эквивалента дозы и амбиентного эквивалента дозы в диапазоне, по крайней мере, до 120 кэВ. Как правило, защитные стекла герметичных боксов практически полностью поглощают низкоэнергетическое фотонное излучение.

Закономерности формирования дозы внешнего облучения

При изучении закономерностей формирования дозы внешнего облучения персонала проводился регулярный мониторинг динамики мощности амбиентного эквивалента дозы фотонного и нейтронного излучений на рабочих местах. Измерения мощности дозы нейтронного излучения проводились на уровне груди работника, а мощности дозы фотонного излучения на уровне груди, нижней части живота, ступней и головы. В рамках проводимых исследований был организован временный индивидуальный контроль эквивалентных доз облучения

¹Проектная документация. Строительство модуля фабрикации и пускового комплекса рефабрикация плотного смешанного уранплутониевого топлива для реакторов на быстрых нейтронах, открытое акционерное общество «Сибирский химический комбинат», закрытое административно-территориальное образование «Северск», Томская область. Раздел 5 Сведения об инженерном оборудовании, о сетях инженерно-технического обеспечения, перечень инженерно-технических мероприятий, содержание технологических решений. Подраздел Технологические решения. Радиационная безопасность. 0306-ИОС.7.3 Том 5.7.3 инв. № 13-05573. 2014.

² Явление, наблюдаемое при переходе возбужденного атомного ядра в состояние с меньшей энергией, когда высвобождаемая энергия не излучается в виде γ -кванта, а передается непосредственно одному из электронов того же атома. При этом вместо γ -кванта испускается конверсионный электрон [11].

кожи лица, рук и хрусталика глаза с выдачей работающему на КЭУ-1 и КЭУ-2 персоналу дополнительных дозиметров.

Вследствие неравномерной загруженности установок в течение года, проводимые исследования были ограничены по времени, и полученные в течение отдельных месяцев результаты распространялись на весь календарный год.

Измерение значений МАЭД гамма- и нейтронного излучений в помещениях КЭУ-1 показали, что основными источниками проникающих излучений являются боксы, где происходит прессование таблеток, дробление шашек и бракованных таблеток, а также временное хранение продукции.

В отличие от КЭУ-1, анализ пространственного распределения МАЭД на КЭУ-2 показал, что максимальные значения МАЭД находятся не у боксов, где проводились работы по фабрикации СНУП топлива, а на значительном удалении от них. Оказалось, что мощным источником внешнего излучения являлась нефункционирующая труба вытяжной вентиляции, проходящая над КЭУ-2. Оценка вклада гамма-излучения со стороны вытяжной трубы во внешнее облучение персонала, выполненная с помощью коллиматора, составила до 85% на отдельных рабочих местах.

Как видно на гистограмме распределения наблюдаемых значений отношения МАЭД нейтронного излучения к МАЭД гамма-излучения (рис. 2), при работах со СНУП топливом на КЭУ-1 вклад нейтронного излучения в формирование индивидуальных доз существенен и на некоторых рабочих местах может превышать вклад гамма-излучения. Для сравнения на гистограмме приведены также данные, полученные на аналогичных рабочих местах, но на предприятии, производящем оксидное урановое топливо.

Для исследования возможности превышения основного предела эквивалентной дозы облучения кистей рук (500 мЗв) при не превышении основного предела эффективной дозы (20 мЗв) были проведены измерения МАЭД гамма-излучения на уровне груди и в перчаточном проеме. Для получения стабильного воспроизводимого результата, измерения в перчаточном проеме проводились в плоскости закрепления перчатки по центру отверстия, без погружения датчика вглубь бокса. Как видно из результатов измерений, представленных на рис. 3, большое количество точек находятся выше линии, соответствующей значению отношения 25. Для этих точек потенциально существует возможность превышения основного предела эквивалентной дозы облучения кистей рук (500 мЗв) при не превышении основного предела эффективной дозы (20 мЗв), контролируемого по показаниям индивидуального дозиметра, располагающегося на груди.

Анализ измерений МАЭД гамма-излучения в перчаточных проемах на КЭУ-1 показал, что наибольшие значения зарегистрированы в тех боксах, в которых излучение сформировано загрязнением, обусловленным прошлой эксплуатацией, и не связано с фабрикацией СНУП топлива. Так, например, в боксе № 10, который является промежуточным, зафиксированы максимальные значения МАЭД гамма-излучения в перчаточном проеме (на рис. 3 отмечены символом ▲). Минимальные значения отношения, сформированные у бокса прессования (символ ◆) обусловлены меньшей толщиной конструктивных элементов бокса прессования по сравнению со всей остальной цепочкой КЭУ-1.

Из диаграмм распределения значений отношения МАЭД гамма-излучения на уровне гопад и груди (рис. 4) видно, что для большого количества рабочих мест, МАЭД

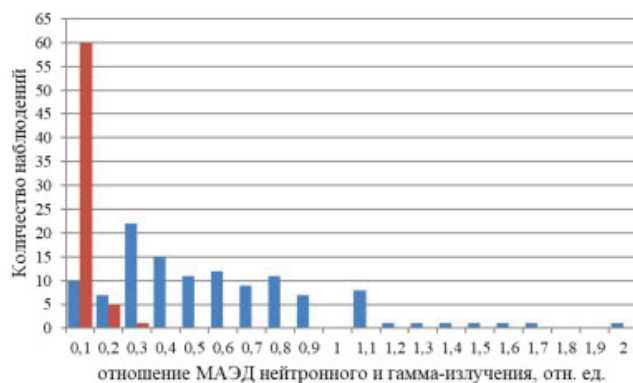


Рис. 2. Гистограмма распределения наблюдаемых значений отношения МАЭД нейтронного излучения к МАЭД гамма-излучения на различных рабочих местах.

Обозначения: синий цвет – экспериментальный стенд производства таблеток СНУП топлива; красный цвет – производство таблеток оксидного уранового топлива.

Fig. 2. Histogram of the distribution of the observed values of the ratio of neutron radiation DER to gamma radiation DER at various workplaces.

Designations: blue color – experimental stand for the production of MNUP fuel pellets; red – production of uranium oxide fuel pellets

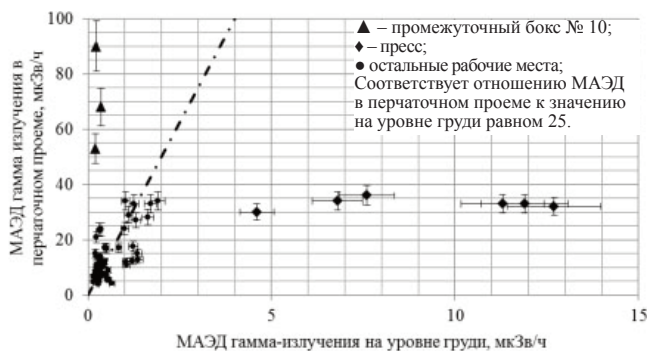


Рис. 3. МАЭД гамма-излучения в перчаточном проеме и на уровне груди на КЭУ-1

Fig. 3. AEDR of gamma radiation in the glove opening and at chest level at KЭУ-1

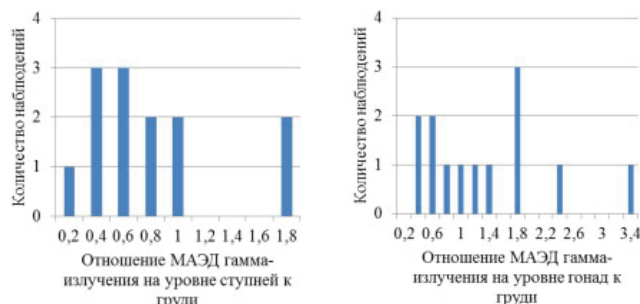


Рис. 4. Гистограммы распределения значений отношения МАЭД гамма-излучения на уровне ступней и гопад к значению на уровне груди.

Fig. 4. Histograms of the distribution of the gamma radiation DER ratios at the level of the feet and gonads to the value at the chest level.

на уровне таза значительно (до 3,4 раза) превышает МАЭД в точке расположения индивидуального дозиметра. Это объясняется тем, что нижняя поверхность боксов, где располагается радиоактивный материал, находится на уровне таза. Данное обстоятельство может приводить к не фиксируемым превышениям основного предела годовой эффективной дозы при проведении ИДК по показаниям одного дозиметра, размещенного на груди. При реализации данной технологической цепочки в будущем рекомендуется предусматривать установку дополнительной защиты от гамма-излучения на лицевой стороне боксов от дна бокса до смотрового стекла. Облучение ступней ног незначительное и не требует введения радиационного контроля.

Исследования физико-химических свойств радиоактивных аэрозолей

Для исследования дисперсного состава радиоактивных аэрозолей использовали импакторы АИП-2 (номер в Госреестре СИ № 28021-04)³, ФРТЧ³, ИРАМ, разработанные ФГБУ ГНЦ ФМБЦ им. А.И. Бурназяна ФМБА России, а также электрический импактор низкого давления HR-ELPI+, каскадный импактор Андерсена [13], пятикаскадный индивидуальный импактор SKC Sioutas.

В качестве побудителей расхода применялись переносные воздуходувки либо штатная вакуумная система предприятия. Отбор проб проводился на высоте человеческого роста (~ 1,6 м – 2,0 м) в точках, согласованных со службой радиационной безопасности предприятия.

Суммарную активность альфа-излучающих радионуклидов на подложках импакторов измеряли на альфа-радиометрах УМФ-2000, РКС-01А «Абелия». Активность ²³⁹Pu, ²⁴¹Am измеряли на альфа-спектрометрах Alpha-Duo (ORTEC) и Мультирад-АС (НТЦ «Амплитуда») после предварительного радиохимического выделения радионуклидов по методикам^{4,5}. Активность ²⁴¹Am в отдельных пробах измеряли на полупроводниковом гамма-спектрометре, состоящем из широкополосного детектора Canberra BE3830 и анализатора InSpector-2000.

Расчет медианного по активности аэродинамического диаметра (АМАД) и стандартного геометрического отклонения проводили в соответствии с методиками^{7,8}.

Оценку типа соединения при ингаляции проводили методом диализа в имитаторе легочной жидкости (ИЛЖ). Данный метод заключается в периодическом измерении доли исследуемого вещества, перешедшего в ИЛЖ через мембрану. В качестве ИЛЖ использовали раствор Рингера. В ходе анализа проба с исследуемым аэрозолем (круг диаметром ~ 20 мм, вырезанный из фильтра АФА-РСП-20) помещалась в ячейку, образованную двумя тефлоновыми кольцами и двумя мембранами Владипор марки МФАС-МА-2 с диаметром пор 0,25 мкм. Данная ячейка помещалась в ИЛЖ объемом 100 мл. Для имитации температуры человеческого тела (37 °С) стаканы с диализными ячейками устанавливали в климатической камере Binder KBF 115. Динамику перехода радионуклидов из аэрозольных фильтров в раствор изучали в течение ~180 сут, с заданной периодичностью заменяя ИЛЖ (3 ч, 1 сут, 2, 7, 15, 30, 60, 95, 140, 177 сут). Суммарную активность альфа-излучающих радионуклидов, содержащихся в диализате, измеряли на жидко-сцинтилляционном спектрометре Quantulus 1220. По результатам измерений рассчитывали суммарную долю активности изотопов плутония, перешедших в ИЛЖ в зависимости от времени, прошедшего с начала эксперимента. Критерии отнесения исследуемого вещества к одному из типов при ингаляции приведены в табл. 1 [14].

Отдельные фрагменты фильтров передавались соисполнителю НП «Лаборатория анализа микрочастиц»

Таблица 1

Критерии отнесения вещества к одному из типов соединения при ингаляции [21]
Criteria for assigning a substance to one of the types of compounds for inhalation [21]

Тип химического соединения при ингаляции	Количество радионуклида, перешедшее в раствор (с учетом распада), %	
	На 30 сут после начала эксперимента	На 180 сут после начала эксперимента
Б	> 83	–
П	< 83	> 12
М	–	< 12

для исследования морфологических и структурных характеристик аэрозольных частиц с помощью растрового электронного микроскопа Luga 3 (Tescan, Чехия) (Госреестр № 53938-13), оснащенного рентгеновским микроанализатором X-max 80. Для некоторых проб при поиске микрочастиц применяли масс-спектрометр вторичных ионов Cameca IMS-1280⁶.

Непосредственно на КЭУ проводились исследования другим соисполнителем – Северским технологическим институтом – филиалом МИФИ с целью определения реакционных свойств аэрозолей в процессе выхода в воздушную среду рабочей зоны и дальнейшего старения, а также определения конечных химически стабильных продуктов окисления.

Порошки для исследований отбирали на участке по производству СНУП топлива. Исследования изменений фазового и структурного состава различных образцов СНУП топлива в процессе их хранения проводили с помощью рентгеновского дифрактометра Shimadzu XRD-7000. Исследования морфологии частиц порошков и элементного состава азота и кислорода в зависимости от времени проводили с помощью РЭМ Quanta Inspect S с энергодисперсионным детектором EDAX в соответствии с разработанной методикой исследований⁷ через 0, 2, 6, 24, 48 и 96 ч. Анализы по определению массовой доли азота и кислорода проводили на анализаторе LECO; измерение содержания урана и плутония – на масс-спектрометре TRITON+.

Динамика растворимости альфа-излучающих радионуклидов в ИЛЖ для проб аэрозолей, отобранных на участке производства СНУП топлива, представлена на рис. 5. Характеристики растворения проб, полученные в

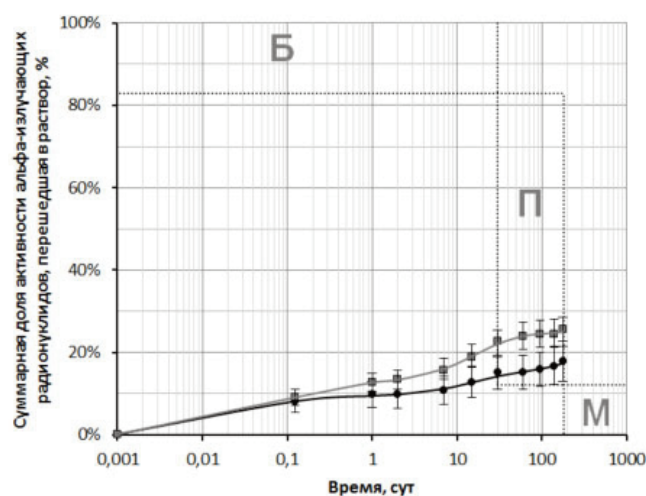


Рис. 5. Кинетика диализа проб аэрозолей в ИЛЖ на участке производства СНУП топлива (КЭУ-1).
Fig. 5. Kinetics of dialysis of aerosol samples in ILZh at the site for the production of MNUP fuel (KEU-1).

³ Патент RU 2239815 C1 «Каскадный импактор» от 10.11.2004. Авторы: Цовьянов А.Г., Бадян В.И., Молоканов А.А., Припачкин Д.А., Фертман Д.Е., Ризин А.И. и др.

⁴ Патент RU 2509375 «Импактор-фантом респираторного тракта человека» от 10.03.2014. Авторы: Цовьянов А.Г., Кухта Б.А., Карев А.Е.

⁵ Методика выполнения измерений удельной активности изотопов плутония (²³⁹+²⁴⁰, ²³⁸) в пробах почв, грунтов, донных отложений альфа-спектрометрическим методом с радиохимической подготовкой (Инструкция НСАМ №406-ЯФ, Свидетельство №49090.3Н619).

⁶ Методика выполнения измерений удельной активности америция-241 в пробах почв, грунтов, донных отложений альфа-спектрометрическим методом с радиохимической подготовкой (Инструкция НСАМ №463-ЯФ утверждено 24.10.1998 г. «ВИМС», Свидетельство №49090.3Н620).

⁷ ФР.1.31.2016.23130 Определение характеристик распределения радиоактивного аэрозоля по размерам с помощью импактора-фантома респираторного тракта человека.

⁸ МУК 2.6.1.08 - 2004 Определение характеристик распределения радиоактивного аэрозоля по размерам.

Таблица 2

Характеристики растворения проб радиоактивных аэрозолей на участке производства ЧНУП топлива (КЭУ-1)
Dissolution characteristics of radioactive aerosols samples at the site for the production of MNUP fuel (KEU-1)

Зона	Доля фракций по растворимости %			Коэффициенты скорости диализа, сут ⁻¹		
	Б	П	М	k ₁	k ₂	k ₃
Ремонтная	9	5	86	17,82	0,067	1,99·10 ⁻⁴
Операторская	12	12	76	11,12	0,058	7,43·10 ⁻⁵

результате аппроксимации экспериментальных точек методом координатного спуска, приведены в табл. 2.

Для обработки результатов измерений использовали следующее аппроксимирующее уравнение:

$$Q = 1 - A_t/A_0 = 1 - (a_1 e^{-k_1 t} + a_2 e^{-k_2 t} + a_3 e^{-k_3 t}), \quad (1)$$

где Q – доля активности фильтра, перешедшая в раствор в момент времени t;

A₀ – исходная активность фильтра;

A_t – активность фильтра в момент времени t;

a₁, a₂, a₃ – коэффициенты, определяющие долевой состав фракций с разной скоростью перехода в раствор (Б, П, М); k₁, k₂, k₃ – коэффициенты, определяющие скорость диализа вещества, сут⁻¹.

Во всех пробах (см. табл. 2) преобладают медленно-растворимые соединения, их вклад находится в диапазоне (76 – 86) %. Наличие быстрорастворимых соединений (9 – 12)% может быть обусловлено особенностями морфологии и дисперсного состава частиц.

В операторской зоне КЭУ-1 основной вклад в ОА вносит грубодисперсная фракция радиоактивных аэрозолей, вероятно, обусловленная операциями прессования и дробления. Значение АМАД ($\Sigma\alpha$) варьируется от 22 мкм до 33 мкм. Наименьшие значения АМАД (0,4 – 2,5 мкм для ²³⁹Pu) обнаружены в ремзоне у бокса синтеза, спекания. На рис. 6 представлено распределение активности ²³⁹Pu по АД в ремзоне у бокса синтеза, спекания в период 29.09 – 5.10.18. Данное распределение носит бимодальный характер. Значение АМАД субмикронной фракции – 400 нм с вкладом в ОА 37 %. Значение АМАД грубодисперсной фракции составило более 9 мкм.

Для проб, отобранных в период наработки ЧНУП топлива 15-17.10.18, характерна выраженная бимодальность. В указанный период велся одновременный отбор проб на 5 импакторов в операторской зоне, два из которых характеризовали источник аэрозолей у пресса. Для данных проб характерен значительный вклад в ОА грубодисперсной фракции (75 – 87)% с АМАД 18 – 38 мкм, вклад в ОА второй фракции с АМАД ~ 1 мкм составил (13 – 25)%. В точках, удаленных от источника, доля фракции с АМАД 1 – 3,2 мкм составила (48 – 62) %, вклад грубодисперсной фракции с АМАД более 17 мкм: (38 – 52) %.

В период профилактических и ремонтных работ значение АМАД в пробах, отобранных на прессе КЭУ-1 в разные дни, составило 16 мкм. Также в этом месте было получено бимодальное распределение с АМАД 1 мкм и 23 мкм и вкладом в ОА 50% каждой из фракций. Т.е. вклад грубодисперсной фракции в ОА и значения АМАД меньше, чем в период наработки ЧНУП топлива (22 – 33 мкм с вкладом 97 %-100 %)⁸.

Значение АМАД ($\Sigma\alpha$) радиоактивных аэрозолей в операторской зоне КЭУ-2 составило 31 – 34 мкм при СГО 3,0¹¹. У бокса измельчения крупки в 2018 году обнаружено бимодальное распределение с АМАД ²³⁹Pu 1 мкм и 14 мкм и вкладом в ОА 48 % и 52 % соответственно (рис. 7), при этом распределение активности ²⁴¹Am по размерам частиц, полученное у данного бокса в 2019 году, также оказалось бимодальным со значением АМАД 0,6 мкм и 8,3 мкм при β_g 2,0, с вкладом в ОА 45 % и 55 %, соответственно.

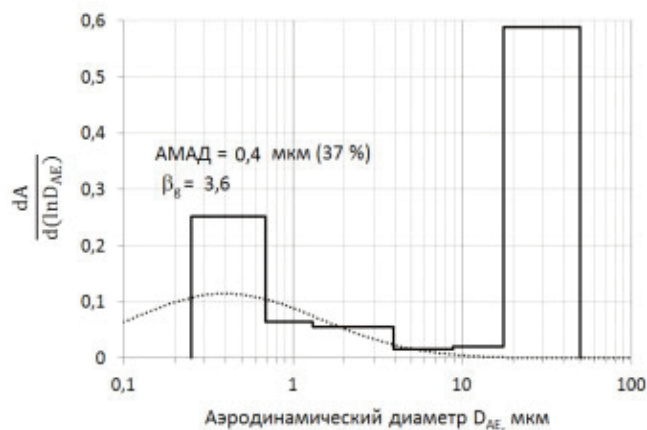


Рис. 6. Распределение активности ²³⁹Pu по аэродинамическим диаметрам частиц в ремонтной зоне (бокс синтеза, спекания КЭУ-1)

Fig. 6. Distribution of ²³⁹Pu activity over aerodynamic diameters of particles in the repair zone (synthesis box, sintering KEU-1)

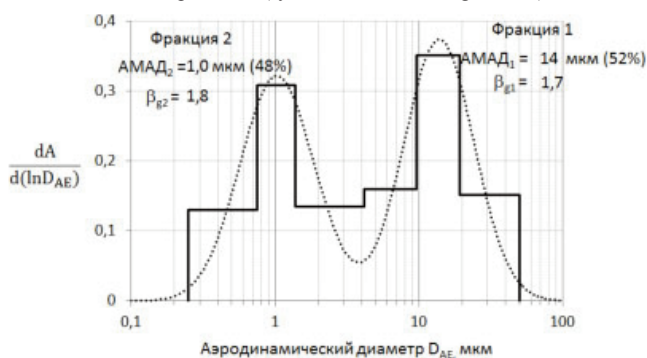


Рис. 7. Распределение активности ²³⁹Pu по аэродинамическим диаметрам частиц у бокса измельчения крупки, КЭУ-2

Fig. 7 Distribution of ²³⁹Pu activity over aerodynamic diameters of particles in the repair zone (synthesis box, sintering KEU-1)

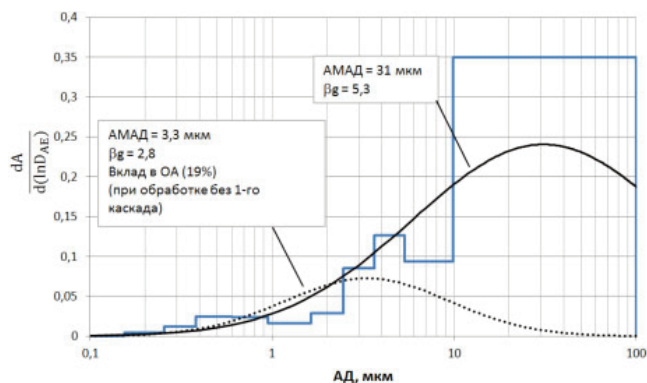


Рис. 8. Распределение суммарной активности альфа-излучающих радионуклидов по аэродинамическим диаметрам частиц в операторской зоне (бокс синтеза, спекания)

Fig. 8. Distribution of the total activity of alpha-emitting radionuclides by aerodynamic diameters of particles in the operator area (synthesis box, sintering)

На рис. 8 представлено распределение суммарной активности альфа-излучающих радионуклидов по аэродинамическим диаметрам (АД), восстановленное с помощью электрического импактора низкого давления HR-ELPI+, который был установлен в операторской зоне КЭУ-1 у печи синтеза. В распределении можно выделить три фракции:

⁹ Отчёт о научно-исследовательской работе «Исследование морфологических и структурных характеристик частиц аэрозолей ЧНУП топлива» по договору №185ВН/ФМБЦ/19 от 23 сентября 2019 г.

¹⁰ СТИ НИЯУ МИФИ, научно-технический отчет «Исследование реакционных свойств аэрозолей ЧНУП топлива в воздушной среде» по договору № 31806958673-209 от 25.09.2018 г., инв. № 5–7 от 01.11.2018 г. Северск, 2018. – 96 с.

¹¹ Отчёт о научно-исследовательской работе «Обоснование санитарно-гигиенических требований для объектов ОДЭК АО "СХК"» (Этап 2019) (заключительный, этап 2) Договор от 13.08.2019. №44, Инв. № Ц-976.

Таблица 3

Морфологические и структурные характеристики аэрозольных частиц, образующихся при производстве ЧНУП топлива
Morphological and structural characteristics of aerosol particles formed during the production of MNUP fuel

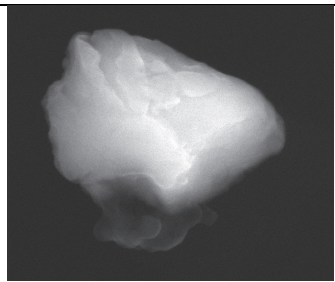
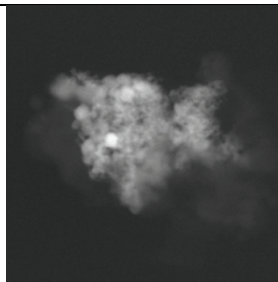
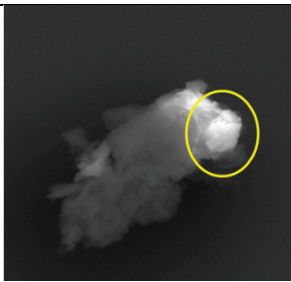
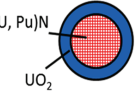
Физический размер, мкм	~ 1		4 – 5
Внешний вид			
Описание	Плотная индивидуальная частица смешанного оксида U-Pu размером ~ 1 мкм, содержащая в своем составе 3 % азота	Конгломерат размером ~ 1 мкм, состоящий из скопления U-Pu-содержащих частиц размером 20–50 нм	Конгломерат размером 4 мкм на основе оксидов урана, кальция, железа, содержащий частицу Pu размером 1,7 мкм

Таблица 4

Типы структур аэрозольных частиц, образующихся при производстве ЧНУП топлива
Types of structures of aerosol particles formed during the production of MNUP fuel

Размер частиц	Торакальная		Внеторакальная
Химическая форма частиц	Оксиды (U, Pu)O ₂ , U ₃ O ₈ , UO ₂		Нитрид-содержащие
Морфология плутоний-содержащих частиц		1. Моночастицы или агрегаты, размером 1-12 мкм.	
		2. Конгломераты размером ~ 4-10 мкм из скоплений U и Pu содержащих частиц размером 20-50 нм	
		3. «Наездники» Нано или субмикронная частица U-Pu диаметром ~0,04-0,1 мкм на поверхности моночастицы или конгломерата размером более 1 мкм	

1) грубодисперсная, АД более 10 мкм

2) АД 3 – 5 мкм

3) субмикронная с АД менее 1 мкм

По результатам альфа-радиометрии 81 % от суммарной активности аэрозольных частиц, отобранных с помощью импактора, приходится на первый каскад. Значение АМАД, рассчитанное с учетом всех каскадов, составило 31 мкм, стандартное геометрическое отклонение β_g 5,3. Если рассматривать первый каскад в качестве пребепаратора, отсекающего экстраторакальную фракцию радиоактивных аэрозолей (частицы с АД более 10 мкм, не проникающие в нижние отделы дыхательных путей), то значение АМАД составит 3,3 мкм β_g 2,8 с вкладом в суммарную ОА 19%. Доля частиц с АД менее 0,1 мкм составляет ~ 4%.

Наименьшие значения АМАД (0,4 – 2,5 мкм для ²³⁹Pu) обнаружены в ремонтной зоне у бокса синтеза, спекания (рис. 6).

Исследования морфологических и структурных характеристик показали, что большая часть исследованных частиц являются агрегатами на основе оксида урана и конгломератами на основе оксидов кремния, кальция, железа, алюминия, магния и др., которые содержат субмикронные включения индивидуальных уран-содержащих частиц или их агрегатов, средний размер которых составляет порядка 100 нм. Средний размер агрегатов и конгломератов, содержащих уран, варьирует от 0,46 до 9,9 мкм. Соотношение сторон большинства частиц (>50%) лежит в интервале от 1,3 до 2. Наиболее характерные типы частиц представлены в табл. 3.

При ингаляционном поступлении и последующем взаимодействии с жидкостями тела данные конгломераты наноструктурированных частиц могут распадаться на индивидуальные. В этом случае, несмотря на присутствие в воздухе рабочей зоны грубодисперсных аэрозолей (что подтверждается исследованиями с помощью импакторов), внутреннее облучение при ингаляционном поступлении будет определяться частицами субмикронного и, возможно, нанометрового диапазона. Небольшая доля быстрорастворимых соединений, полученная при оценке типа соединения при ингаляции (табл. 2), может быть обусловлена именно этим эффектом (быстрорастворимые соединения плутония и америция в Приложении 3 к НРБ-99/2009 отсутствуют). Типы структур аэрозольных частиц, образующихся при производстве ЧНУП топлива, установленные в результате настоящей работы в схематическом виде представлены в табл. 4.

Исследования реакционных свойств аэрозоля в воздушной среде показали, что на поверхности крупнодисперсных, экстракторакальных частиц (100-500 мкм) при контакте с воздухом образуется устойчивая прочная пленка из диоксидов урана и плутония, тормозящая дальнейшее окисление. Частицы ЧНУП топлива с размерами менее 10 мкм (торакальная фракция) при контакте с воздушной средой практически моментально окисляются до диоксидов урана и плутония. Таким образом, потенциальное поступление ЧНУП-соединений в организм, возможно пероральным путем в составе экстракторакальной фракции аэрозольных частиц. При этом растворение оксидной пленки данных крупнодисперсных частиц в желудочном соке может привести к высвобождению нитридной сердцевинки с последующим быстрым усваиванием в ЖКТ (рис. 9). Согласно [15] оксидные соединения U всасываются в желудочно-кишечном тракте: около 1% от поступающего количества растворимых соединений и не более 0,1% труднорастворимых; в лёгких всасываются соответственно 50% и 20%.

Текущие результаты исследований свидетельствуют о существенной зависимости реакционных свойств аэрозолей от многих факторов. Среди этих факторов: размеры частиц, среда, в которой находятся частицы, влажность атмосферы, химический состав продуктов и др.

Таким образом, сложный морфологический и дисперсный состав аэрозольных частиц в совокупности со сложным химическим составом, обусловленным процессами старения аэрозолей, может привести к кардинальному отличию процессов биокинетики ЧНУП аэрозолей, процесса дозообразования и, следовательно, большей степени радиологической опасности по сравнению с при-

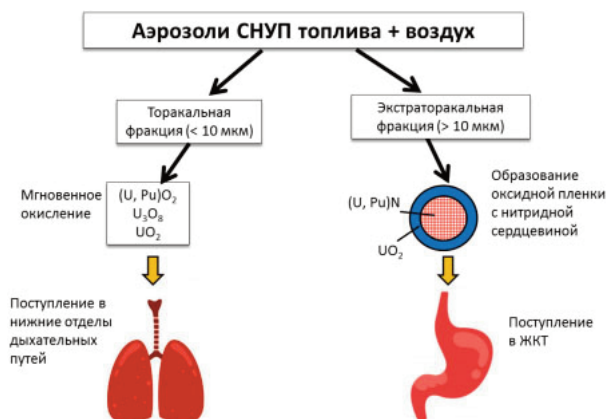


Рис. 9. ОА в операторской зоне КЭУ-1 (в единицах ДОА для ^{239}Pu , 1 ДОА = 0,032 Бк/м³) и нормированная счетная концентрация, измеренная оптическим счетчиком

Fig. 9. OA in the operator area of KEU-1 (in units of DOA for ^{239}Pu , 1 DOA = 0.032 Bq / m³) and normalized counting concentration measured by an optical counter

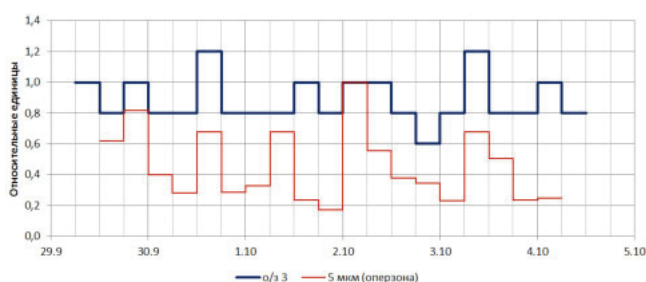


Рис. 10. ОА в операторской зоне КЭУ-1 (в единицах ДОА для ^{239}Pu , 1 ДОА = 0,032 Бк/м³) и нормированная счетная концентрация, измеренная оптическим счетчиком

Fig. 10. OA in the operator area of KEU-1 (in units of DOA for ^{239}Pu , 1 DOA = 0.032 Bq / m³) and normalized counting concentration measured by an optical counter

нятыми в моделях МКРЗ для U и Pu. Можно предположить, что значительное преобладание по массе изотопов урана в СНУП топливе, вместе с химической связью урана с плутонием в составе смешанного нитрида (U, Pu)N, приведет к распределению плутония в организме в соответствии с биокинетической моделью метаболизма урана. Поэтому продолжение исследований физико-химических, радиологических свойств СНУП аэрозолей представляется крайне актуальной задачей в цепи мероприятий по обеспечению радиационной безопасности будущего производственного цикла.

Следует отметить, что ингаляционное поступление радиоактивных аэрозолей носит крайне неравномерный импульсный характер, обусловленный кратковременными (и, вероятно, локальными) загрязнениями воздушной среды. Это предположение подтверждается сопоставлением временного графика объемной активности радиоактивного аэрозоля с временным графиком счетной концентрации суммы радиоактивных и нерадиоактивных частиц в воздухе операторской зоны, измеренной оптическим счетчиком (рис. 10).

Выводы

В статье приведено описание методов и предварительных результатов проведения комплексного радиационно-гигиенического исследования, направленного на оценку параметров внешнего гамма-нейтронного излучения и определение физико-химических свойств радиоактивных аэрозолей, ответственных за внутреннее облучение персонала, участвующего в производстве нового вида топлива – смешанного нитридного уран-плутониевого (СНУП) топлива на экспериментальных установках АО «СХК».

Результаты проведенных радиационно-гигиенических исследований носят предварительный характер, поскольку объектом исследований являлась экспериментальная установка, на которой проводилась отработка новой технологии производства СНУП топлива. Кроме того, сырье для производства СНУП топлива на экспериментальных установках проходило глубокую предварительную очистку от радиогенных примесей. При работе на промышленной установке в качестве сырья для изготовления СНУП-топлива будут использоваться облученные ядерные материалы. В таком случае уровни гамма-нейтронного облучения персонала будут значительно выше, изменится также и радионуклидный состав аэрозолей.

Многолетний предшествующий опыт, накопленный многими коллективами исследователей, убедительно свидетельствует о неправомерности механического переноса результатов оценки факторов радиационного воздействия, полученных на экспериментальных установках, например, по изготовлению СНУП топлива, на их промышленное производство. Это же касается и оценок доз внешнего и внутреннего облучения задействованного персонала. В то же время, апробированные в данных радиационно-гигиенических исследованиях на экспериментальных комплексных установках инструментально-методические подходы по оценке факторов радиационного воздействия на персонал, в дальнейшем будут использованы для проведения аналогичных исследований при опытно-промышленной эксплуатации новых модулей фабрикация-рефабрикация СНУП топлива и реалистичной оценки параметров радиационного воздействия в новых условиях.

В данных исследованиях установлено, что персонал подвергается смешанному гамма-нейтронному облучению со значительным вкладом «мягкой» энергетической компоненты фотонного излучения. В настоящее время эквивалентные дозы облучения хрусталика глаза и кожи лица существенно ниже установленных нормативов и не требуют введения инструментального контроля. Несмотря на данное обстоятельство, существует вероятность, что при увеличении интенсивности работ и, соответственно, полей ионизирующего излучения, эти дозы могут превысить установленные нормативы значительно раньше, чем будет достигнуто превышение эффективной дозы облучения, определяемой по показаниям нагрудного дозиметра.

Измерение значений МАЭД гамма- и нейтронного излучений в помещениях КЭУ-1 показали, что основными источниками проникающих излучений являются боксы, где происходит прессование таблеток, дробление шашек и бракованных таблеток, а также временное хранение продукции. При этом наибольшие значения зарегистрированы в тех боксах, в которых излучение сформировано загрязнением, обусловленным прошлой эксплуатацией, и не связано с фабрикой СНУП топлива. Выявлен существенный вклад нейтронного излучения в формирование индивидуальных доз персонала, который на отдельных рабочих местах КЭУ-1 превышал вклад гамма-излучения.

Анализ пространственного распределения МАЭД на КЭУ-2 показал, что мощным источником внешнего излучения являлась нефункционирующая труба вытяжной вентиляции, проходящая над КЭУ-2. Оценка вклада гамма-излучения со стороны вытяжной трубы во внешнее облучение персонала, выполненная с помощью коллиматора, составила до 85 % на отдельных рабочих местах.

В результате исследования физико-химических свойств радиоактивных аэрозолей выявлена высокая реакционная способность СНУП соединений, обуславливающая практически мгновенное окисление торакальной фракции аэрозолей СНУП топлива при контакте с воздушной средой.

Однако поступление смешанных нитридов в организм возможно пероральным путем в составе экстракорпоральной фракции на поверхности которых при взаимодействии с воздухом образуется оксидная пленка, тормозящая дальнейшее окисление. Растворение данных частиц в желудочном соке может привести к высвобождению нитридной сердцевинки с последующим быстрым поступлением радионуклидов в органы и ткани организма через ЖКТ.

Сложный морфологический и дисперсный состав аэрозольных частиц в совокупности со сложным химическим составом, обусловленным процессами ста-

рения аэрозолей, может привести к кардинальному отличию процессов биокинетики ЧУП аэрозолей, процесса дозообразования и, следовательно, степени радиологической опасности по сравнению с принятыми в моделях МКРЗ для U и Pu. Можно предположить, что значительное преобладание по массе изотопов урана в ЧУП топливе, вместе с химической связью урана с плутонием в составе смешанного нитрида (U, Pu)N, приведет к распределению плутония в организме в соответствии с биокинетической моделью метаболизма урана.

Radiation-Hygienic Investigations of Experimental Production of Mixed Nitride Uranium-Plutonium Fuel at JSC SChC. Part 1: Methods and Results

L.A. Ilin¹, A.S. Samoylov¹, A.G. Tsovyarov¹, S.M. Shinkarev¹, N.K. Shandala¹, P.P. Gantsovsky¹, A.E. Karev¹, B.A. Kukhta¹, A.V. Simakov¹, V.N. Klochkov¹, I.P. Korenkov¹, A.M. Lyaginskaya¹, O.V. Parinov¹, V.M. Solomatin², K.M. Izmaytyev³

¹SRC FMBC of FMBA, Moscow, Russia

²JSC Proryv, Moscow, Russia

³JSC Siberian Chemical Combine, Seversk, Russia

Contact person: Alexander Georgievich Tsovyarov: fmhc-fmba@bk.ru

ABSTRACT

Purpose: To present the methods and results of studies of the factors of radiation exposure to workers involved in the manufacture of mixed uranium-plutonium nitride (MUPN) fuel at the complex experimental installations CEI-1 and CEI-2 of JSC SChC.

Material and Methods: Regularities of the formation of external exposure doses have been revealed based on the study of the dynamics of the ambient dose equivalent rate (ADER) of photon and neutron radiation at the CEI-1 and CEI-2 workplaces, as well as instrumental individual dosimetric control of the equivalent doses to workers. In order to assess the inhalation intake and possible doses from internal irradiation, studies of the physicochemical properties of radioactive aerosols were carried out.

Results: It has been found that the main sources of penetrating radiation in the premises of CEI-1 are boxes where tablets are pressed, chips and rejected tablets are crushed, as well as temporary storage of products is occurred. The highest ADER values have been measured in those boxes, where the radiation exposure was due to radioactive contamination caused by past activity, and is not associated with fabrication of MUPN fuel. A significant contribution of neutron exposure to individual doses of workers was measured, which exceeded the contribution of gamma exposure at some workplaces of the CEI-1. At CEI-2, a non-functioning exhaust ventilation pipe passing over the premises was found to be a powerful source of external radiation. This pipe contained a significant amount of radioactive material. Assessment of the contribution of gamma exposure from the ventilation pipe to the external exposure of workers reached 85% at some workplaces. Studies of the physicochemical properties of radioactive aerosols have revealed a high reactivity of MUPN compounds, leading to instant oxidation of the thoracic fraction of MUPN fuel aerosols under contact with air. The complex morphological and dispersed composition of aerosol particles in combination with a complex chemical composition caused by the aging processes of aerosols, can lead to a fundamental difference in the biokinetics of MUPN aerosols, the process of dose formation and, consequently, the degree of radiological hazard compared to those adopted in the ICRP models for U and Pu.

The results of the current radiation-hygienic research are of a preliminary nature, since the object of this research is an experimental installation, which was used to develop a new technology for the production of MUPN fuel. The instrumental and methodological approaches to assess the factors of radiation exposure to workers tested at these experimental installations, will be used in the future to conduct similar studies during the pilot industrial operation of new modules for fabricating and refurbishing of MUPN fuel.

Key words: mixed nitride uranium-plutonium fuel, radiation safety, complex experimental installation, gamma and neutron exposure, radioactive aerosols

For citation: Ilin LA, Samoylov AS., Tsovyarov AG, Shinkarev SM, Shandala NK, Gantsovsky PP, Karev AE, Kukhta BA, Simakov AV, Klochkov VN, Korenkov IP, Lyaginskaya AM, Parinov OV, Solomatin VM, Izmaytyev KM. Radiation-Hygienic Investigations of Experimental Production of Mixed Nitride Uranium-Plutonium Fuel at JSC SChC. Part 1: Methods and Results. Medical Radiology and Radiation Safety. 2021;66(5):76-86.

DOI: 10.12737/1024-6177-2021-66-5-23-32

Конфликт интересов. Авторы заявляют об отсутствии конфликта интересов.

Финансирование. Исследование не имело спонсорской поддержки.

Участие авторов. Статья подготовлена с равным участием авторов.

Поступила: 23.12.2020. Принята к публикации: 20.01.2021.

Conflict of interest. The authors declare no conflict of interest.

Financing. The study had no sponsorship.

Contribution. Article was prepared with equal participation of the authors.

Article received: 23.12.2020. Accepted for publication: 20.01.2021.

СПИСОК ИСТОЧНИКОВ

1. Рачков В.И., Адамов Е.О. Научно-технические проблемы ЗЯТЦ двух-компонентной ЯЭ и их решение в ПН «Прорыв». В сб. докладов отраслевой конференции по теме «Замыкание топливного цикла ядерной энергетики на базе реакторов на быстрых нейтронах» 11-12 октября 2018 г. г. Томск, с.6 – 15.
2. Стратегия развития атомной энергетики России в первой половине XXI века. Основные положения. – М.: Минатом России, 2000. – 26 с.
3. Проект «Прорыв» – технологический фундамент для крупномасштабной ядерной энергетики / Адамов Е.О., Алексахин Р.М., Большов Л.А., Дедуль А.В., Орлов В.В., Першуков В.А., Рачков В.И., Толстоухов Д.А., Троянов В.М. // Известия Российской академии наук. Энергетика. – 2015. – № 1. – с.5 – 13.
4. Адамов Е.О., Орлов В.В., Рачков В.И., Слесарев И.С., Хомяков Ю.С. Ядерная энергетика с естественной безопасностью: смена устаревшей парадигмы, критерии // Известия Российской академии наук. Энергетика. – 2015. – № 1. – с.13 – 29.
5. Shultis, J. Kenneth; Richard E. Faw. стр. 141, табл. 6.2 // Fundamentals of Nuclear Science and Engineering. — CRC Press, 2008.
6. Physics and Fuel Performance of Reactor-Based Plutonium Disposition. Workshop Proceedings - Paris, France, 28-30 September 1998. Nuclear Energy Agency.
7. Хабахпашев А.Г. Спектр нейтронов Po- α -O источника. Атомная энергия. Том 7, вып. 1. – 1959.
8. ICRP, 2008. Nuclear Decay Data for Dosimetric Calculations. ICRP Publication 107. Ann. ICRP 38 (3).
9. Алексеев С.В., Зайцев В.А. Нитридное топливо для ядерной энергетики: Москва: Техносфера, 2013.
10. Murata T. et al., "Evaluation of the (α , xn) Reaction Data for JENDL/AN-2005," JAEA-Research 2006-052 (Jul 2006) from URL <https://www.ndc.jaea.go.jp/ftpnd/jendl/jendl-an-2005.html>.
11. Альфа-, бета- и гамма-спектроскопия, под ред. К. Зигбана, пер. с англ., в. 3 и 4, М., 1969.
12. Бондарьков М.Д., Желтоножская М.В., Максименко А.М., Садовников Л.В. Определение содержания изотопов плутония в черномыльских образцах по характеристическому L α -излучению урана. ПРОБЛЕМЫ БЕЗПЕКИ АТОМНИХ ЕЛЕКТРОСТАНЦІЙ І ЧОРНОБІЛІЯ ВІП. 2 2005 URL: <http://dspace.nbuv.gov.ua/bitstream/handle/123456789/128042/17-Bondarkov.pdf?sequence=1>
13. Andersen, A. A. 1966. A Sampler for Respiratory Health Hazard Assessment. Am. Ind. Hyg. Assoc. J., 27: 160–165.
14. ICRP. Age-dependent Doses to Members of the Public from Intake of Radionuclides: Part 4, Inhalation Dose Coefficients. ICRP Publication 71. Annals of the ICRP, Vol.25, № 3-4, 1995. Elsevier Science Ltd., Oxford.
15. Барановская Н.В., Игнатова Т.Н., Рихванов Л.П. Уран и торий в органах и тканях человека, Вестник томского государственного университета № 339, 2010, стр.182-188.

REFERENCES

1. Rachkov V.I., Adamov E.O. Scientific and technical problems of closed nuclear fuel cycle of a two-component nuclear power plant and their solution at the project direction "Proryv". In the collection of reports of the industry conference on the topic "Closing the fuel cycle of nuclear power based on fast neutron reactors" 11-12 October 2018, Tomsk, pp6 – 15.
2. Strategy for the development of nuclear energy in Russia in the first half of the XXI century. Basic concepts. – M.: Minatom of Russia, 2000. – 26p.
3. Project "Proryv" – technological basement for large-scale nuclear power / Adamov E.O., Alexakhin R.M., Bolshov L.A., Dedul A.V., Orlov V.V., Pershukov V.A., Rachkov V.I., Tolstoukhov D.A., Troyanov V.M. // Bulletin of the Russian Academy of Sciences. Energy. – 2015. – Vol.1, pp5 – 13.
4. Nuclear energy with natural safety: change of an outdated paradigm, criteria. / Adamov E.O., Orlov V.V., Rachkov V.I., Slesarev I.S., Khomyakov Yu.S. // Bulletin of the Russian Academy of Sciences. Energy. – 2015. – Vol.1, pp13 – 29.
5. Shultis, J. Kenneth; Richard E. Faw. p. 141, Table 6.2 // Fundamentals of Nuclear Science and Engineering. — CRC Press, 2008.
6. Physics and Fuel Performance of Reactor-Based Plutonium Disposition. Workshop Proceedings - Paris, France, 28-30 September 1998. Nuclear Energy Agency.
7. A.G. Khabakhpashev. Neutron spectrum of Po- α -O source. Atomic Energy. Vol.7, No. 1. – 1959.
8. ICRP, 2008. Nuclear Decay Data for Dosimetric Calculations. ICRP Publication 107. Ann. ICRP 38 (3).
9. Alekseev S.V., Zaitsev V.A. Nitride fuel for nuclear power: Moscow: Technosphere, 2013.
10. T. Murata et al., "Evaluation of the (α , xn) Reaction Data for JENDL/AN-2005," JAEA-Research 2006-052 (Jul 2006) from URL <https://www.ndc.jaea.go.jp/ftpnd/jendl/jendl-an-2005.html>.
11. Alpha, beta and gamma spectroscopy, ed. K. Zigbana, trans. from English, in. 3 and 4, M., 1969.
12. M.D. Bondarkov, M.V. Zheltonozhskaya, A.M. Maksimenko, L.V. Sadovnikov Determination of the content of plutonium isotopes in Chernobyl samples from the characteristic L α radiation of uranium. PROBLEMS OF NUCLEAR POWER PLANT SECURITY I CHORNOBILIA VIP. 2 2005 URL: <http://dspace.nbuv.gov.ua/bitstream/handle/123456789/128042/17-Bondarkov.pdf?sequence=1>
13. Andersen, A. A. 1966. A Sampler for Respiratory Health Hazard Assessment. Am. Ind. Hyg. Assoc. J., 27: 160–165.
14. ICRP. Age-dependent Doses to Members of the Public from Intake of Radionuclides: Part 4, Inhalation Dose Coefficients. ICRP Publication 71. Annals of the ICRP, Vol.25, № 3-4, 1995. Elsevier Science Ltd., Oxford.
15. N.V. Baranovskaya, T.N. Ignatova, L.P. Rikhvanov Uranium and thorium in human organs and tissues, Bulletin of Tomsk State University No. 339, 2010, pp. 182-188.