

## ОПРЕДЕЛЕНИЕ СОДЕРЖАНИЯ ИЗОТОПОВ ПЛУТОНИЯ В ЧЕРНОБЫЛЬСКИХ ОБРАЗЦАХ ПО ХАРАКТЕРИСТИЧЕСКОМУ L<sub>x</sub>-ИЗЛУЧЕНИЮ УРАНА

М. Д. Бондарьков<sup>1</sup>, М. В. Желтоножская<sup>2</sup>, А. М. Максименко<sup>1</sup>, Л. В. Садовников<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Международная радиэкологическая лаборатория Чернобыльского центра, Славутич

<sup>2</sup>Институт ядерных исследований НАН Украины, Киев

Предложен метод определения содержания  $\alpha$ -излучающих изотопов плутония по характеристическому L<sub>x</sub>-излучению урана в образцах окружающей природной среды. Проведено сравнение описанного метода со стандартным радиохимическим определением изотопов плутония для проб грунта из "Рыжего леса". Показано, что наблюдается хорошая корреляция результатов, полученных обоими методами.

### Введение

Стандартное определение содержания изотопов плутония в исследуемых образцах требует длительной и дорогостоящей радиохимической процедуры и это существенно ограничивает проведение исследований о поведении плутония в окружающей среде, когда необходимо провести измерения большого количества образцов с приблизительно одинаковым и известным соотношением изотопов плутония. Такая задача возникает, например, при изучении загрязненности отдельных участков "Рыжего леса" изотопами плутония.

Что касается <sup>241</sup>Pu, то поскольку примерно 95 % имеющегося в образцах <sup>241</sup>Am образовалось в результате  $\beta$ -распада <sup>241</sup>Pu [1, 2], оценить содержание <sup>241</sup>Pu легко по результатам  $\gamma$ -спектрометрии <sup>241</sup>Am. В то же время определение содержания  $\alpha$ -излучающих изотопов <sup>238-240</sup>Pu предлагается проводить по исследованию характеристического L<sub>x</sub>-излучения урана. Реализация метода предполагает наличие полупроводниковых спектрометров с бериллиевым окном и знаний о корректном учете самопоглощения мягкого рентгеновского излучения в образце.

### Методика эксперимента

Как известно [3], в результате  $\alpha$ -распада изотопов плутония с вероятностью около 25 % возбуждается ряд низкоэнергетических состояний соответствующих изотопов урана с энергией, меньшей энергии связи K-электронов (см., например, на схеме распада <sup>238</sup>Pu уровень 43,5 кэВ на рис. 1).

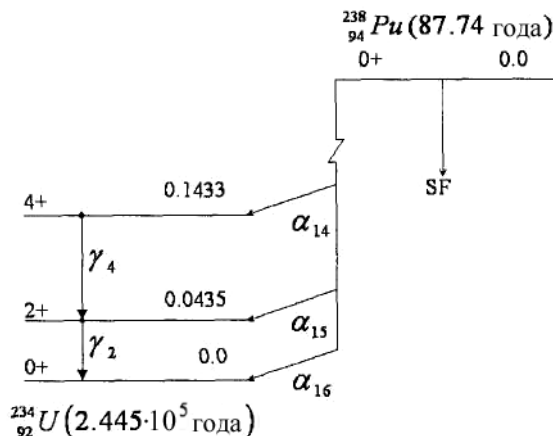


Рис. 1. Фрагмент схемы распада <sup>238</sup>Pu.

Уровни с энергией, близкой к вышеуказанной, заселяются также при распаде  $^{239,240}\text{Pu}$  (51 и 45 кэВ соответственно). Распад этих состояний происходит посредством внутренней конверсии  $\gamma$ -лучей с последующим испусканием характеристического рентгеновского излучения с энергией, лежащей в диапазоне 13 - 23 кэВ. На рис. 2 показан соответствующий фрагмент спектра образца почвы из "Рыжего леса", измеренный с помощью детектора из сверхчистого германия объемом 1 см с бериллиевым окном и разрешением 300 эВ на линии 17 кэВ.

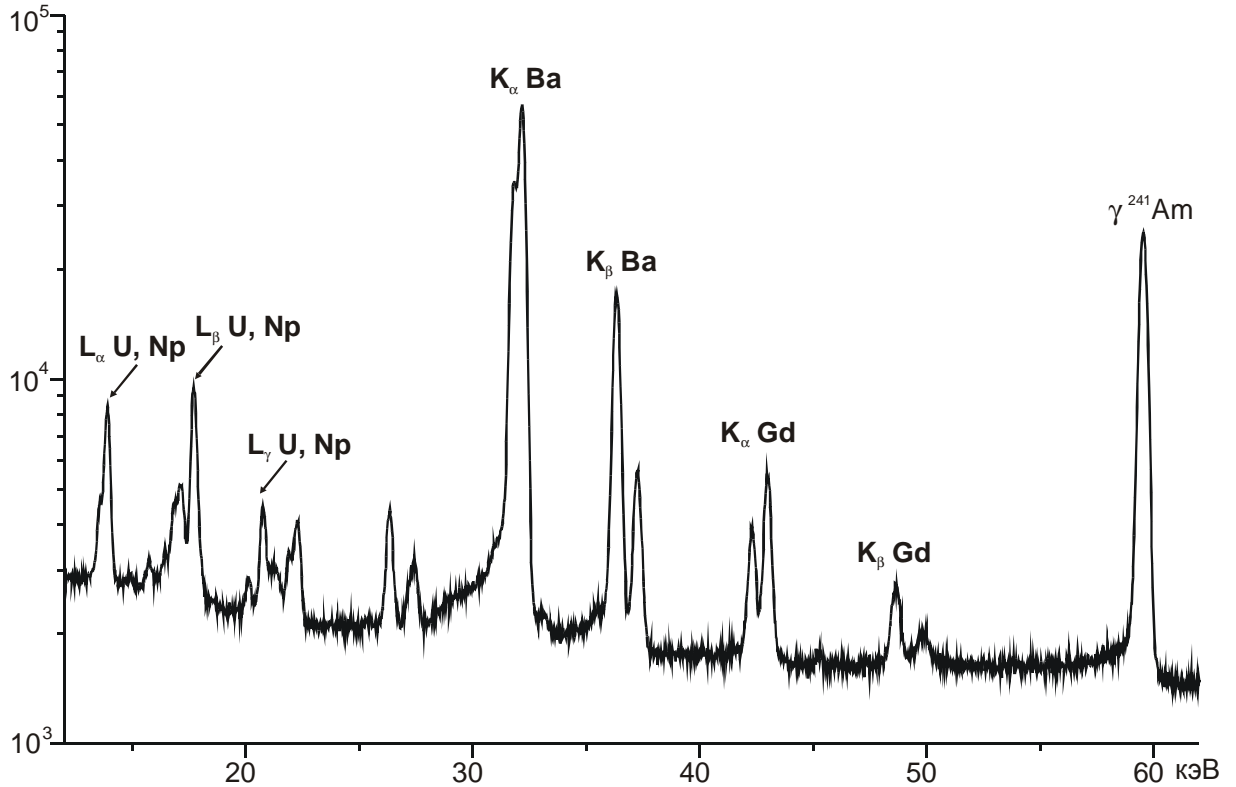


Рис. 2. Фрагмент спектра образца почвы из "Рыжего леса", измеренного детектором из сверхчистого германия объемом 1 см<sup>3</sup>.

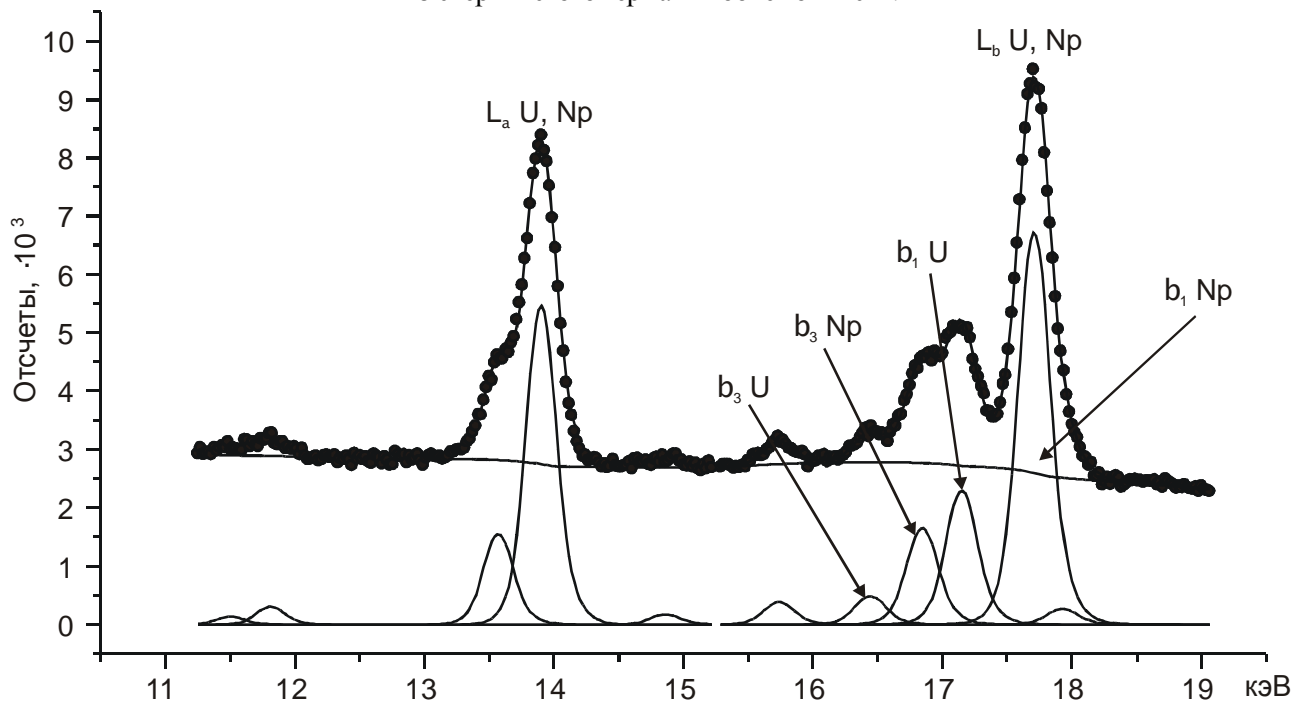


Рис. 3. Разложение фрагмента спектра образца почвы из "Рыжего леса", измеренного детектором из сверхчистого германия объемом 1 см<sup>3</sup>, на компоненты.

Высокое разрешение детектора и применение метода обработки экспериментального спектра вписыванием в него "приборной линии" [4], измеренной на этом же детекторе, позволяет совершенно однозначно и с хорошей точностью ( $\approx 5\%$ ) разделить L-группы нептуния, сопутствующие распаду  $^{241}\text{Am}$ , и L-группы урана, сопутствующие  $\alpha$ -распаду изотопов плутония (рис. 3). Вероятности заселения низкоэнергетических состояний и коэффициенты флуоресцентного выхода рентгеновского излучения хорошо известны. Используя калибровочные источники можно также напрямую измерить выход  $L_{\beta}$ - и  $L_{\alpha}$ -групп от изотопов плутония чернобыльского происхождения. Наши измерения показали, что соответствующие интенсивности рентгеновского излучения на распад составляют (%):

$$I(L_{\beta}) = 5,2 \pm 0,2, \quad (1)$$

$$I(L_{\alpha}) = 3,9 \pm 0,2. \quad (2)$$

Таким образом, измерив интенсивность рентгеновского излучения, легко получить содержание плутония в образце. Измеряемый образец должен быть достаточно тонкий, чтобы можно было не учитывать самопоглощение рентгеновского излучения в образце. Однако использование тонких образцов и детектора с высоким разрешением и, соответственно, малой эффективностью регистрации  $\gamma$ -излучения приводит к увеличению времени измерения. При необходимости измерения большого количества однотипных проб экспрессность указанного метода может быть существенно увеличена за счет двух следующих факторов.

Во-первых, можно использовать достаточно толстые образцы. При этом для корректного учета самопоглощения мягкого рентгеновского излучения в образце следует воспользоваться следующим обстоятельством. Чернобыльские образцы содержат, как правило, значительное количество  $^{137}\text{Cs}$ . Распад  $^{137}\text{Cs}$  приводит к возбуждению изомерного состояния 661 кэВ  $^{137}\text{Ba}$  и последующего испускания характеристического K $\alpha$ -излучения бария ( $E_{K\alpha} = 32 - 37$  кэВ). Коэффициент самопоглощения для L $\alpha$ -излучения урана можно вычислить, исходя из измерений интенсивности рентгеновского K $\alpha$ -излучения бария и сопутствующего более жесткого  $\gamma$ -излучения с энергией 661 кэВ, самопоглощение для которого несущественно. Полученный коэффициент самопоглощения используется для определения содержания изотопов плутония по результатам измерения интенсивности рентгеновского L $\alpha$ -излучения урана.

Во-вторых, можно использовать детекторы с большим объемом. На рис. 4 приведен фрагмент спектра того же образца почвы из "Рыжего леса", что и на рис. 2, но измеренного детектором из сверхчистого германия и объемом 150 см<sup>3</sup>.

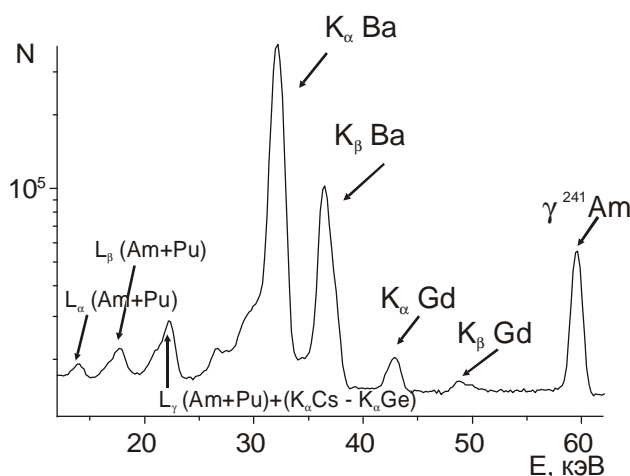


Рис. 4. Фрагмент спектра образца почвы из "Рыжего леса", измеренного детектором большого объема.

Очевидно, что ухудшившееся разрешение не позволяет разделить ни  $L_{\beta}$ -, ни  $L_{\alpha}$ -группы, сопутствующие распаду плутония и америция, но поскольку соотношения интенсивности рентгеновского излучения нептуния, возникающего в результате распада  $^{241}\text{Am}$ , и  $\gamma$ -линии 59 кэВ  $^{241}\text{Am}$  не зависят от используемого детектора, а являются характеристикой распада изотопа, то измерив это соотношение один раз с хорошей точностью на детекторе с высоким разрешением (назовем такое соотношение калибровочным), можно использовать его для измерений на любом детекторе. При этом вклад, например  $L_{\beta}$ -группы, связанной с распадом америция  $I(L_{\beta})_{\text{Am}}$ , в суммарный неразрешаемый пик рентгена америция и плутония (см. рис. 4) легко вычислить, исходя из соотношения

$$I(L_{\beta})_{\text{Am}} = I(\gamma 59) \cdot I(L_{\beta})_{\text{калибр}} / I(\gamma 59)_{\text{калибр}}, \quad (3)$$

где  $I(L_{\beta})_{\text{калибр}}/I(\gamma 59)_{\text{калибр}}$  - соотношение интенсивностей  $L_{\beta}$ -группы и  $\gamma$ -линии 59 кэВ, измеренное на калибровочном детекторе;  $I(\gamma 59)$  - интенсивность  $\gamma$ -линии 59 кэВ, измеренная на детекторе с большим объемом. Вычитая из суммарного пика  $I(L_{\beta})_{\text{U,Np}}$  вклад рентгена, связанного с распадом америция (3), мы получаем интенсивность  $I(L_{\beta})_{\text{U}}$ , связанную с распадом  $\alpha$ -излучающих изотопов плутония, и с учетом выхода  $L_{\beta}\text{U}$  (1) получаем суммарную активность  $^{238-240}\text{Pu}$  в исследуемом образце. Точность предлагаемого метода 10 - 15 % для активностей свыше 100 Бк и 20 - 30 % для активностей меньше 100 Бк; чувствительность 3 - 4 Бк для почвы из "Рыжего леса". Данным методом нами измерено около 1000 образцов.

Для контроля предлагаемой методики было проведено определение суммарной  $\alpha$ -активности  $^{238-240}\text{Pu}$  в 24 пробах грунта из "Рыжего леса" стандартными радиохимическими методами с трассером  $^{242}\text{Pu}$ . На радиохимию были отобраны пробы как с поверхностных слоев, так и по глубине до 30 см. На рис. 5 представлена корреляция результатов определения содержания  $^{238-240}\text{Pu}$  в образцах почвы из "Рыжего леса", полученных обоими методами. В таблице представлены те же результаты в цифровой форме. Видна прекрасная корреляция результатов обоих методов. Отметим также, что масса образцов при этом изменялась от ~10 до 100 г.

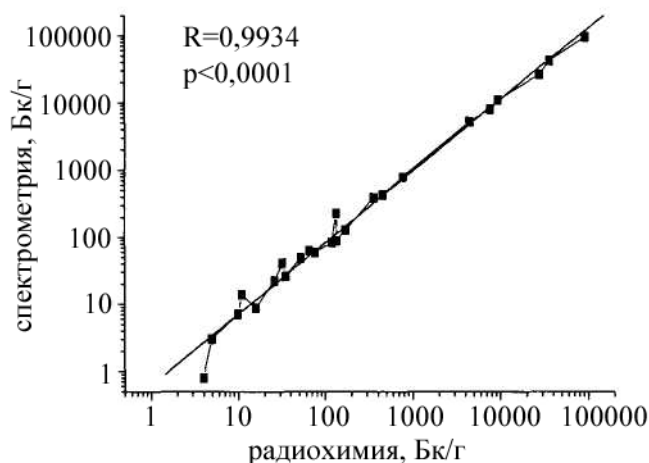


Рис. 5. Сравнение результатов определения активности  $^{(238-240)}\text{Pu}$  в образцах почвы методами спектрометрии и радиохимии.

## Суммарная альфа-активность изотопов плутония, Бк/образец

Проба	Масса образца, г	Активность $^{238-240}\text{Pu}$ по спектрометрическим данным ( $A_{\text{спектр.}}$ )	Активность $^{238-240}\text{Pu}$ по радиохимическим данным ( $A_{\text{р.х.}}$ )	$(A_{\text{спектр.}} - A_{\text{р.х.}}) / A_{\text{спектр.}}$
1-145-1	22	28400,0	26100,0	0,08
1-145-2	26	7870,0	8000,0	-0,02
1-145-3	35	462,0	430,0	0,07
1-145-4	32	136,0	89,0	0,35
1-145-5	114	26,0	22,4	0,14
1-145-6	121	16,0	8,8	0,45
1-145-7	145	5,0	3,0	0,40
1-145-8	162	4,0	0,8	0,81
2-145-1	13	37000,0	42000,0	-0,14
2-145-2	19	9650,0	10900,0	-0,13
2-145-3	29	364,0	390,0	-0,07
2-145-4	38	172,0	128,0	0,26
2-145-5	149	52,2	49,0	0,06
2-145-6	158	32,0	41,0	-0,28
2-145-7	138	65,0	63,0	0,03
2-145-8	125	76,0	59,0	0,22
3-145-1	8	93200,0	96000,0	-0,03
3-145-2	19	4560,0	5200,0	-0,14
3-145-3	20	787,0	790,0	0,00
3-145-4	17	135,0	229,0	-0,70
3-145-5	126	120,0	84,0	0,30
3-145-6	131	35,0	26,0	0,26
3-145-7	167	11,0	13,9	-0,26
3-145-8	160	10,0	7,1	0,29

## Выводы

Предложенный метод определения содержания  $\alpha$ -излучающих изотопов плутония с помощью спектроскопии рентгеновских и  $\gamma$ -спектров позволяет быстро, надежно и с достаточно высокой точностью проводить радиоэкологические исследования без применения радиохимии, уменьшая при этом стоимость анализа одного образца почти на два порядка.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Агеев В.А., Лашко А.П., Лашко Т.М. и др. Изотопный состав плутония в грунтах зоны отчуждения: Сб. науч. ст. ИЛИ. - 2001. - Вып. 2. - С. 154 - 155.
2. Герасько В.Н., Ключников А.А., Корнеев А.А. и др. Объект «Укрытие». История, состояние и перспективы. - Киев: Интерграфик, 1997. - 224 с.
3. Table of radioactive isotopes / Ed. by V. S. Shirley. - New York: J. Wiley and Sons, 1986.
4. Vishnevsky I.N., Bondarkov M.D., Zheltonozhky V.A. // Izvestija RAN, ser. fiz. - 1995. - Vol. 59. - P. 78.

Поступила в редакцию 10.02.05,  
после доработки – 28.03.05.

**18 4 ВИЗНАЧЕННЯ ВМІСТУ ІЗОТОПІВ ПЛУТОНІЮ В ЧОРНОБИЛЬСЬКИХ ЗРАЗКАХ  
ПО ХАРАКТЕРИСТИЧНОМУ L<sub>x</sub>-ВИПРОМІНЮВАННЮ УРАНУ****М. Д. Бондарьков, М. В. Желтоножська, А. М. Максименко, О. М. Рябушкін, Л. В. Садовніков**

Запропоновано метод визначення вмісту  $\alpha$ -випромінюючих ізоотопів плутонію по характеристичному L<sub>x</sub>-випромінюванню урану в зразках навколишнього природного середовища. Проведено порівняння описаного методу зі стандартним радіохімічним визначенням ізоотопів плутонію для проб ґрунту з "Рудого лісу". Показано, що спостерігається добра кореляція результатів, отриманих обома методами.

**18 4 DETERMINATION OF PLUTONIUM ISOTOPES IN SAMPLES OF THE CHERNOBYL EXCLUSION  
ZONE BY MEANS OF CHARACTERISTIC L<sub>x</sub>-RADIATION OF URANIUM****M. D. Bondarkov, M. V. Zheltonozhska, A. M. Maksimenko, A. N. Ryabushkin, L. V. Sadovnikov**

The method for measurement of  $\alpha$ -emitting Pu isotopes by means of characteristic L<sub>x</sub>-radiation of uranium in environmental samples has been proposed. This method was compared with standard radiochemistry determination of Pu isotopes in soil samples from the Red forest. The results of comparison between both methods have a high correlation.