

## СПЕКТРОСКОПИЯ РАДИОНУКЛИДОВ В ТОПЛИВОСОДЕРЖАЩИХ МАТЕРИАЛАХ ОБЪЕКТА «УКРЫТИЕ»

*Проведены  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$ -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 паливовмісних матеріалів, відібраних всередині 4-го енергоблоку 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  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$ -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 радиозоологической 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  $^{134,137}\text{Cs}$  и  $^{154,155}\text{Eu}$  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  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$ -спектрометрическими методами.

Основная часть  $\gamma$ -спектров изучалась с использованием антикомптоновского спектрометра с Ge-детектором, имеющим входное бериллиевое окно и энергетическое разрешение 1,9 кэВ на  $\gamma$ -линиях  $^{60}\text{Co}$  и 350 эВ на  $\gamma$  59 кэВ  $^{241}\text{Am}$ . 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  $\gamma$ -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  $\gamma$ -спектров с использованием специализированного программного обеспечения. Для этого была адаптирована программа для обработки сложных  $\gamma$ -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  $\gamma$ -линий. Программа предусматривает использование одной из одиночных  $\gamma$ -линий в качестве «табличной». Эта «табличная»  $\gamma$ -линия вписывалась в изучаемый фрагмент спектра. Так как искажение формы  $\gamma$ -линии присутствует как в «табличной» линии, так и в изучаемых линиях, то автоматически искажение формы  $\gamma$ -линии исключается.

Из полученных  $\gamma$ -спектров (рис. 1) видно, что в образцах ЛТСМ, отобранных из 4-го энергоблока ЧАЭС, в настоящее время наблюдаются активности  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{154,155}\text{Eu}$ ,  $^{243}\text{Am}$ ,  $^{243}\text{Cm}$  и  $L_x$  излучение U, Np. В области 70-80 кэВ присутствует мультиплет  $\gamma$ -линий с энергиями 73,4 кэВ, 74,4 кэВ, 76,6 кэВ и 77,1 кэВ. Эти  $\gamma$ -линии были нами идентифицированы как пики суммирования  $L_x$ -излучения Np с  $\gamma$ 59 кэВ:  $\gamma$ 59 +  $L_{\alpha}$ ,  $\gamma$ 59 кэВ +  $L_{\beta}$ ,  $\gamma$ 74,67  $^{243}\text{Am}$  и пик вылета  $\gamma$ 86 кэВ –  $K_{\alpha}\text{Ge}$ . Число отсчетов в  $\gamma$ 74,6 кэВ составило  $94 \cdot 10^3$ , т.е. статистическая ошибка не превышала 2 %.

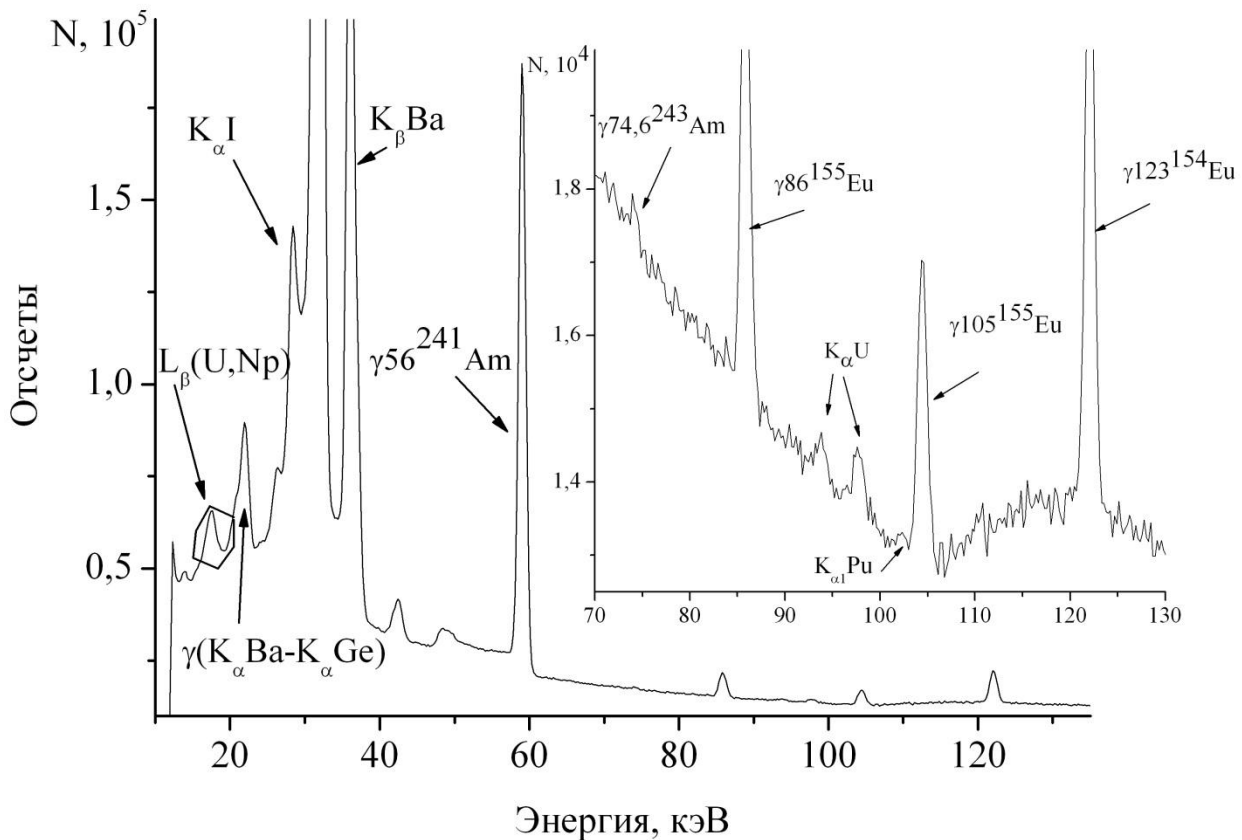


Рис. 1 Фрагмент  $\gamma$ -спектра, измеренного на антикомптоновском спектрометре.

Здесь хотелось бы отметить, что при измерениях  $\gamma$ -спектров на обычном спектрометре со свинцовой защитой всегда в  $\gamma$ -спектре присутствует  $K_{\alpha}$ -излучение Pb. Энергии  $K_{\alpha}$ -группы равны 72,8 и 75,0 кэВ, т.е.  $K_{\alpha 1}$  в пределах энергетического разрешения спектрометров в этой области не разделяется от  $\gamma$ 74,7 кэВ  $^{243}\text{Am}$  и это является, в первую очередь, причиной отсутствия достоверных данных о  $^{243}\text{Am}$  из измерений на обычных спектрометрах.

В нашей установке с антикомптоновским спектрометром используется комбинированная защита, обеспечивающая практически полное отсутствие  $K_{\alpha}\text{Pb}$ . Число отсчетов за 5-6 дней в области 75 кэВ не превышает  $(3-5) \cdot 10^3$ . Примерно такое же время мы и измеряли  $\gamma$ -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, HNO<sub>3</sub> 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  $\alpha$ -спектроскопии [3] был измерен изотопный состав  $\alpha$ -излучателей. Измерения проводили на  $\alpha$ -спектрометрах Alpha Analyst. На рис. 2 показаны фрагменты  $\alpha$ -спектров.

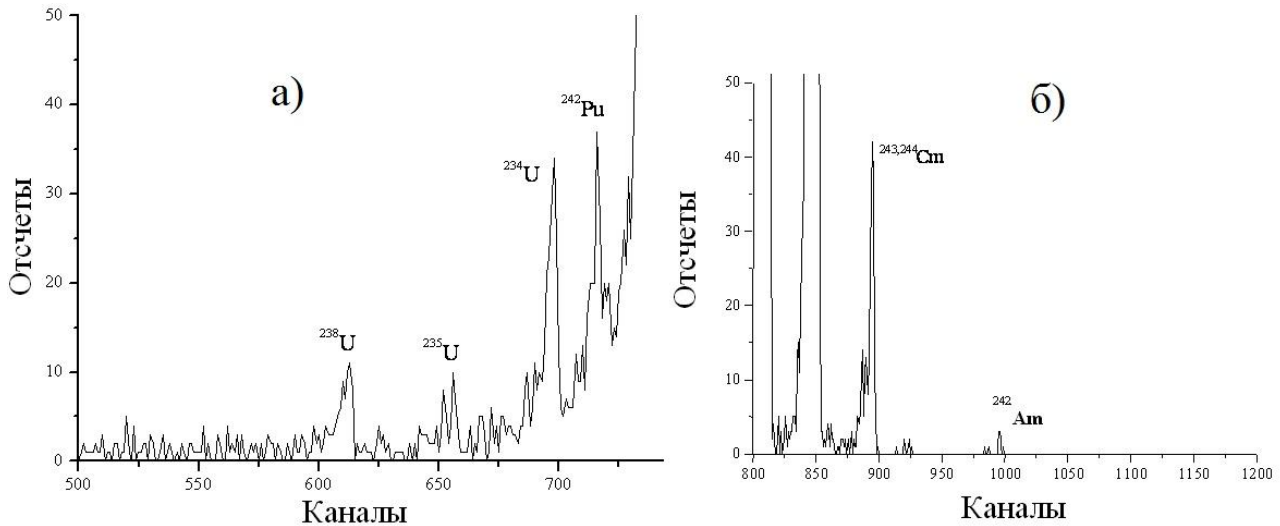


Рис. 2. Фрагмент суммарного  $\alpha$ -спектра: а) область U и  $^{242}\text{Pu}$ ; б) область  $^{243,244}\text{Cm}$  и  $^{242}\text{Am}$ .

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

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

\* бета спектрометрия

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

Расчеты выгорания (В) нами определены по формулам [4]:

$$B(\text{Cs}) = 24,2[A(^{134}\text{Cs}) / A(^{137}\text{Cs})] - 1,2;$$

$$B(\text{Eu}) = 30,1[A(^{154}\text{Eu}) / A(^{155}\text{Eu})] - 11,1;$$

$$B(\text{Pu}) = -4,12[A(^{238}\text{Pu}) / A(^{238,240}\text{Pu})]^2 + 18,22[A(^{238}\text{Pu}) / A(^{238,240}\text{Pu})] + 4,99.$$

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

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  $\gamma$ -переходов из одних таблиц. Для того же  $^{155}\text{Eu}$  выход по  $\gamma 86$  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  $^{155}\text{Eu}$  мы провели изучение спектров ТСМ с большим выходом  $^{154,155}\text{Eu}$  и было получено, что выход  $\gamma 86$  кэВ равен  $30,4 \pm 0,8$  %, т. е. совпадает с [6]. Поэтому в дальнейших оценках выгорания ядерные данные желательнее использовать из таблицы [6].

Анализ данных об  $\alpha$ -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  $^{241}\text{Am}$  с суммарной активностью  $^{239,240}\text{Pu}$  показывают, что в пределах точности измерений их соотношение совпадает с расчетными значениями.

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

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

В  $\alpha$ -спектре нами наблюдались  $\alpha$ -переходы принадлежащие распаду  $^{242}\text{Cm}$  (рис. 26). Учитывая, что  $T_{1/2}\text{Cm}=162$  дня, можно сделать вывод о том, что мы наблюдаем распад  $^{242}\text{Am}$  с  $T_{1/2} = 141$  год. Таким образом, мы наблюдаем цепочку  $^{241,242,243}\text{Am}$ , это будет использовано в дальнейших расчетах о наработках  $\alpha$ -нуклидов.

Нам бы хотелось также обратить внимание на соотношение  $^{90}\text{Sr}$  и  $^{137}\text{Cs}$ . Это соотношение значительно отличается от данных о концентрации  $^{90}\text{Sr}$  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  $^{90}\text{Sr}$  в 4-5 раз меньше  $^{137}\text{Cs}$ . Это может оказаться очень удобным способом оценки роли «свежих» выпадений в почвах, прилегающей к ОУ территории.

## ЛИТЕРАТУРА

1. Пазухин Э. М. Относительно выгорания ядерного топлива / Э. М. Пазухин [и др.] // Радиохимия. – 2000. – Т. 42, № 6. – С. 527–532.
2. Вишневецкий И. Н. Атомно-ядерные эффекты в процессах внутренней конверсии гамма-лучей / И. Н. Вишневецкий, В. А. Желтоножский, А. М. Зелинский и др. // Сборник научных трудов ИЯИ, – Киев. – 1999. – С. 60–64.
3. 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.
4. 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.
5. Lederer C. M. Table of Isotopes / C. M. Lederer, V. S. Shirley. – New York, 1978.
6. 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.
7. Желтоножская М. В. Исследование изотопных соотношений в почвенных разрезах 5-км зоны ЧАЭС / М. В. Желтоножская // Ядерная физика и энергетика. – 2009 – Т. 10, № 4 – С. 409–412.
8. Бондарьков М. Д. Вертикальная миграция радионуклидов на территории чернобыльских полигонов / М. Д. Бондарьков, С. П. Гашак, М. В. Желтоножская и др. // Проблемы 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., Липська 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 паливоочищення 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.

**ЛИПСЬКА 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.

**НКОЛАСЬ 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.