

СПЕКТРОСКОПИЯ РАДИОНУКЛИДОВ В ТОПЛИВОСОДЕРЖАЩИХ МАТЕРИАЛАХ ОБЪЕКТА «УКРЫТИЕ»

Проведены а, β, γ-спектроскопические исследования образцов топливосодержащих материалов, отобранных внутри 4-го энергоблока ЧАЭС. Измерены изотопные отношения для Cs, Eu, Pu, Am и Cm и определено выгорание топлива в изучаемых образцах. Обнаружено расхождение теоретических оценок по наработке для всех радионуклидов выше Am-241. Наблюдается систематическое расхождение значений выгорания, определенного по изотопам Cs, по сравнению с другими радионуклидами. Обсуждаются причины таких различий.

Ключевые слова: радионуклиды, изотопные отношения, горячие частицы.

Проведено дослідження зразків паливоємісних матеріалів, відібраних всередині 4-го енергоблока ЧАЕС. Виміряно ізотопні співвідношення для Cs, Eu, Pu, Am і Cm і визначено вигорання палива в досліджуваних зразках. Виявлено систематичну розбіжність значень вигорання, визначеного за ізотопами Cs, у порівнянні з іншими радіонуклідами. Обговорюються причини таких розходжень.

Ключові слова: радіонукліди, ізотопні співвідношення

Samples of fuel-containing materials from inside of 4th ChNPP Unit are examined with α, β, γ-spectrometry. Isotope ratios for Cs, Eu, Pu, Am and Cm are measured. Fuel burning is defined in studied samples. Theoretical calculations differ from experimental results for all radionuclides above Am-241. Systematical discrepancy is observed in fuel burning defining with Cs in comparison with other radionuclides. Reasons for the discrepancy is discussed.

Key words: radionuclides, isotopes ratio, hot particles.

Исследование «горячих» частиц, отобранных внутри Объекта «Укрытие» (ОУ), в последнее время стало одной из актуальных задач. Это обусловлено тем, что из-за радиационного воздействия в местах протекания лавовых топливосодержащих материалов (ЛТСМ) идут интенсивные процессы деструкции на поверхности ЛТСМ. В результате этих процессов образуются десятки килограмм высокодисперсных аэрозолей с частицами размерами 60-300 нм, содержащие радионуклиды, характерные для облученного ядерного топлива. В связи с большими отверстиями на крыше ОУ эти аэрозоли являются дополнительным фактором загрязнения окружающей ЧАЭС территории. Для оценки радиоэкологической опасности этого явления необходимо сравнение данных об изотопных отношениях радионуклидов в составе ЛТСМ из ОУ и радионуклидов в пробах почвы, отобранных на прилегающей к ЧАЭС территории.

Отметим также, что во многих случаях выпадение «горячих частиц» в окружающую среду было растянуто во времени. Это может привести к появлению в одной пробе частиц с разным выгоранием топлива. Различное выгорание приводит к разному тепловыделению, что, в свою очередь, приводит к образованию топливо-

содержащих материалов разных модификаций. Разрушение таких «горячих частиц» может происходить с разной скоростью. Для изучения этих процессов нами предлагается исследовать соотношение активностей $^{134}_{\text{Cs}}$ и $^{154}_{\text{Eu}}$ в пробах, которые отбираются в ближней 5-км зоне ЧАЭС. Если возможно существование различных форм в одной и той же пробе, то тогда скорость деструкции частиц, а значит и скорость миграции, будут изменяться в зависимости от преобладания в почве той или иной топливной компоненты, что может проявляться в изотопных отношениях.

Знание относительной концентрации активностей нуклидов, таких как $^{241}_{\text{Am}}$, $^{243,244}_{\text{Cm}}$, по сравнению с изотопами плутония, позволяет сделать более точные оценки наработки трансурановых нуклидов, т.к. погрешность в расчетах трансурановых нуклидов, начиная с $^{241}_{\text{Am}}$, достигает 40-50 %. Именно такие исследования и были проведены в данной работе.

Методы экспериментов и результаты. Для исследований были отобраны «горячие» частицы из ОУ, частицы отбирались в местах, где протекали основные потоки лавы. «Горячие» частицы имели активность по $^{134}_{\text{Cs}}$ от 10^5 до 10^7 Бк/г. Масса частиц была порядка сотен мкг. Были выполнены измерения α, β, γ-спектрометрическими методами.

Основная часть γ -спектров изучалась с использованием антикомптоновского спектрометра с Гедетектором, имеющим входное бериллиевое окно и энергетическое разрешение 1,9 кэВ на γ -линиях ^{60}Co и 350 эВ на γ 59 кэВ ^{241}Am . Эффективность этого спектрометра составляет 20 % по сравнению с NaI(Tl)-детектором размерами $3'' \times 3'$. Подавление комптоновского фона в низкоэнергетической области было не меньше чем в 8 раз. Это позволило нам надежно идентифицировать активности слабоинтенсивных нуклидов.

На рис. 1 приведен фрагмент измеренного γ -спектра в низкоэнергетической области для одного из образцов топливосодержащих материалов (ТСМ). Требование высокой точности определения соотношения $^{134,137}\text{Cs}$, $^{154,155}\text{Eu}$ и выхода L_x (U, Np) обусловило необходимость обработки γ -спектров с использованием специализированного программного обеспечения. Для этого была адаптирована программа для обработки сложных γ -спектров [2]. В данном случае основное внимание было уделено выбору формы линий,

т. к. многие измерения выполнялись при значительных перегрузках спектрометра. Это приводило к значительному изменению формы γ -линий. Программа предусматривает использование одной из одиночных γ -линий в качестве «табличной». Эта «табличная» γ -линия вписывалась в изучаемый фрагмент спектра. Так как искажение формы γ -линии присутствует как в «табличной» линии, так и в изучаемых линиях, то автоматически искажение формы γ -линии исключается.

Из полученных γ -спектров (рис. 1) видно, что в образцах ЛТСМ, отобранных из 4-го энергоблока ЧАЭС в настоящее время наблюдаются активности ^{137}Cs , $^{154,155}\text{Eu}$, ^{243}Am , ^{243}Cm и L_x излучение U, Np. В области 70-80 кэВ присутствует мультиплет γ -линий с энергиями 73,4 кэВ, 74,4 кэВ, 76,6 кэВ и 77,1 кэВ. Эти γ -линии были нами идентифицированы как пики суммирования L_x -излучения Np с γ 59 кэВ: γ 59 + L_a , γ 59 кэВ + L_β , γ 74,6, 77,1 кэВ ^{243}Am и пик вылета γ 86 кэВ – $K_a\text{Ge}$. Число отсчетов в γ 74,6 кэВ составило $94 \cdot 10^3$, т. е. статистическая ошибка не превышала 2 %.

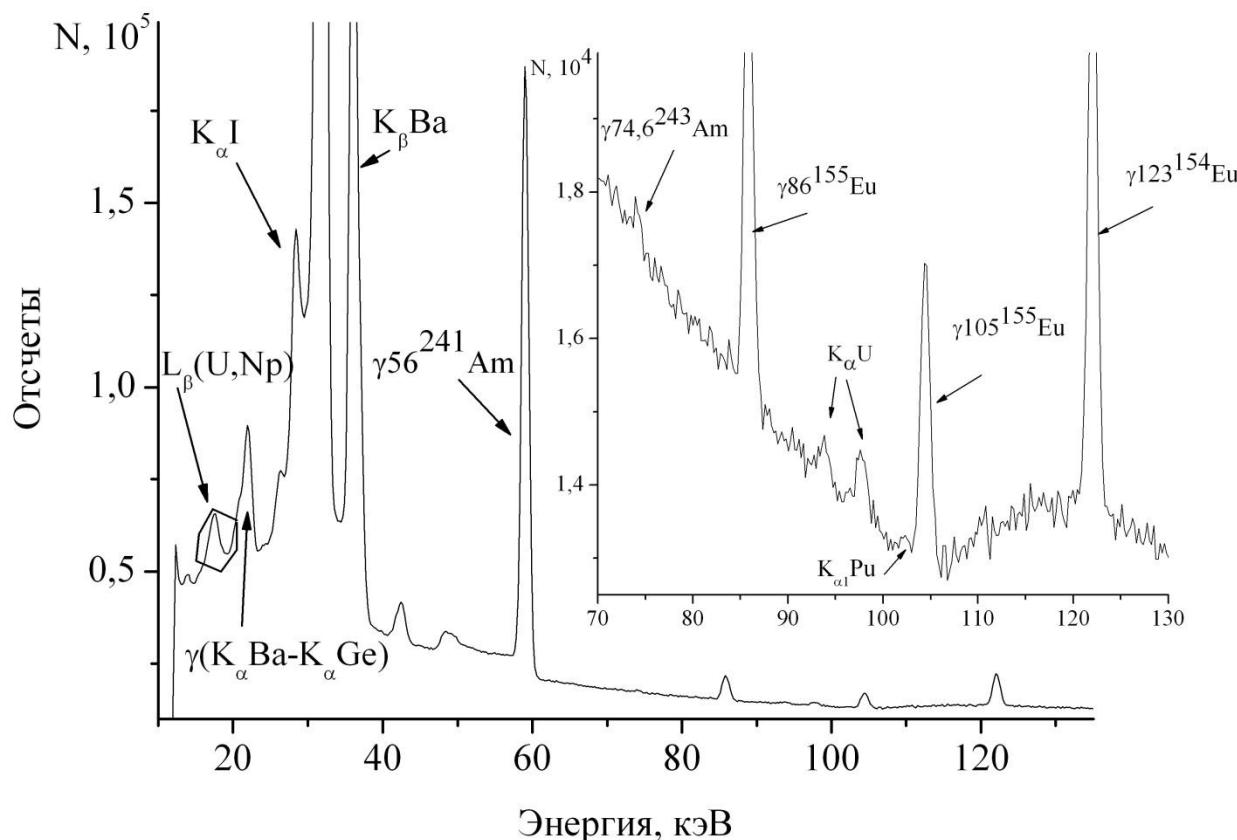
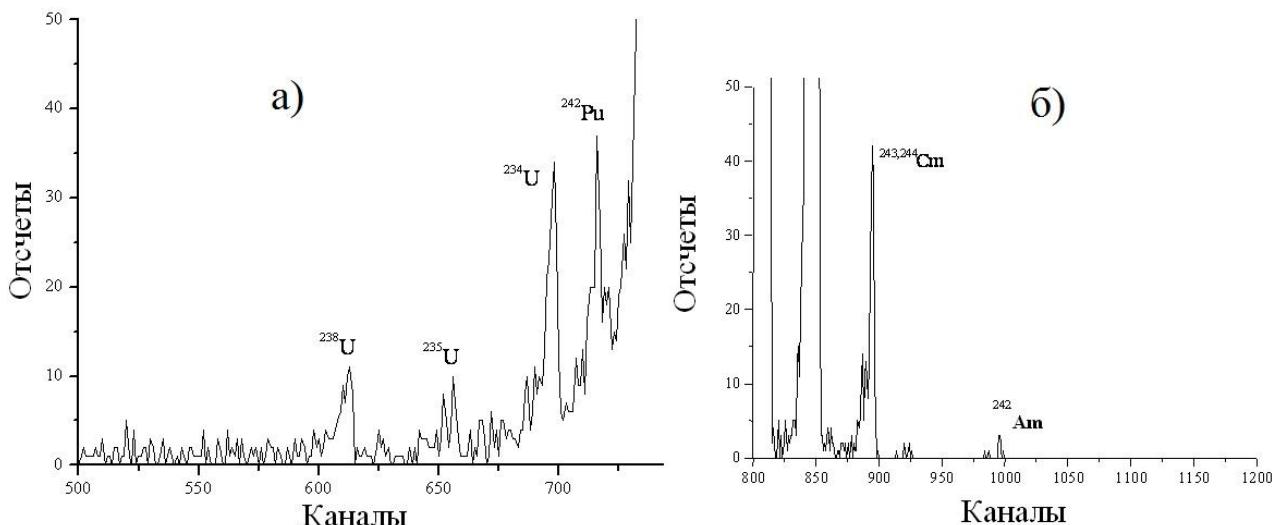


Рис. 1 Фрагмент γ -спектра, измеренного на антикомптоновском спектрометре.

Здесь хотелось бы отметить, что при измерении γ -спектров на обычном спектрометре со свинцовой защитой всегда в γ -спектре присутствует K_a -излучение Pb. Энергии K_a -группы равны 72,8 и 75,0 кэВ, т. е. K_{a1} в пределах энергетического разрешения спектрометров в этой области не разделяется от γ 74,7 кэВ ^{243}Am и это является, в первую очередь, причиной отсутствия достоверных данных о ^{243}Am из измерений на обычных спектрометрах.

В нашей установке с антикомптоновским спектрометром используется комбинированная защита, обеспечивающая практическое полное отсутствие $K_a\text{Pb}$. Число отсчетов за 5-6 дней в области 75 кэВ не превышает $(3-5) \cdot 10^3$. Примерно такое же время мы измеряли γ -спектр указанной частицы.

Нами были также проведены радиохимические исследования. Для этого производили перевод радионуклидов в раствор путем кислотного вскрытия «горячих» частиц с применением концентрированных HF, HNO₃ и HCl в тефлоновом стакане. После полного растворения «горячих частиц», полученный раствор упаривался до влажных солей и производилось электролитическое осаждение радионуклидов на диске из нержавеющей стали. Методом α -спектроскопии [3] был измерен изотопный состав α -излучателей. Измерения проводили на α -спектрометрах Alpha Analyst. На рис. 2 показаны фрагменты α -спектров.

Рис. 2. Фрагмент суммарного α -спектра: а) область U и ^{242}Pu ; б) область $^{243,244}\text{Cm}$ и ^{242}Am .

Использование этого метода дало возможность оценить изотопный состав α -излучателей в ТСМ. Как видно из этих спектров, кроме основных α -излучателей

$^{238-240}\text{Pu}$, ^{241}Am в ТСМ присутствуют следы $^{234,235,238}\text{U}$, ^{242}Pu , ^{242}Am , $^{243,244}\text{Cm}$. Полученные данные о концентрации радионуклидов в ТСМ приведены в таблице 1.

Таблица 1

Относительные активности радионуклидов в топливной частице

Изотоп	Гамма-спектрометрия	Изотоп	Альфа-спектрометрия
^{137}Cs	100	^{234}U	0,092(12)
^{134}Cs	0,036(2)	^{235}U	0,012(3)
^{154}Eu	1,75(9)	^{238}U	0,033(5)
^{155}Eu	0,51(3)	^{242}Pu	0,14(1)
^{241}Am	7,7(1)	$^{239,240}\text{Pu}$	59(3)
^{243}Am	0,014(1)	^{238}Pu	29(1)
^{243}Cm	0,018(1)	^{236}Pu	0,016(3)
		$^{241}\text{Pu}^*$	1110
		^{243}Am	0,20(2)
		^{241}Am	100
		^{243}Cm	0,23(2)
		^{244}Cm	2,1(2)
		^{242}Cm	0,13(2)

* бета спектрометрия

Обсуждение результатов. Для анализа необходимо выбирать образцы с одним и тем же выгоранием.

$$\begin{aligned} B(\text{Cs}) &= 24,2[A(\text{Cs})/A(\text{Cs})] - 1,2; \\ B(\text{Eu}) &= 30,1[A(\text{Eu})/A(\text{Eu})] - 11,1; \\ B(\text{Pu}) &= -4,12[A(\text{Pu})/A(\text{Pu})]^2 + 18,22[A(\text{Pu})/A(\text{Pu})] + 4,99. \end{aligned}$$

В таблице 2 приведены полученные данные о выгорании «горячих частиц» с минимальным и максимальным уровнями концентрации активностей. Хорошо видно, что наблюдается систематическое занижение

расчеты выгорания (B) нами определены по формулам [4]:

выгорания, определенного по изотопным отношениям $^{134,137}\text{Cs}$ на 2-3 МВт·сут,кг U, по сравнению с расчетами по Eu и Pu.

Таблица 2

Выгорание топлива, рассчитанное из изотопных отношений

№ пробы	Eu	Cs	Pu
«г. ч.» 1	12,6(05)	10,3(2)	12,9(2)
«г. ч.» 2	13,6(05)	9,7(3)	13,3(2)

Одной из причин такого расхождения может быть выбор периодов полураспада. В различных таблицах приводятся разные значения, отличающиеся друг от друга на 3-4 %. С учетом того, что с момента аварии

прошло 27 лет, эта ошибка может привести к значительным систематическим погрешностям. Важно также выбирать и данные о выходах γ -переходов из одних таблиц. Для того же ^{155}Eu выход по γ 86 кэВ в таблице

[5] равен 34 %, а в [6] – 30,7 %, т. е. значения отличаются друг от друга на 10-11 %.

Для однозначного выбора абсолютных выходов в ^{155}Eu мы провели изучение спектров ТСМ с большим выходом $^{154,155}\text{Eu}$ и было получено, что выход γ -лучей 86 кэВ равен $30,4 \pm 0,8$ %, т. е. совпадает с [6]. Поэтому в дальнейших оценках выгорания ядерные данные желательно использовать из таблицы [6].

Анализ данных об α -излучателях показывает значительные расхождения с теоретическими расчетами. Например, теоретическое значение для изотопного отношения $^{241,243}\text{Am}$ составляет величину $2,2 \cdot 10^{-3}$, т. е. завышено примерно в 1,5 раза, по сравнению с экспериментальными данными. В то же время сравнение активности ^{241}Am с суммарной активностью $^{239,240}\text{Pu}$ показывают, что в пределах точности измерений их соотношение совпадает с расчетными значениями.

Нами в γ -спектрах ряда образцов ТСМ наблюдается активность $K_{\alpha 1}$ – излучения Pu, обусловленное α -распадом ^{243}Cm . Это позволило существенно уточнить активность ^{244}Cm и ее соотношение с выходом $^{239,240}\text{Pu}$.

Экспериментальное значение и в этом случае оказалось заниженным, по сравнению с теоретическими расчетами, но в отличии от ^{243}Am в 2-3 раза, в зависимости от выгорания.

В α -спектре нами наблюдалась α -переходы принадлежащие распаду ^{242}Cm (рис. 2б). Учитывая, что $T_{1/2} \text{ Cm}=162$ дня, можно сделать вывод о том, что мы наблюдаем распад ^{242}Am с $T_{1/2} = 141$ год. Таким образом, мы наблюдаем цепочку $^{241,242,243}\text{Am}$, это будет использовано в дальнейших расчетах о наработках α -изотопов.

Нам бы хотелось также обратить внимание на соотношение ^{90}Sr и ^{137}Cs . Это соотношение значительно отличается от данных о концентрации ^{90}Sr в верхних слоях почвы. Например, для образца, спектр которого приведен на рис. 1, $A(^{137}\text{Cs}) = 5,8 \cdot 10^6$ Бк/обр., тогда как $A(^{90}\text{Sr}) = 15,6 \cdot 10^6$ Бк/обр. Как правило, в выпадениях вблизи ОУ выход ^{90}Sr в 4-5 раз меньше ^{137}Cs . Это может оказаться очень удобным способом оценки роли «свежих» выпадений в почвах, прилегающей к ОУ территории.

ЛІТЕРАТУРА

- Пазухин Э. М. Относительно выгорания ядерного топлива / Э. М. Пазухин [и др.] // Радиохимия. – 2000. – Т. 42, № 6. – С. 527–532.
- Вишневский И. Н. Атомно-ядерные эффекты в процессах внутренней конверсии гамма-лучей / И. Н. Вишневский, В. А. Желтоножский, А. М. Зелинский и др. // Сборник научных трудов ИЯИ, – Киев. – 1999. – С. 60–64.
- Лашко А. П. Комплексный анализ изотопного состава плутония в аварийном выбросе 4-го энергоблока ЧАЭС / А. П. Лашко [и др.] // Атомная энергия. – 2001. – Т. 91, Вып. 6. – С. 443–448.
- Боровой А. А. Соотношения изотопов плутония в зависимости от степени выгорания ядерного топлива / А. А. Боровой, Э. М. Пазухин // Радиохимия. – Т. 45. – № 2. – 2003. – С. 191–192.
- Lederer C. M. Table of Isotopes / C. M. Lederer, V. S. Shirley,.. – New York, 1978.
- Firestone R. B. The 8th edition of the Table of Isotopes / R. B. Firestone, V. S. Shirley C. M. Baglin [et al.] // CD-ROM. – 1996. Ver. 1.
- Желтоножская М. В. Исследование изотоповых отношений в почвенных разрезах 5-км зоны ЧАЭС / М. В. Желтоножская // Ядерная физика и энергетика. – 2009 – Т. 10, № 4 – С. 409–412.
- Бондарьков М. Д. Вертикальная миграция радионуклидов на территории чернобыльских полигонов / М. Д. Бондарьков, С. П. Гащак, М. В. Желтоножская и др. // Проблеми безпеки атомних електростанцій і Чорнобиля. – Вип. 6. – 2006 – С. 155–163.

Рецензенти: **Кутлахмедов Ю. О.**, д.б.н., професор Інституту клітинної біології та генетичної інженерії НАН України (м. Київ);
Петрук В. Г., д.х.н., професор Вінницького національного технічного університету (м. Вінниця).

© Бондарьков Д. М., Желтоножська М. В., Куліч Н. В.,
Ліпська А. І., Ніколаєв В. І., 2013

Дата надходження статті до редколегії 10.04.2013 р.

БОНДАРЬКОВ Дмитрій Михайлович – аспірант Інституту ядерних досліджень Національної академії наук України, м. Київ

Коло наукових інтересів: дослідження поведінки радіонуклідів у ґрунтах забруднених територій (у тому числі і в ЗВ ЧАЕС), визначення ефективних та біологічних періодів паливочищення для різних типів ґрунтів.

ЖЕЛТОНОЖСЬКА Марина Вікторівна – к.т.н., старший науковий співробітник відділу радіобіології і радіоекології Інституту ядерних досліджень Національної академії наук України, м. Київ

Коло наукових інтересів: дослідження поведінки радіонуклідів (особливо трансуранових) у ґрунтах забруднених територій (у тому числі і в ЗВ ЧАЕС), визначення ефективних та біологічних періодів напівочищення для різних типів ґрунтів.

КУЛІЧ Надія Владиславівна – науковий співробітник відділу структури ядра Інституту ядерних досліджень Національної академії наук України, м. Київ

Коло наукових інтересів: дослідження просторового та вертикального розподілу радіонуклідів у ґрунтах найбільш забрудненої частини Чорнобильської зони відчуження; визначення складу радіонуклідів у гарячих частинках.

ЛІПСЬКА Алла Іванівна – д.б.н., завідувач відділом радіобіології і радіоекології Інституту ядерних досліджень Національної академії наук України, м. Київ

Коло наукових інтересів: дослідження кінетики основних дозоутворюючих радіонуклідів в організмі тварин в натурних та лабораторних умовах; вивчення міграції радіонуклідів в ґрунтах ЗВ ЧАЕС та на інших радіаційнозабруднених територіях.

НИКОЛАЄВ Володимир Іванович – науковий співробітник відділу радіобіології і радіоекології Інституту ядерних досліджень Національної академії наук України, м. Київ

Коло наукових інтересів: радіоекологічний моніторинг із застосуванням інструментальних методів ядерної спектроскопії; визначення вмісту радіонуклідів в організмі дрібних тварин ЧЗВ.