МИНИСТЕРСТВО УКРАИНЫ ПО ДЕЛАМ ЗАЩИТЫ
НАСЕЛЕНИЯ ОТ ПОСЛЕДСТВИЙ АВАРИИ
НА ЧЕРНОБЫЛЬСКОЙ АЭС
ОТДЕЛ РАДИАЦИОННОГО МОНИТОРИНГА
ОКРУЖАЮЩЕЙ СРЕДЫ
НТЦ НПО «ПРИПЯТЬ»

С. И. Рыбалко, Н. И. Проскура, С. Ю. Пономарев

АМЕРИЦИЙ-241 В 30 км ЗОНЕ ЧАЭС— ОЦЕНКА НАКОПЛЕНИЯ И КАЧЕСТВЕННЫЙ ПРОГНОЗ МИГРАЦИИ В ПОЧВАХ

Препринт НПО «Припять»

Чернобыль—1992

МИНИСТЕРСТВО УКРАИНЫ ПО ДЕЛАМ
ЗАЩИТЫ НАСЕЛЕНИЯ ОТ ПОСЛЕДСТВИЙ
АВАРИИ НА ЧЕРНОБЫЛЬСКОЙ АЭС

ОТДЕЛ РАДИАЦИОННОГО МОНИТОРИНГА
ОКРУЖАЮЩЕЙ СРЕДЫ
НТЦ НПО "Припять"

С. И. РЫБАЛКО, Н. И. ПРОСКУРА, С. Ю. ПОНОМАРЕВ

АМЕРИЦИЙ-241 В 30 км ЗОНЕ ЧАЭС - ОЦЕНКА НАКОПЛЕНИЯ И КАЧЕСТВЕННЫЙ ПРОГНОЗ МИГРАЦИИ В ПОЧВАХ

Препринт НПО "Припять"

Чернобыль 1992

УДК 621. 039. 586

"Америций-241 в 30 км зоне ЧАЭС - оценка накопления и качественный прогноз миграции в почвах."

Н.И. Проскура, С.И. Рыбалко, С.Ю. Пономарев.

В препринте проведена оценка накопления трансурановых элементов (ТУЭ) в объектах окружающей среды. Анализ данных радиохимических анализов ТУЭ, цепочек выгорания и распада U-235 показывает возрастающую роль Am-241 как альфа-излучателя. В настоящее время его активность на территории 30 км зоны ЧАЭС близка к активности изотопов плутония. В 2056 - 2057 гг. альфа-активность америция-241 превысит активность плутония приблизительно в 2.8 раза.

Ответственный редактор проф. Сенин Е.В.

"Am-241 in the 30-km area of Chernobyl NPS - the estimation of accumulation and qualitative forecast of migration in soil.

N. I. Proskura, S. I. Rybalko, S. Yu. Ponomarev.

The accumulation of trans-uranium elemens (TUE) in environment is estimated. The analysis of the TUE radiochemical tests, and that of U-235 fission chain shows the increasing role of Am-241 as alpha-radiator. Its alpha-activity is now near to that of Plutonium. In 2056-2057 y.y. alpha-activity of Am-241 will approximately 2.8 times exceed Pu-239+240 activity.

Chif editor prof. Senin E.V.

Используя опубликованные в работах [1-3] данные авторы настоящей публикации рассчитали массы накопленных радионуклидов в аварийном реакторе на момент аварии радионуклидов. Оказалось, что Cs-137 накопилось около 100 кг, Pu-239 около 400 кг, Am-241 - 1.5 кг. Известно, что во время аварии на ЧАЭС в 1986 г. на дневной поверхности сформировалось три основных следа: западный - в секторе 250-290 град.; южный - 130-170 град.; северный - 30-70 град. Для получения устойчивых усредненных соотношений между активностями радионуклидов как по основным направлениям распространения выброса так и по всей площади 30-км зоны была использована база данных ОРМОС НТЦ. В качестве "репера" авторами был взят Ce-144, чему предшествовал анализ физико-химических свойств основных радионуклидов аварийного выброса. В итоге обобщения справочных данных и имеющихся на сегодняшний день результатов исследований авторы пришли к выводу о том, что Ce-144 наиболее прочно связан с топливной матрицей. Поэтому расчитывались соотношения активности Ce-144 к основным техногенным радионуклидам. Анализ полученных данных показывает следующее:

- соотношения активностей Ce-144 к Ru-106, Zr-95 и NB-95 мало изменяются в зависимости от направления и близки среднему по зоне;

- значимая вариация соотношений активностей по трем избранным направлениям наблюдается для Ce-144/Cs-137; так, в северном направлении это соотношение составляет 11, в южном - 20, в западном - 14, а среднее по зоне - 14 (по 574 различным наблюдениям). Это отражает, по всей видимости, эволюцию аварии на ЧАЭС и изменение соотношений различных радионуклидов в зависимости от температурных и других условий в аварийном блоке в апреле-июне 1986г. Относительно легкая возгоняемость изотопов цезия отражена в понижении соотношения Ce-144/Cs-137 в западном, и особенно в северном направлении; в этих направлениях и были сформированы огромные поля загрязнения цезием с плотностью загрязнения более 1 Ки/кв.км в России и Белорусии. В тоже время в южном направлении это соотношение увеличивается, что может дать при одних и тех же уровнях загрязнения цезием более высокие загрязнения церием и ТУЭ;

- большие вариации наблюдаются для соотношения активностей Ce-144/Sr-90 : северный след - 62, южный - 32 , западный - 82, а среднее по зоне 64 (759 измерений). Указанные соотношения демонстрируют как эволюцию состава выброса из аварийного 4-го энергоблока так и развитие метеообстановки в период аварии. Резко повышается относительная доля активности стронция в выбросе, когда радиоактивный материал уносился, в основном в южном и частично в юго-восточном направлении. Это хорошо объясняет наличие в ряде районов Украины территорий, где соотношения между Cs-137/Sr-90 составляет единицу и менее;

- мало варьируют и соотношения активности Ce-144 к активности изотопов плутония; это говорит о том, что ни в ходе аварии ни в течении шести послеаварийных лет нарушения соотношения этих изотопов не наблюдается применяемыми аналитическими методами.

Нами построена карта соотношений активности Ce-144 к активности Pu-239+Pu-240 в пределах 30-км зоны по более чем 500 анализам проб почв (рис. 1). Ярко выраженной тенденции в площадном распределении этого соотношения не наблюдается, за исключением некоторого повышения по западному следу. Большинство вариаций соотношения активности Ce-144 к активности Pu-239+Pu-240 не превышают аналитических погрешностей определения этих радионуклидов. Нет и значимой тенденции зависимости соотношения от активности Ce-144 отмечаемой Вакуловским С.М. и др. (рис. 2). Этот материал подтверждает возможность применения для расчетных оценок активностей изотопов плутония в 30-км зоне соотношения Ce-144/Pu-239.

Краткий анализ ядерно-физических характеристик ТУЭ.

Плутоний

Рассматриваем изотопы плутония 238, 239, 240 и 241.

Плутоний - 238. Тип ядерных превращений $,\alpha, \phi, \gamma X, e^-$; T1/2=87.74 лет. Энергии основных альфа-линий (кэВ): 5499.21 (71.5%); 5456.5 (28.4%). Интенсивных гамма и рентгеновских линий нет.

Плутоний - 239. Тип ядерных превращений $,\alpha, \gamma, e^- X,$;

T1/2=24113 лет. Энергии основных альфа-линий (кэВ): 5155.4 (73.3%); 5142.9 (15.1%); 5104.6 (11.5%). Есть слабые гамма-линии с энергиями (кэВ): 38.68 (1.0*10E-2 %); 51.63 (2.6*10E-2%).

Плутоний - 240. Тип ядерных превращений $,\alpha, \phi, \gamma X, e^-$; T1/2=6.56*E3 лет. Энергии основных альфа-линий (кэВ): 5168.30 (73.51%); 5123.82 (26.39%). Есть слабая гамма-линия (кэВ): 45.24 (4.41*10E-2 %).

Плутоний - 241. Тип ядерных превращений $,\beta^-, \alpha, \gamma X, e^-$; T1/2=14.64 лет. Энергия бета-линии (кэВ): 20.8 (99.99754%). Интенсивных альфа, гамма и рентгеновских линий нет.

Америций.

Изотоп америция - 241 образуется путем бетараспада плутония - 241. Тип ядерных превращений америция - 241 - $,\alpha, \gamma X, e^-$ Энергии основных альфа-линий (кэВ): 5485.74 (85.2%); 5442.98 (12.7%). Есть гамма-линия (кэВ): 59.537 (35.8%).

Кюрий.

Изотопы кюрия - 242 и 244. В настоящий момент важен кюрий - 244. Тип ядерных превращений $,\alpha, \phi, \gamma X, e^-$; T1/2=18.11 лет. Энергии основных альфа-линий (кэВ): 5804.96 (76.4%) и 5762.835 (23.6%). Интенсивных гамма и рентгеновских линий нет.

Нептуний.

В настоящее время важен нептуний - 237. Тип ядерных превращений $,\alpha, \gamma X, e^-$; T1/2=2.14*10E6 лет. Энергии основных альфа-линий (кэВ): 4788.2 (47%); 4771.3 (25%). Имеются две мягкие гамма-линии (кэВ): 29.37 (14.0%); 86.49 (12.6%). Интенсивных рентгеновских линий нет.

Анализ приведенной информации показывает, что практически все ТУЭ, находящиеся в выброшенных при аварии на ЧАЭС материалах, могут быть количественно и качественно определены по их

альфа-излучению (с соответствующей радиохимической подготовкой). Можно предложить и другие способы изучения ТУЭ:

- для Am-241 - анализ по мягкой линии 59.537 (35.8%) кэВ;
- для Np-237 - анализ по мягким гамма-линиям 29.37 (14.0%) кэВ и 86.49 (12.6%) кэВ .

Следовательно, возможен анализ Am-241 и, в ряде случаев, Np-237 по мягким гаммалиниям на рентгеновском полупроводниковом спектрометре (например, при изучении ТУЭ в "горячих" частицах, где поглощением матрицы частицы из-за малости ее размеров (1-20 мкм) можно пренебречь);

- практически для всех ТУЭ могут вестись поисковые разработки активационных методов (активация различными видами изучения частиц) в комплексе с необходимой радиохимической подготовкой и регистрации методами радиографии (например, f - радиографии) и спектрометрии.

Проведена оценка накопления ТУЭ в объектах окружающей среды. Анализ данных радиохимических анализов ТУЭ и цепочек выгорания и распада урана-235 показывает возрастающую роль Am-241, как альфа-излучателя (рис 3). В настоящее время его альфа-активность в объектах окружающей среды близка к альфа-активности плутония. В 2056 - 2057 г.г. альфа-активность Am-241 превысит альфа-активность плутония-239,240 приблизительно в 2.8 раза (рис. 4).

Ядерные превращения радионуклидов в матрице "горячих" частиц, образованных в результате "чернобыльской" аварии, могут стимулировать физико-механические и физико-химические процессы деструкции этих частиц, хотя изучение и количественные оценки величины радиационно-стимулированной деструкции "горячих" частиц проблематичны. Важно оценить воздействие на матрицу "горячих" частиц излучения изотопов Pu-241 и его дочернего продукта Am-241. Значимость получения этой оценки обусловлена необходимостью решения двух вопросов:

- изучение собственного радиационного воздействия на матрицу "горячей" частицы (особенно альфа-излучения накапливающегося Am-241) ;
- исследования радиационно стимулированного выщелачивания ТУЭ из различных типов "горячих" частиц (в первую очередь америция).

Интерес к оценкам радиационно-стимулированного выщелачивания Am-241 обусловлен тем, что его доля в формировании общего альфаизлучения ТУЭ становится ведущей и его образование происходит радиационным путем в матрице выброшенных в окружающую среду "горячих" частиц. При этом деформируются кристаллические структуры вещества частицы, происходит радиационное воздействие на материал частиц в виде бета-излучения плутония-241 и альфа-излучения америция-241. Это, при всех прочих равных условиях, может увеличить степень перехода америция-241 в системе "горячая" частица - окружающая среда по сравнению с ураном и другими ТУЭ.

Важным моментом при изучении деструкции "горячих" частиц может быть проявление импульсного радиолиза и связанное с ним тепловое стимулирование физико-химических процессов в результате термализации энергии, выделяющейся в процессе радиолиза.

Оценка накопления Am-241 в 30-км зоне Чернобыльской АЭС.

Расчет накопления изотопа Am-241 велся двумя способами: в первом способе использовались экспериментальные сведения о плотности загрязнения территории 30-км зоны Чернобыльской АЭС нуклидами Pu-239 и Pu-240, во втором - корреляция между плотностью загрязнения Ce-144 и вышеупомянутыми нуклидами.

Исходные предпосылки. По происхождению загрязнение зоны Am-241 делится на две группы: Am-241, образовавшийся в реакторе и Am-241, образовавшийся в результате бета-распада Pu-241, также накопившегося в реакторе. Исходя из опубликованных сведений о накоплении изотопов плутония на различных стадиях работы реактора РБМК-1000 и приняв, что среднее время кампании 2 года, находим, что на на 1 тонну топлива было наработано около 2.5 кГ Pu-239, 1.35 кГ Pu-240 и 0.39 кГ Pu-241. Считая, что при выбросе не происходило изотопного разделения нуклидов Pu, из того, что активность радионуклида пропорциональна периоду полураспада, массе и обратно пропорциональна атомному номеру, находим:

41-
99
Бесовна

$$A(Am) = [A(239)+A(240)] / [T(241)*M(239)/\{T(241)*M(239)\}+ T(241)*M(240)/\{T(240)*M(241)\}],$$

где:

A(Am) - активность Am-241,
A(239) - активность Pu-239,
A(240) - активность Pu-240,
T(239) - период полураспада Pu-239 (2.41e4 лет),
T(240) - период полураспада Pu-240 (6569 лет),
T(241) - период полураспада Pu-241 (14.3 года),
M(239) - масса наработанного Pu-239 (2.5 кГ/1т топлива),
M(240) - масса наработанного Pu-240 (1.35 кГ/1т топлива),
M(241) - масса наработанного Pu-241 (0.39 кГ/1т топлива).

Здесь пренебрегается различием в атомных массах, составляющих менее 0.5%. Подставив значения, находим, что

$$A(Am)=88 * A(239) + A(240).$$

Для выяснения поведения активности америция-241 во времени используем тот факт, что он образуется в результате бетапревращения плутония 241. Поэтому

$$Aam241(t)=Apu241(0)*Lpu241/(Lam241-Lpu241)* [\exp(-Lpu241*t)-\exp(-Lam241*t)] + Aam241(0)*\exp(-Lam241*t);$$

$$Lam241=\ln(2)/T(Am\text{-}241),$$
$$Lpu241=\ln(2)/T(Pu\text{-}241).$$

где:

Aam241(t) - зависимость активности Am-241 от времени,
Apu241(0) - активность Pu-241 в момент аварии,
Aam241(0) - активность Am-241 в момент аварии,
T(Am-241) - период полураспада Am-241 (431 год),
T(Pu-241) - период полураспада Pu-241 (14.3 года).

Для активности выброшенного из реактора америция-241 воспользуемся оценками, приведенными в работах /2-3/. Средняя наработка на 1Г UO2 составляет 8.3e5-9.9e5 Бк. Взяв массу топлива реактора 198 тонн, получим, что наработалось около 531 Ки Am-241. По общепринятому мнению, из реактора выброшено порядка 3.5% трансурановых элементов. Для америция-241 это составит 18.6 Ки.

Для того, чтобы приблизительно оценить его активность в точках наблюдения, будем считать, что он распространялся вместе с плутонием и соотношение активности Am-241 к Pu-239 + Pu-240 сохранилось таким, каким оно было в реакторе до аварии. По тем же оценкам, наработка на 1Г UO2 Pu-239 + Pu-240 составила около 9.5e6 Бк. Тогда на единицу активности плутония приходится 0.1 единицы активности америция. Формула зависимости активности от времени будет выглядеть так:

$$Aam241(t)=Apu241(0)* Lpu241/(Lam241-Lpu241)* [\exp(-Lpu241*t)-\exp(-Lam241*t)] + 0.1*Apu239_240(0)*\exp(-Lam241*t);$$

$$Lam241=\ln(2)/T(Am\text{-}241),$$
$$Lpu241=\ln(2)/T(Pu\text{-}241).$$

здесь:

Apu239_240 - сумма активности Pu-239 и Pu-240.

Анализируя зависимость активности Am-241 от времени находим, что максимум активности придется на 2055 год, причем суммарная альфа-активность превзойдет активность Pu-239 и Pu240 в 2.8 раза, что может привести к расширению зоны отчуждения. После этого будем иметь очень медленный спад активности (т.к. период полураспада америция-241 равен 433 годам).

Возникает необходимость проанализировать пространственное распределение америцием-241 в 30-км зоне. Для этого можно использовать результаты радиохимических анализов активности изотопов плутония (т. к. анализов на америций очень мало для удовлетворительной точности построения карты).

ОРМОС НТЦ НПО "Припять" располагает базой данных, содержащей сведения о плотности загрязнения территории 30-км зоны АЭС плутонием-239,240. Становится возможным использовать эти данные для прогнозного построения карты загрязненности америцием-241. Обработав имеющиеся данные, авторы построили карты загрязненности 30-км зоны Am-241 на 30 октября 1991г. и на момент максимума накопления Am-241 - 2056 год.

Для проверки высказанных нами предположений о возможности использования расчетного метода была построена карта по данным радиохимического анализа Am-241. К сожалению, в распоряжении авторов статьи имеются такие данные только по северо-западному следу в пределах которого наблюдается хорошее совпадение рассчитанного и измеренного полей загрязнения.

Так как радиохимические анализы дороги и трудоемки, многими исследователями предлагалось использовать тот факт, что некоторые радионуклиды при вылете из реактора распространялись вместе с плутонием и гораздо легче определить их активность. Это можно проверить, исследуя отношения активности проверяемого нуклида к активности плутония. Как уже отмечалось выше, наиболее удачный выбор это Ce-144. Так, среднее значение отношения активности Ce-144 к суммарной активности Pu-239 и Pu-240 для сектора с азимутом от 30 до 70 градусов составило 1630 (среднеквадратичное отклонение 14%), для азимута от 130 до 170 - 1620 (+-36%), и для азимута от 250 до 290 - 1690 (+-39%). Эти азимуты соответствуют трем основным следам загрязнения. Для всей зоны отношение Ce-144 / (Pu-239 + Pu-240) составило 1670 со среднеквадратичным отклонением +-42%. Пересчитав имеющиеся данные по активности церию-144 в вероятные активности плутония в точках пробоотбора, а затем в активность америция-241, мы построили еще одну карту плотности загрязнения Am-241 30-км зоны.

Карта практически не отличается от построенной по плутонию и, в пределах нахождения точек, для которых проводился радиохимический анализ, от карты, построенной по данным радиохимии.

Несмотря на то, что весовые концентрации ТУЭ в объектах окружающей среды невелики, переход их в химические формы, легко усваиваемые биотой или попадание в живые организмы ингаляционным путем, учитывая большие периоды полураспада, будут создавать дозовые нагрузки в течении многих лет после аварии (по альфаизлучению) Со временем ситуация будет заметно ухудшаться из-за накопления америция-241 из плутония-241. Как справедливо указывает Ф. И. Павлоцкая и др. "в наземных экосистемах основным депо ТУЭ являются почвы". Те же авторы, анализируя уже опубликованные ранее работы, приходят к выводу о более быстрой миграции америция по отношению к плутонию, объясняя последнее тем, что в миграции америция-241 большую роль играет конвективный перенос с током влаги, а для плутония предпочтителен перенос в виде тонкодисперсных частиц при промывании почв атмосферными осадками. Это заключение не вызывает критики, если в экспериментах была изучена миграция америция и плутония из "чернобыльского" выброса, а не из глобальных выпадений (цитируемые работы относятся к 1983-87 гг.). Для такого заключения есть и ряд предпосылок, отражающих собственные физико-химические свойства рассматриваемых ТУЭ. Если вывод об относительной скорости миграции америция и плутония будет хорошо подтвержден и на материалах НИР в 30-км зоне, то появится вопрос о причине "более интенсивного выхода" америция по сравнению с плутонием из матрицы топливных "горячих" частиц. В общем виде это может быть более легкая выщелачиваемость америция по сравнению с плутонием из "горячих" частиц в силу их химических особенностей или здесь играет роль генезис америция в уже находящихся в почве "горячих" частицах и тогда следует оценить роль радиационно-стимулированного выщелачивания америция. Дальнейшее поведение ТУЭ в почвенном профиле, естественно, будет зависеть от форм нахождения после "выхода" из частицы и свойств среды. Не останавливаясь на соотношении химических форм ТУЭ и их трансформации отметим, что поглощение америция происходит быстро аморфными соединениями и гумидными пленками, покрывающими минеральную частицу почвы, и дальше очень слабо переходит по системам почва - вода (Kd = (1-5)*10E4 (Ф. И. Павлоцкая и др.).

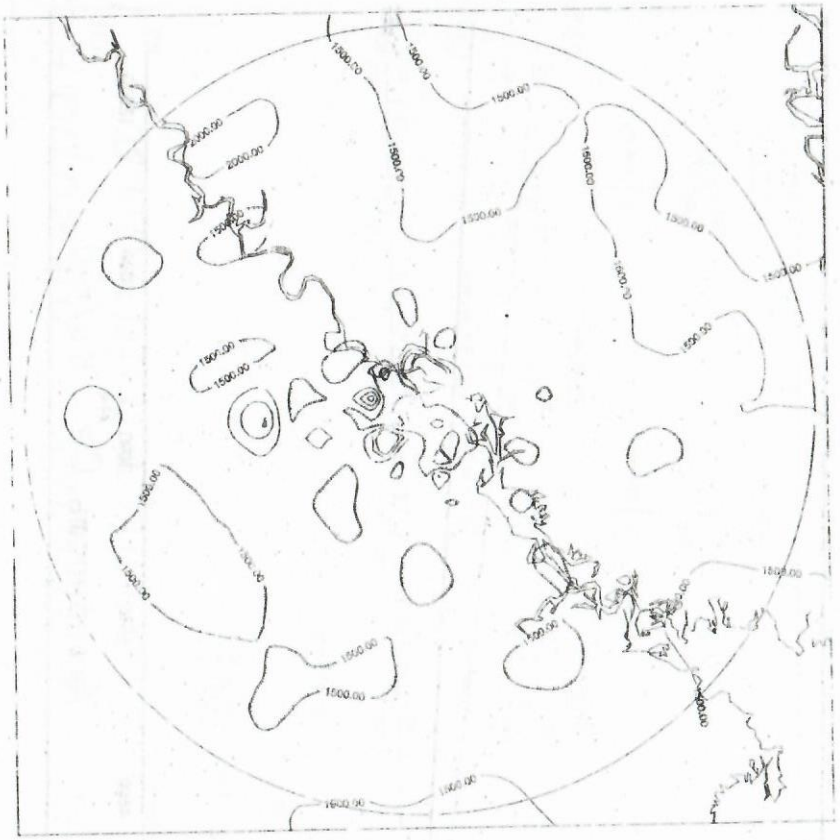
Коэффициенты накопления ТУЭ в растениях изменяются сильно в зависимости от типов почв, растений, условий произрастания и др. Указывается на общее свойство ТУЭ более интенсивно накапливаться в бобовых растениях, чем в злаковых и вегетативными органами, чем генеративными. Соотношение Pu/Am в растениях уменьшается по сравнению с почвой и поэтому поступление в организм человека через корни растений более значимо для амери-

ция, чем для плутония. Основное поступление Am-241 идет через картофель и овощи (95%) и вклад в общую дозу облучения человека на территориях, загрязненных вследствии аварии на ЧАЭС, может достигнуть 50% и более. Вследствие эффективного и быстрого поглощения Am и Cm взвешенным материалом и быстрого оседания (быстрее чем плутония) на дно водных бассейнов, основное их количество находится в донных отложениях (по сравнению с биотой и водой). Указывается на предполагаемую более высокую подвижность в гидросфере ТУЭ в высших окисленных состояниях. Поглощение гидробионтами Am сильнее, чем Pu. Миграция как в водных так и в почвенных средах лесной и лесостепной зоны Am и Cm будет определяться неизотопными носителями: железо, кальций, алюминий, марганец.

Из вышеуказанного видно, что важнейшим альфаизлучателем в окружающей среде в настоящее время и в ближайшие две тысячи лет станет Am-241. Его роль в радиогеохимических процессах и формировании дозовых нагрузок для человека будет в ближайшее время возрастать, в том числе и по сравнению с плутонием. Для этого есть ряд причин:

- радиационная стимуляция физико-химических процессов в системе "горячая" частица - среда в первую очередь из-за ядерных превращений;
- более быстрая миграция америция (по отношению к плутонию) в почвенном разрезе и водных средах;
- более интенсивное (по сравнению с плутонием) усвоение сельхозрастениями (в основном это касается картофеля и овощей) и поступление его в организм человека. Все это может повлечь пересмотр границ зоны отчуждения, а на окружающих ее территориях изменение состава производимой сельхозпродукции.

Карта изолиний соотношения активностей
Ce-144 к Pu-239+Pu-240. Пересчет на 26. 4. 86


1000.00
1500.00
2000.00
1500.00
1500.00
1500

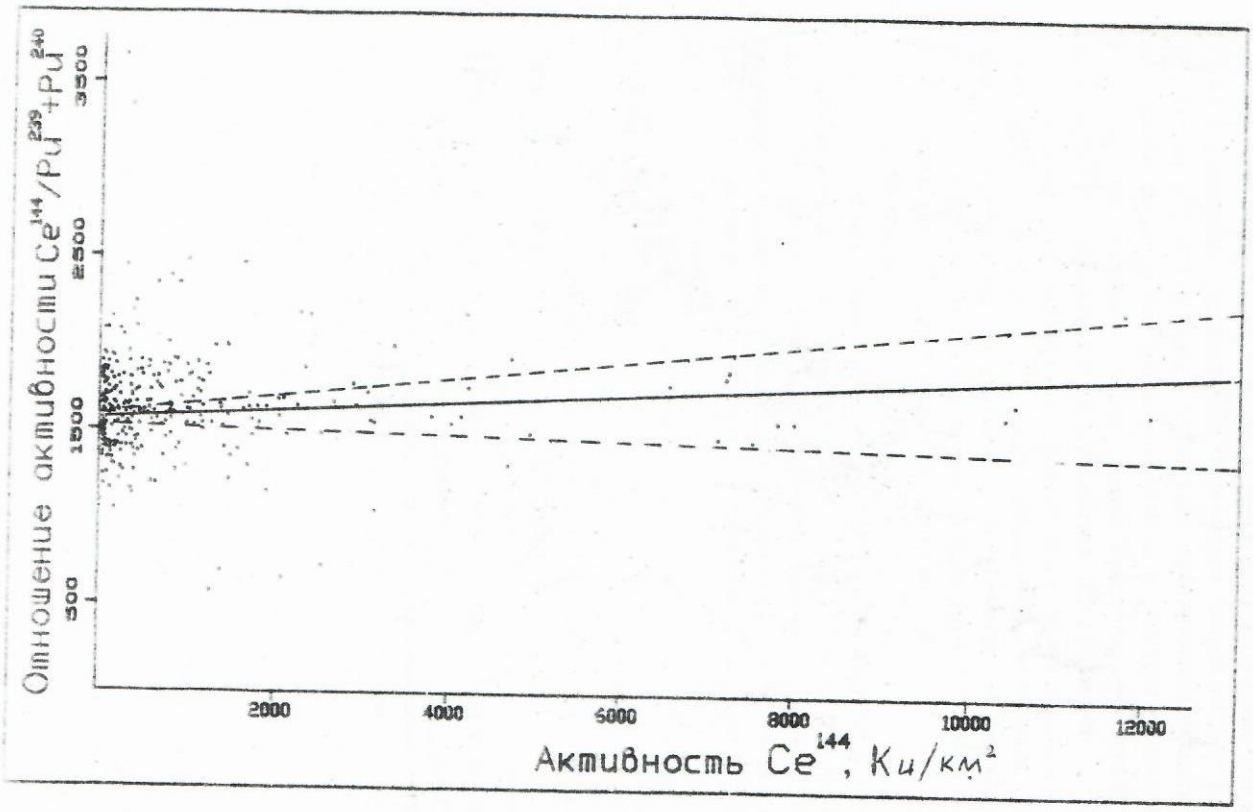

Отношение активности $Ce^{144}/Pu^{239}+Pu^{240}$
500
1500
2500
3500
2000
4000
6000
8000
10000
12000
Активность Ce^{144}, Ки/км^2

Рис. 2.

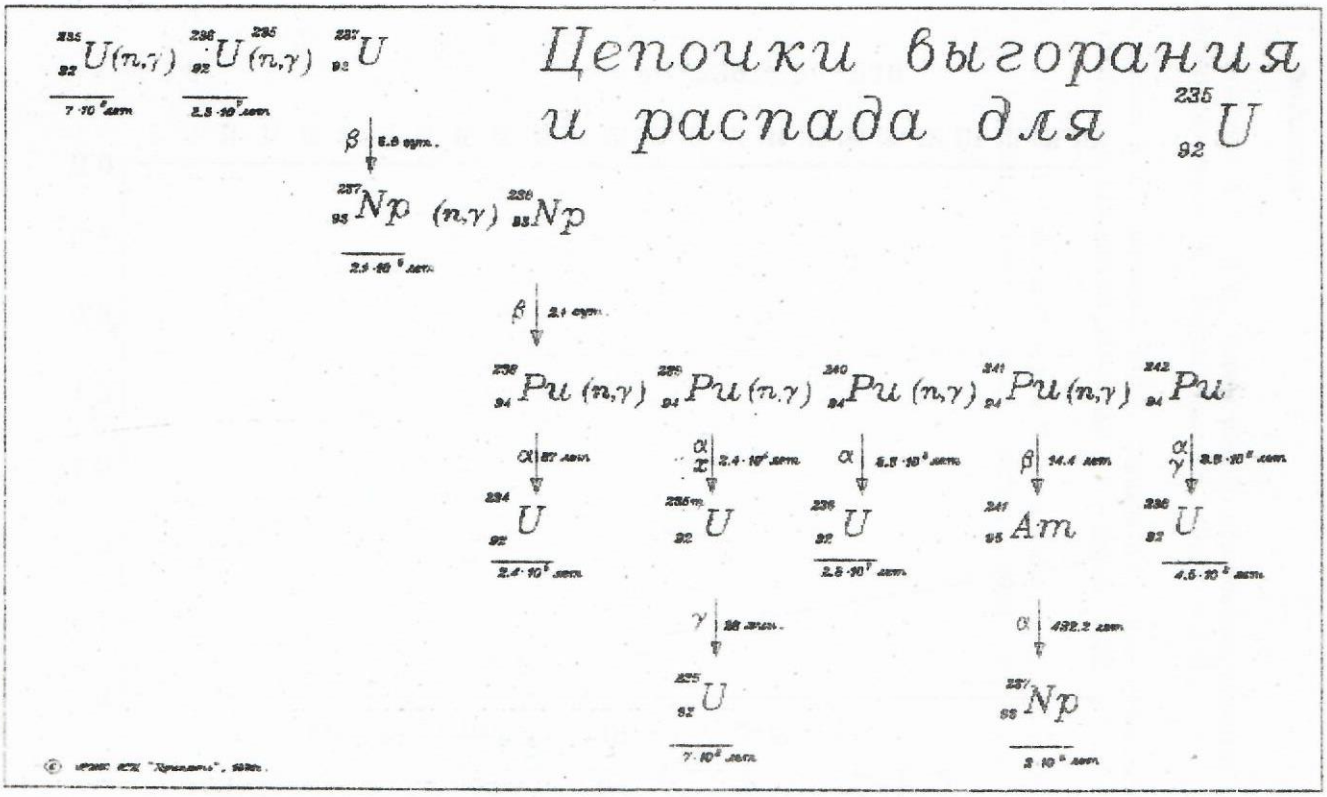
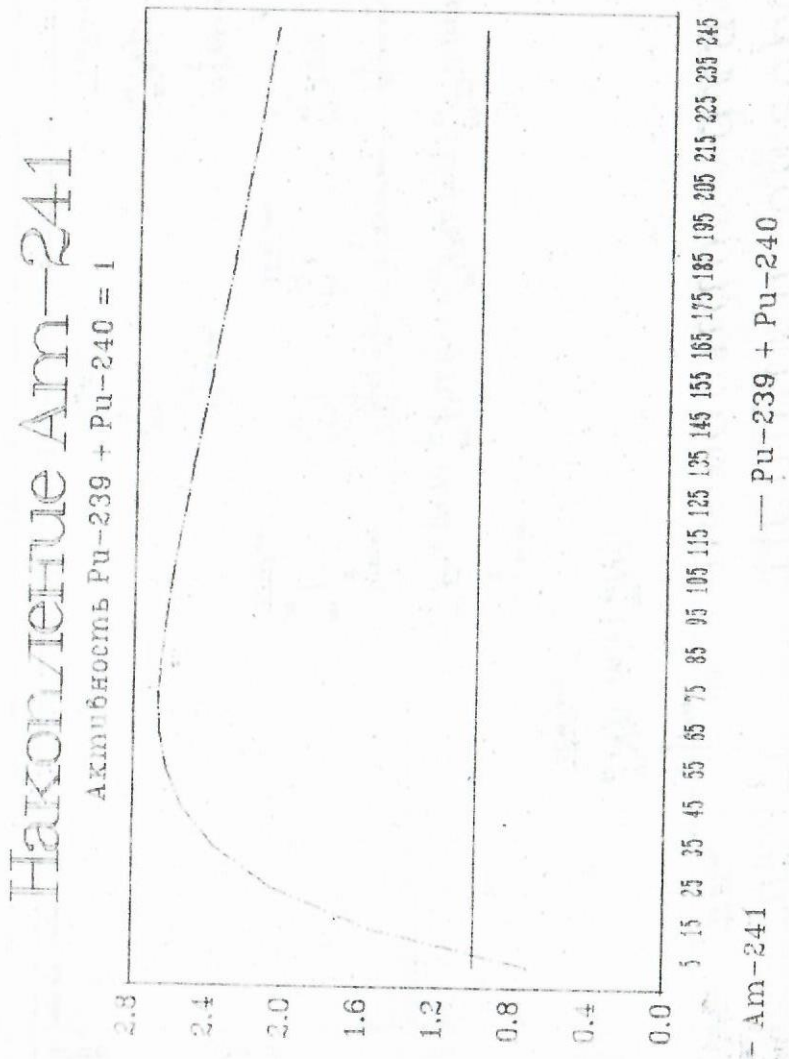

Цепочки выгорания и распада для $^{235}_{92}U$
$^{235}_{92}U(n,\gamma)$ $^{236}_{92}U(n,\gamma)$ $^{237}_{92}U$
β 6.8 сут.
$^{237}_{93}Np$ (n,γ) $^{238}_{93}Np$
β 2.1 сут.
$^{238}_{94}Pu(n,\gamma)$ $^{239}_{94}Pu(n,\gamma)$ $^{240}_{94}Pu(n,\gamma)$ $^{241}_{94}Pu(n,\gamma)$ $^{242}_{94}Pu$
α 87 лет
α $2.4\cdot10^4$ лет
α $6.5\cdot10^3$ лет
β 14.4 лет
α $3.8\cdot10^5$ лет
$^{234}_{92}U$
$^{235m}_{92}U$
$^{236}_{92}U$
$^{241}_{95}Am$
$^{238}_{92}U$
γ 26 мин.
α 432.2 лет
$^{235}_{92}U$
$^{237}_{93}Np$

Рис. 3.



Литература:

1. Герасимов А.С. и др. Справочник по образованию нуклидов в ядерных реакторах. М.: Энергоатомиздат, 1989г. - 575 с.

2. Маслов В.П., Мясников В.П., Данилов В.Г. Математическое моделирование аварийного блока ЧАЭС. М.: Наука, 1987. - 144с.

3. Kirchner G., Noack C. Core Historu and Nuclide Inventory of the Time of Accident. - Nucl. Safety, 1988, vol. 29(1) p.1-5.