

Во-вторых, построение топологии вложенных комнат *Guide Bot* является задачей существенно более сложной, чем создание графа связности выпуклых полигонов NavMesh и на порядок более сложную, чем определение точек видимости для метода POV.

1. www.logicking.com - Middleware solution for virtual reality and computer games
2. *Стюарт Рассел, Питер Норвиг* Искусственный интеллект: современный подход (AIMA). - М.: Издательский дом «Вильямс», 2005.-1424 стр. с ил
3. www.pathengine.com – Intelligent agent movement
4. www.navpower.com – AI motion planning middleware Mat Buckland. Programming Game AI By Example. Wordware Publishing, 2004
5. *Добронравин Ю.В.* Интеллектуальные агенты, базирующиеся на принципе психической доминанты. // VII-я международная конференция "Интеллектуальный анализ информации ИАИ-2007", 14-18 мая 2007 года, Киев

Поступила 27.01.2011г.

УДК 621.039:504.064

Ю.Л. Забулонов, В.М. Буртняк, И.О. Золкин
Институт геохимии окружающей среды НАН и МЧС Украины, Киев.

АНАЛИЗ МЕТОДОВ КОНТРОЛЯ ГАЗОАЭРОЗОЛЬНЫХ ВЫБРОСОВ АЭС

An attempt is made in this article to analyze the methods of control of the gaseous and aerosol emissions from NPP. It has been shown that liquid scintillation counting is the most preferable method for low-level activities measuring.

Введение.

Повышение уровня безопасности атомных станций является приоритетным направлением развития атомной энергетики. В процессе эксплуатации АЭС, даже в штатном режиме, выбрасывает в окружающую среду радиоактивные вещества в виде жидких и газоаэрозольных сбросов. Рассеянные в воздухе радионуклиды оказывают негативное влияние на окружающую среду и население [1]. В радиоактивном загрязнении окружающей среды АЭС особое место занимают тритий (^3H) и радиоуглерод (^{14}C). Атомы этих веществ путем изотопного обмена могут замещать стабильные водород и углерод в молекулах живых организмов (в ДНК, РНК и др.). Радионуклиды, которые накапливаются в органах и тканях, становятся источником длительного внутреннего облучения и представляют особую опасность для генетического аппарата человека [2,3]. Биологическое воздействие трития усиливается тем, что при его распаде образуется

104 © Ю.Л. Забулонов, В.М. Буртняк, И.О. Золкин

инертный гелий, что приводит к разрушению соответствующей водородной связи, а это, в свою очередь, негативно сказывается на синтезе органических соединений и может оказать пагубное влияние на наследственность. Биологическое действие радиоуглерода связывают не только с радиационными, но и трансмутационными эффектами, которые возникают при превращении атомов ^{14}C в атомы ^{14}N в результате β -распада. Особую опасность эти процессы приобретают при включении углерода-14 в ДНК и РНК половых клеток, так как даже единичные акты его распада ведут к необратимым точечным мутациям [4]. Поэтому, своевременное выявление повышения уровня трития и углерода в газоаэрозольных выбросах является важным элементом системы обеспечения экологической безопасности зоны АЭС.

Методы измерения активности трития и углерода-14.

Тритий и углерод-14 являются чистыми β -излучателями с максимальными энергиями излучения 18.6 и 155 кэВ соответственно (так называемые «мягкие» β -излучатели). В настоящее время для измерения активностей трития и углерода используются различные методы. Для сравнения конкурирующих методов измерений необходимы критерии – показатели, которые позволяют учитывать их различные технические и алгоритмические особенности. Для оценки потребительских качеств методов измерений активностей трития и углерода рассмотрим показатели, которые учитывают наиболее важные характеристики, а именно: чувствительность, точность измерения, время измерения, надежность измерения, коммерческая доступность оборудования, необходимость обработки отдельных проб или непрерывной регистрации

Проведение дискретного или непрерывного анализа.

Выбор того или иного подхода к измерениям определяется степенью сложности метода, относительной стоимостью методов и точностью требуемой обработки [5]. Экспрессные методы легко реализовать для непрерывного контроля, а методы, требующие более сложной и точной обработки, гораздо целесообразнее применять при дискретном анализе. Примером последнего, может служить жидкостная сцинтилляционная радиометрия. Следовательно, для радиационного контроля аэрозольных выбросов трития и углерода на АЭС необходима специализированная автоматизированная система отбора, обработки и анализа проб.

Основные методики пробоотбора.

Пары тритированной воды (НТО) и тритированный водород (НТ) – наиболее распространённые формы существования трития в атмосферном воздухе. В связи с тем, что НТО по своим физико-химическим свойствам, кроме радиоактивности, мало отличается от H_2O , для отбора проб окиси трития практически применимы все методы, используемые для обычной воды.

Метод вымораживания (конденсации) основан на конденсации паров воды в металлической или стеклянной охлаждаемой ловушке. В качестве охладителя может быть использован жидкий азот ($T = -196\text{ }^{\circ}\text{C}$) или смесь

этилового спирта, эфира, ацетона с уголекислой кислотой ($T = -72 \div 78$ °С). Метод барботирования основан на продавливании газа или пара через слой жидкости. При барботировании используют специальные ловушки, заполненные жидкими поглотителями окиси трития. Наиболее часто в качестве поглотителя НТО используют дистиллированную воду. Метод осушения основывается на явлении адсорбции - избирательном поглощении одного или нескольких компонентов из газовой фазы твердыми телами. В качестве поглотителя влаги используют металлическую или стеклянную камеру или колонку, заполненную адсорбентом. Адсорбенты для поглощения паров тритированной воды должны обладать следующими свойствами: а) высокой влагоемкостью; б) хорошим удержанием влаги; в) низким остаточным влагосодержанием; г) механической прочностью и д) химической инертностью [6,7].

Отбор проб воздуха для определения в нем концентрации ^{14}C производится в основном барботажем его через какую-либо щелочь, например: гидрат окиси калия, натрия или бария, которая, взаимодействуя с уголекислым газом, находящимся в воздухе и образует соответствующие карбонаты. Углерод, находящийся в воздухе в виде других соединений, тем или иным образом окисляется до уголекислоты. Твердые и жидкие образцы сжигаются до уголекислоты, которая улавливается щелочью. Отбор проб радиоуглерода является в общем случае более сложным процессом и включает в себя большее число этапов химической обработки [8].

Основные методы измерения активности трития и радиоуглерода.

Для измерения трития и углерода-14 в лабораторных исследованиях, при контроле окружающей среды и в промышленной радиометрии применяют *ионизационные камеры*. Ионизационные камеры используют преимущественно для измерения содержания исследуемых веществ в газовых средах, которые вводятся во внутренний объём камеры. На своем пути в воздухе β -частица образует определенное количество пар ионов. При полном собирании этих ионов в ионизационной камере может быть получен импульс напряжения порядка 1мкВ. Наиболее часто тритий вводят в камеру (помимо воздуха) в смеси с водородом или в виде паров воды [9]. Для измерения активности углерода-14 камеру заполняют уголекислым газом, метаном, этаном, парами бензола.

Для измерения трития и углерода-14 в газовых смесях используют также *газоразрядные счётчики* (пропорциональные и счетчики Гейгера). Конструктивно пропорциональные счетчики и счетчики Гейгера почти тождественны. Они отличаются лишь режимом работы, т.е. приложенным напряжением и, как следствие, измерительной аппаратурой. Если увеличивать разность потенциалов между электродами ионизационной камеры, то, начиная с определённого момента, наблюдается увеличение тока по сравнению с величиной, соответствующей насыщению. Такое возрастание тока начинается, когда электроны за время между соударениями с молекулами газа, сопровождающимися потерями энергии, успевают

приобрести энергию, достаточную для ионизации. Возникающие при такой ионизации электроны в свою очередь могут ионизировать молекулы газа и, таким образом, каждый акт первичной ионизации может вызвать лавинную вторичную ионизацию и в счетчике произойдет так называемое газовое усиление. Рассмотренный процесс является одной из основных характеристик работы газоразрядных счётчиков [10]. Из-за малого пробега β -частиц лавина вторичных частиц поступает на центральную нить в течение короткого интервала времени, поэтому время нарастания импульсов, обусловленных тритием и ^{14}C , короче, чем для импульсов от других (нежелательных) источников. То есть импульсы, которые возбуждаются фоновым излучением, обусловленным длиннопробежными частицами, имеют более пологий фронт по сравнению с импульсами, образованными первичными электронами. Поэтому применение в регистрирующей установке логических схем отбора по форме импульса позволяет значительно снизить скорость счёта фоновых импульсов.

Проходя через вещество, заряженные частицы теряют энергию как на ионизацию, так и на возбуждение атомов и молекул вещества. Имеется класс веществ, называемых *сцинтилляторами*, в которых возбуждение с достаточно большой вероятностью реализуется в виде светового излучения, т. е. часть энергии, теряемой частицей в такой среде, преобразуется в энергию световой вспышки – сцинтилляции. Известны твёрдые, жидкие и газообразные сцинтилляторы различной химической природы. В любом случае для получения наибольшей чувствительности необходимо обеспечивать непосредственный контакт измеряемой пробы со сцинтиллятором и наибольшую поверхность их соприкосновения.

Световые вспышки, возникающие при прохождении частиц через сцинтиллятор, крайне слабы, и для их регистрации используют фотоэлектронные умножители (ФЭУ). Одной из важнейших характеристик комбинации сцинтиллятор – фотоумножитель является сцинтилляционная эффективность. Она измеряется числом фотоэлектронов, вырванных с фотокатода и попавших на первый диод ФЭУ, на единицу энергии, потерянной быстрой частицей в сцинтилляторе.

Выбор метода.

При выборе метода измерения трития и углерода прежде всего следует учитывать точность и воспроизводимость результатов, а затем чувствительность и быстроту определений.

С помощью ионизационных камер измеряются пробы, содержащие от 10^{-10} Ки трития или ^{14}C до практически чистых соединений. Главный недостаток метода - это необходимость превращать содержащие тритий образцы в газ, который требует сложного обращения при наполнении камеры. Также в ионизационных камерах нельзя одновременно измерять активность трития и другого β -излучателя (например, углерода-14), тогда как подобные измерения проводятся сейчас довольно часто. В то же время

ионизационные камеры обладают высоким выходом отсчёта, относительной нечувствительностью к остаткам примесей в газе, простотой конструкции.

К достоинствам счетчика Гейгера и пропорционального счетчика относятся короткое «мертвое время» и большая скорость счета. Однако измерение активности углерода-14 и трития счетчиками, так же, как и ионизационными камерами, имеет свои недостатки, главными из которых являются: 1) довольно трудоёмкие операции по подготовке образца; 2) загрязнение образцов в счётных трубах и так называемые эффекты «памяти» во внутренних счётчиках газа.

Жидкостно-сцинтилляционный метод имеет следующие преимущества: быстрота и высокая чувствительность; возможность измерять образцы небольшого объема (10-15 мл); измерение самых разнообразных образцов без перевода их в сходные химические соединения; использование стандартных контейнеров, почти нацело исключаящих загрязнение образцов. Также в жидкий сцинтиллятор можно вводить без существенного изменения сцинтилляционной эффективности различные по своему химическому составу вещества в количестве до 50 % веса сцинтиллятора. Это используют для создания непосредственно контакта измеряемого объекта с рабочим телом детектора и тем самым 4π-геометрии измерений. Получаемое таким образом удобство в приготовлении и простота работы с жидкими образцами позволяют легко автоматизировать процедуру измерений и делают сцинтилляционный метод наиболее универсальным и высокопроизводительным. Главными недостатками метода сцинтилляционных измерений являются: меньший по сравнению с методом подсчета в газе выход отсчета; необходимость делать поправку на тушение; влияние эффектов фосфоресценции, хемилюминесценции.

Метод жидкостной β-сцинтилляции является наиболее универсальным методом. Другие методы используются для более ограниченных и специальных нужд.

Метод жидкостной сцинтилляционной спектрометрии.

Сцинтилляционный метод исследования радиоактивных процессов, первоначально основанный на визуальном счете сцинтилляций, нашел широчайшее применение для изучения параметров ионизирующих излучений благодаря изобретению в 1946 году детектора типа сцинтиллятор-фотоэлектронный умножитель. Свойственный данному типу детекторов специфические характеристики, такие, как наличие внутреннего усиления сигнала до $10^4 - 10^8$, площади входного окна (сотни см^2), хорошее спектральное согласование области фоточувствительности ФЭУ с излучением высокоэффективных сцинтилляторов, обеспечивают им устойчивое применение в ядерной физике, биологии, медицине и экологии [11].

При взаимодействии регистрируемых частиц и квантов с веществом сцинтиллятора в последнем возникают световые вспышки – сцинтилляции. В упрощенном виде процесс сцинтилляции состоит из трёх стадий [12]:

1) β -излучение изотопа проникает в сцинтиллирующий растворитель (объёмом молекул источника излучения можно пренебречь), где проявляется в виде энергии ионизации, диссоциации или возбуждения молекул раствора. Энергия электронного возбуждения раствора более всего способствует появлению светового излучения;

2) энергия возбуждения раствора передаётся затем молекулам первичного растворенного вещества, представляющего собой какое-либо флуоресцирующее соединение;

3) возбуждённые молекулы флуоресцирующего вещества возвращаются в исходное состояние, испуская квант света в видимой или близкой ультрафиолетовой области

Стадии данного процесса изображены на рисунке 1:



Рис. 1. Механизм передачи возбуждения в молекулах сцинтиллирующего коктейля

Для регистрации трития и углерода-14 наибольший интерес представляют жидкостные сцинтилляционные счётчики, позволяющие наиболее просто обеспечивать непосредственный контакт измеряемого образца (диспергированием или растворением) с жидким сцинтиллятором [13]. Жидкие органические сцинтилляторы представляют собой растворы флуоресцирующих веществ в прозрачных растворителях, мало поглощающих энергию излучения в фиолетовой и ультрафиолетовой частях спектра. Энергетический выход у жидких сцинтилляторов достаточно низкий и составляет примерно $12,5E_{\beta}$, где E_{β} - энергия β -частицы, кэВ. В результате этого на первый динод ФЭУ в лучшем случае приходит от 2 до 10 электронов. Из-за малых амплитуд сцинтилляций качество счётчика в значительной мере определяется фотоумножителем. Поэтому умножители, которые применяют для измерения трития и углерода-14, должны обладать рядом специальных свойств [10]: 1) максимальная чувствительность фотокатода; 2) большой коэффициент умножения; 3) малый уровень шумов; 4) высокая стабильность как коэффициента усиления, так и уровня собственных шумов; 5) отсутствие радиоактивных загрязнений в конструкционных материалах.

Световая энергия, выделяемая в сцинтиляторе при регистрации заряженной частицы, однозначно определяется энергией частицы (рис. 2). Поскольку все остальные элементы сцинтилляционного счетчика линейны, амплитуда электрического импульса на его выходе может служить мерой энергии регистрируемого излучения, а спектр амплитуд импульсов отображает энергетический спектр (рис. 3).

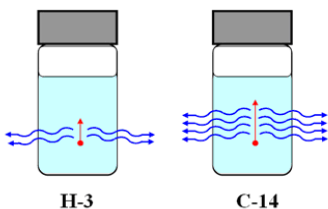


Рис. 2. Генерация фотонов в жидком сцинтилляторе

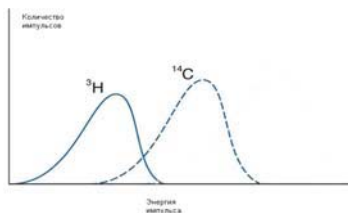


Рис. 3. Энергетические спектры исследуемых радионуклидов

На выходе ФЭУ большая часть спектра импульсов, обусловленных β -частицами трития и углерода-14, находится в области спектра шумов одиночных фотоэлектронов, возникающих на фотокатод. Следовательно, простая дискриминация амплитуд импульсов (как в случае газоразрядных счетчиков) неприменима. Поэтому стандартным методом снижения фона жидкостных сцинтилляционных счетчиков стал метод регистрации совпадений импульсов от двух ФЭУ, предложенный Хиббертом и Уаттсом [14]. В данном случае сцинтиллятор с измеряемым образцом просматривается двумя ФЭУ, и регистрация сцинтилляций производится лишь тогда, когда сигналы появляются одновременно на выходах обоих фотоумножителей (рис. 4).

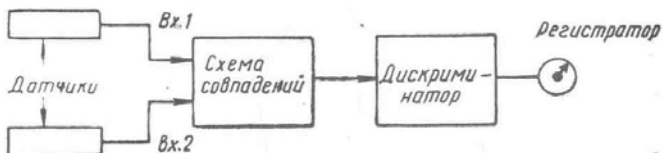


Рис. 4. Схема двухканальной установки для отбора совпадений

Отсчет будут вызывать только те пары импульсов, суммарное воздействие которых вызовет сигнал на выходе схемы совпадений, превосходящий значение порога дискриминатора. Скорость совпадений импульсов R_c , обусловленных одиночными фотонами или некоррелированными фотоэлектронами в каждом ФЭУ, выражается формулой

$$R_c = 2\tau N_1 N_2,$$

где τ – время, в течение которого импульсы от двух ФЭУ регистрируются как совпадающие; N_1 и N_2 – некоррелированные скорости счета каждого ФЭУ. Для обеспечения низкой скорости счета случайных совпадений желательно, чтобы величина τ была мала. Поскольку желательно также иметь высокую эффективность регистрации истинных совпадений, обусловленных β -излучением трития и углерода-14, то предельное значение τ следует определять временем, в течение которого излучаются фотоны каждой

сцинтилляции. Повышение эффективности регистрации достигается, кроме того, суммированием усиленных импульсов от двух ФЭУ перед амплитудной дискриминацией импульсов, соответствующих исследуемому веществу [15].

Метод измерения низких активностей с помощью жидкостной сцинтилляционной спектроскопии получает в последние годы все большее развитие. Введение образца внутрь жидкого сцинтиллятора обеспечивает 4π-изометрию, хорошую эффективность счета мягких β-излучений (³H, ¹⁴C) и близкую к 100% эффективность для жестких β-излучений. Однако, наблюдаемые во всем мире тенденции к ужесточению норм радиационной безопасности, требуют усовершенствования существующих методов, контроля радиационной безопасности зоны АЭС. Во многих отношениях измерительная аппаратура для контроля аэрозольных выбросов трития и углерода вентиляционных труб АЭС все еще находится на начальной стадии развития, и необходимы дальнейшие усилия по ее усовершенствованию в области повышения чувствительности, надежности и качества измерений.

1. Григорьева Л.И. Радиационная нагрузка на человека в районе АЭС.// Ядерная радиационная безопасность. – 2010, №1.
2. "Тритий - это опасно". Сборник - 2001.- №1.
3. Окись трития / Под ред. проф. Ю.И. Москалева. М.: Атомиздат, 1968.-80 с.
4. Рублевский В. П., Голенецкий С. П., Курдин Г.С. Радиоактивный углерод в биосфере. М., 1979. – 152 с.
5. Методы измерения трития. США: Пер. с англ. Под ред. Ю.В. Сивинцева. – М.: Атомиздат, 1978. – США, 1976. – 96 с.
6. Vodila, G., Veres, M. Mapping of tritium emissions using absorption vapour samplers// Journal of Environmental Radioactivity, 100, 120–124 (2009).
7. Uda, T., Sugiyama, T. et al. Developments of gaseous water, hydrogen and methane sampling system for environmental tritium monitoring// Fusion Engineering and Design 81, 1385-1390 (2006) .
8. KrajcarBronic, I., Horvatincic, N., Baresic, J., Obelic, B. Measurement of ¹⁴C activity by liquid scintillation counting// Applied Radiation and Isotopes 67, 800–804 (2009).
9. Беловодский Л.Ф., Гаевой В.К., Гришмановский В.И. Тритий. М., Энергоатомиздат, 1985. - 247 с.
10. Ломоносов И.И., Сошин Л.Д. Измерение трития. – М.: Атомиздат, 1968. – 108 с.
11. Гринёв Б.В., Рижиков В.Д., Семиноженко В.П. Сцинтилляционные детекторы и системы контроля радиации на их основе. – К.: Наукова думка, 2007.
12. Эванс Э. Тритий и его соединения: Пер. с англ. М.: Атомиздат. 1970. - 309 с.
13. Varlam, C., Stefanescu, I., Dului, O.G. et al. Applying direct liquid scintillation counting to low level tritium measurement// Applied Radiation and Isotopes 67, 812–816 (2009).
14. Hiebert, R.D., Watts, R.J. Fast-Coidence Circuit for ³H and ¹⁴C Measurements// Nucleonics, 11(12), 38-41(1953).
15. Вяземский В. О., Ломоносов И. И., и др. Сцинтилляционный метод в радиометрии., М.: Госатомиздат, 1961. – 430с.

Поступила 17.01.2011г.