

ИССЛЕДОВАНИЕ ИЗОТОПНЫХ ОТНОШЕНИЙ В ОБРАЗЦАХ, ОТОБРАННЫХ В БЛИЖНЕЙ ЗОНЕ ОБЪЕКТА «УКРЫТИЕ»

**М. В. Желтоножская¹, Н. В. Кулич¹, Л. В. Садовников¹,
В. А. Канченко², Э. М. Пазухин², Н. И. Панасюк²**

¹*Институт ядерных исследований НАН Украины, Киев*

²*Институт проблем безопасности АЭС НАН Украины, Чернобыль*

Измерены изотопные соотношения $^{134,137}\text{Cs}$, $^{154,155}\text{Eu}$ и $^{241,243}\text{Am}$ в пробах почв ближней 10-километровой зоны ЧАЭС и в «горячих» частицах, выделенных из этих проб. Обнаружено расхождение на 20 - 25 % оценок выгорания для разных изотопов. Обсуждаются причины таких различий. Предложена методика измерения изотопных отношений $^{134,137}\text{Cs}$.

Ключевые слова: радионуклиды, изотопные соотношения, почвы, топливо, выгорание.

Введение

Оценка выгорания топлива в «горячих» частицах, находящихся в ближней зоне объекта «Укрытие», является актуальной задачей, так как эти данные позволяют оценить, в частности, количество топлива на изучаемой территории. Обычно в абсолютном большинстве случаев выгорание рассчитывается по соотношению активностей изотопов $^{134,137}\text{Cs}$. Полученные таким методом величины использовались при оценке достоверности разных сценариев по образованию зон с высоким содержанием урана [1, 2]. Однако во многих случаях выпадение «горячих» частиц 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 топливосодержащих материалов (ТСМ) разных модификаций. Разрушение таких «горячих» частиц может происходить с разной скоростью. Для изучения этих процессов нами исследовалось соотношение активностей $^{134,137}\text{Cs}$ в пробах, которые были отобраны в почвах ближней зоны ЧАЭС, и в отдельных «горячих» частицах, выделенных из этих проб.

Представляет определенный интерес исследование изотопных отношений и для других элементов, в частности для $^{154,155}\text{Eu}$. Особенно интересным является оценка изотопных отношений $^{241,243}\text{Am}$. Из-за неоднозначных значений сечений взаимодействия нейтронов разных энергий для атомов в этой области расчеты наработки ^{243}Am различаются на два-три порядка.

Методика эксперимента и результаты

Для исследований были отобраны пробы в районе «Рыжего леса» и из них выделены для изучения несколько отдельных «горячих» частиц (в качестве аналогов лавообразных ТСМ (ЛТСМ) объекта «Укрытие»). Пробы грунта отбирались по два слоя толщиной 2 см.

Измерения проводились на германиевых спектрометрах с Ge-детектором с входным бериллиевым окном с эффективностью регистрации 40 % по сравнению с NaI(Tl)-детектором размерами 3" × 3" и энергетическим разрешением 2 кэВ на γ -линии ^{60}Co и с Ge-детектором с входным бериллиевым окном и объемом 2 см³. Часть γ -спектров изучалась с использованием антикомптоновского спектрометра с Ge-детектором, имеющим входное бериллиевое окно и энергетическое разрешение 1,9 кэВ на γ -линиях ^{60}Co и 350 эВ на γ -линии 59 кэВ ^{241}Am . Эффективность спектрометра составляет 30 % по сравнению с NaI(Tl)-детектором размерами 3" × 3". Подавление комптоновского фона в низкоэнергетической области было не меньше, чем в восемь раз. Это позволило нам надежно идентифицировать активность ^{243}Am .

Были измерены изотопные отношения в 12 разрезах. Во всех разрезах точность измерений соотношения $^{134,137}\text{Cs}$ составляла 2 %. Погрешность при измерении активностей $^{154,155}\text{Eu}$ не превышала 5 %.

Требование высокой точности определения соотношения $^{134,137}\text{Cs}$ и $^{154,155}\text{Eu}$ обусловило необходимость обработки γ -спектров с использованием специализированного программного обеспечения. Для этого была адаптирована программа для обработки сложных мультиплетных спектров [3]. Однако в данном случае основное внимание было уделено выбору формы линий ввиду того, что многие измерения, особенно для первых слоев, 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 влияние формы γ -линии исключается автоматически.

Для сравнительного анализа было отобрано несколько "горячих" частиц, которые могли рассматриваться в качестве аналога ЛТСМ непосредственно в объекте "Укрытие". Измерения γ -спектров таких "горячих" частиц показали значения выгорания топлива, определенного по соотношению $^{134,137}\text{Cs}$, близкие к данным для исследуемых почвенных разрезов. Однако удельная активность K_x -излучения урана была в 20 - 30 раз меньше по сравнению с почвами, где наблюдались аномальные изотопные отношения $^{134,137}\text{Cs}$. Это указывало на то, что в этих ТСМ уран, вероятно, находится в виде UO_2 . Такой вывод подтверждается и исследованиями, которые проводились ранее с ЛТСМ объекта "Укрытие" [1, 2].

Характерные спектры этих "горячих" частиц-аналогов приведены на рис. 1.

Следует отметить, что исследования γ -спектров образцов-аналогов ЛТСМ объекта "Укрытие" в настоящее время позволяют измерять активность ^{243}Am (см. рис. 1, а). Как видно в области 70-80 кэВ нами надежно наблюдается мультиплет γ -линий с энергиями 73,4, 74,4, 76,6 и 77,1 кэВ. Эти γ -линии были нами идентифицированы как пики суммирования L_x -излучения Np с γ -линией 59 кэВ: $\gamma_{59} + L_\alpha$, $\gamma_{59} \text{ кэВ} + L_\beta$, $\gamma_{74,67} \text{ } ^{243}\text{Am}$ и пик вылета $\gamma_{86} \text{ кэВ} - K\alpha_{\text{Ge}}$. Число отсчетов в γ -линии 74,6 кэВ составило $94 \cdot 10^3$, т.е. статистическая ошибка не превышала 2 %.

Здесь хотелось бы отметить, что при измерении γ -спектров на обычном спектрометре со свинцовой защитой всегда в γ -спектре присутствует $K\alpha$ -излучение свинца. Энергии $K\alpha$ -группы равна 72,8 и 75,0 кэВ, т.е. $K_{\alpha 1}$ в пределах энергетического разрешения спектрометров в этой области не разделяется от γ -линии 74,4 кэВ ^{243}Am и это является, в первую очередь, причиной отсутствия достоверных данных об ^{243}Am из измерений на обычном спектрометре.

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 γ -спектр указанной частицы.

Из этих измерений для проб-аналогов ЛТСМ было получено отношение $A(^{243}\text{Am})/A(^{241}\text{Am}) = P = (1,6 \pm 0,1) \cdot 10^{-3}$.

Спектр "горячих" частиц из проб, отобранных в "Рыжем лесу", измерялся на Ge -детекторе с входным бериллиевым окном объемом 2 см^3 (см. рис. 1, б). Как видно, в нем наблюдается вклад $K\alpha\text{Pb}$. Однако он легко учитывается, если учесть, что $K_{\alpha 1}\text{Pb}$ 46 %, а $K_{\alpha 2}$ 28 %. Для этих частиц было получено отношение $P = (1,5 \pm 0,1) \cdot 10^{-3}$.

Теоретические оценки дают величины примерно в 1,5 раза завышенные по сравнению с экспериментом.

Выполненные измерения показывают, что выгорание топлива, определенное по изотопным отношениям $^{134,137}\text{Cs}$, систематически занижено на две-три единицы по сравнению с данными из изотопных отношений $^{154,155}\text{Eu}$. Причем это присуще и образцам проб почвы, и образцам-аналогам ЛТСМ. Например, для двух образцов-аналогов было получено выгорание

по изотопам европия 12,6 и 13,6 МВт·сут/кг урана, а для изотопов цезия – 10,3 и 9,7 МВт·сут/кг урана. Для выгорания в пробах почвы расхождение такое же (см. таблицу).

Учитывая, что свыше 70 % твэлов имеют выгорание 12-13 МВт·сут/кг урана и данные по изотопам европия близки к этим цифрам, можно предположить, что коэффициенты для формулы, которая определяет выгорание по изотопам $^{134,137}\text{Cs}$, полученные в работе [4], занижены и требуется дальнейший анализ экспериментальных данных.

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 23 года, эта ошибка может привести к значительным систематическим погрешностям. Например, для $^{154,155}\text{Eu}$ в [5] $T_{1/2} = 8,8(1)$ и $4,96(1)$ ч, а в [6] $T_{1/2} = 8,593$ и $4,76$ ч соответственно. Это приводит к поправочному параметру $f = 0,91$, а учитывая, что выгорание по изотопам европия определяется по формуле $p = 30,1 \cdot A - 11$, где A – отношение активностей $^{154,155}\text{Eu}$ в 1986 г., видно, что характерные значения будут занижены на 20 %, т.е. на те же 2-2,5 единицы. Важно также выбирать и данные о выходе γ -переходов из одних таблиц. Для того же ^{155}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}Eu мы провели изучение спектров "горячих" частиц с большим выходом ^{155}Eu и было получено, что выход γ -линии 86 кэВ равен $30,4 \pm 0,8$ %, т.е. совпадает с [6]. Поэтому в дальнейшем оценках выгорания ядерные данные желательно использовать из таблицы [6].

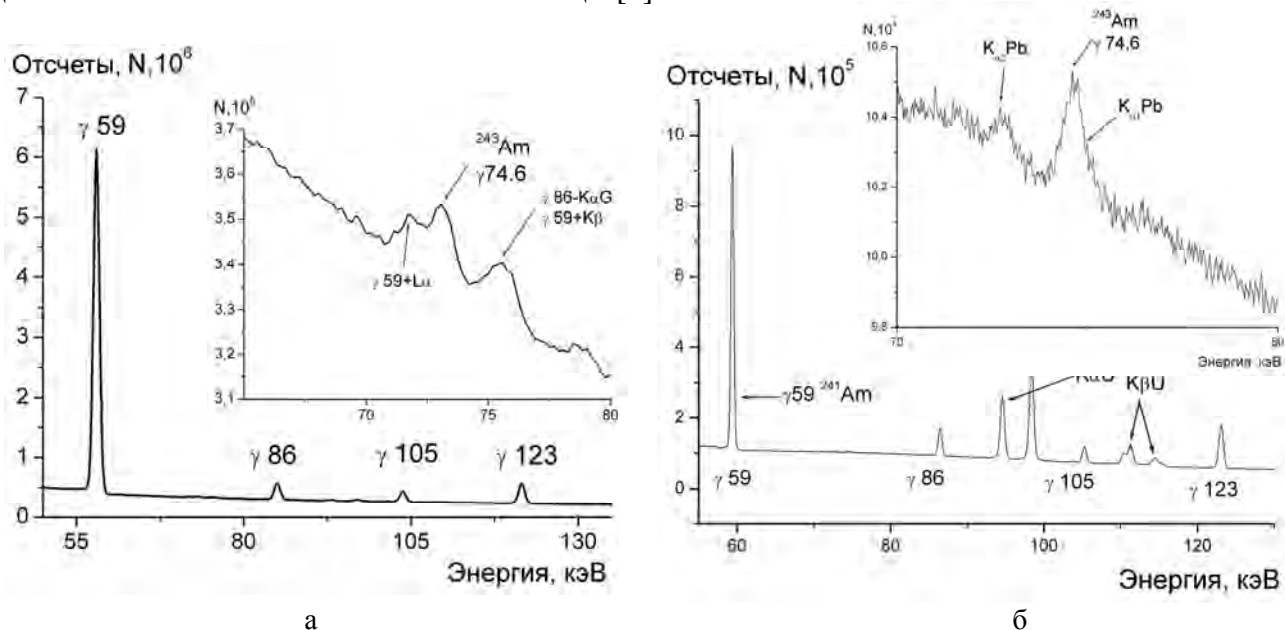


Рис. 1. Фрагмент γ -спектра, измеренного на антикомптоновском спектрометре (а) и спектрометре с Ge-детектором объемом 2 см^3 (б).

Выгорание топлива (МВт·сут/кг урана), рассчитанное из изотопных отношений

№ пробы	Европий	Цезий	№ пробы	Европий	Цезий
"г. ч." 1	12,6(5)	10,3(2)	18-1	12,9(5)	10,2(3)
"г. ч." 2	13,6(5)	9,7(3)	18-2	10,2(5)	7,7(3)
145-1*	9,2 (5)	8,4(3)	24-1	12,1(5)	10,2(3)
145-2*	10,5(5)	8,6(3)	24-2	12,5(5)	10,4(3)

Примечание: "г. ч." – образцы-аналоги, цифры -1 или -2 указывают на 1-й и 2-й слои почвы, где отбирались образцы.

В скобках приведена погрешность измерений $12,6(5)=12,6\pm 0,5$ и т.д.

И в заключение нами предлагается, ввиду простоты измерений активностей $^{134,137}\text{Cs}$, исследовать эти изотопные отношения для расчета выгорания материалов из реактора 4-го энергоблока ЧАЭС. Здесь необходимо отметить, что в настоящее время вклад ^{134}Cs не превышает десятых долей процента по сравнению с ^{137}Cs . Однако эта трудность легко преодолевается с использованием простой установки γ - γ -совпадений на базе NaI(Tl)-детектора большого размера и германиевого детектора. Распад ^{134}Cs идет в основном каскадом двух γ -переходов с энергиями 604 и 796 кэВ, поэтому в такой установке в интегральных совпадениях γ -интенсивность 661 кэВ будет подавлена в сотни раз, а γ -интенсивность 604 кэВ не более чем в два-три раза в зависимости от размеров NaI(Tl)-детектора. Для иллюстрации такой методики мы провели измерения активностей $^{134,137}\text{Cs}$ в настоящее время. На рис. 2 представлены

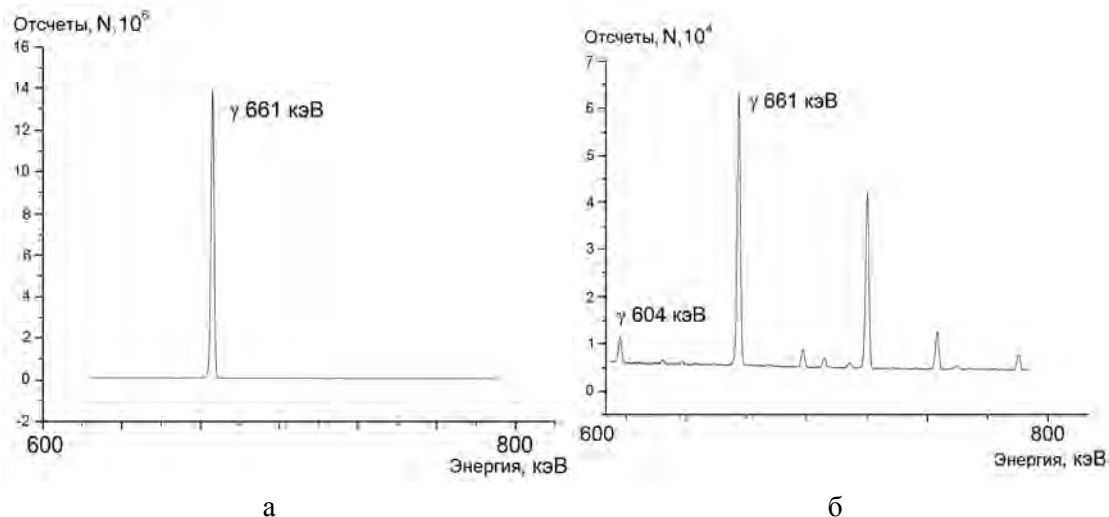


Рис. 2. Фрагменты γ -спектров проб почвы из «Рыжего леса»: а – одиночный спектр; б – спектр совпадений.

полученные спектры.

Как видно, в спектре совпадений легко выделяется активность ^{134}Cs . Поэтому и в настоящее время по предложенной методике можно успешно исследовать выгорание топлива на ЧАЭС по соотношению изотопов $^{134,137}\text{Cs}$.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Пазухин Э.М. Лавообразные топливосодержащие массы 4-го блока ЧАЭС: Автореф. дис. ... д-ра техн. наук. - Чернобыль, 1999.
2. Лагуненко А.С. Поиск и исследование скрытых скоплений топливосодержащих материалов 4-го блока ЧАЭС: Автореф. дис. ... канд. техн. наук. - К., 2008.
3. Вишневский И.Н., Желтоножский В.А., Зелинский А.М. и др. Атомно-ядерные эффекты в процессах внутренней конверсии гамма-лучей // Зб. наук. праць Ін-ту ядерних досл. НАН України. - 1999. - С. 60 - 64.
4. Боровой А.А., Пазухин Э.М. Соотношения изотопов плутония в зависимости от степени выгорания ядерного топлива // Радиохимия. - 2003. - Т. 45, № 2. - С. 191 - 192.
5. Lederer C.M., Shirley V.S. Table of Isotopes. - New York, 1978.
6. Firestone R.B., Shirley V.S., Baglin C.M. et al. The 8th edition of the Table of Isotopes // CD-ROM. 1996. Ver. 1.

**ДОСЛІДЖЕННЯ ІЗОТОПНИХ СПІВВІДНОШЕНЬ У ПРОБАХ,
ВІДБРАНИХ У БЛИЖНІЙ ЗОНІ ОБ'ЄКТА "УКРИТТЯ"**

**М. В. Желтоножська, М. В. Кулич, Л. В. Садовников, В. А. Канченко,
Е. М. Пазухін, М. І. Панасюк**

Виміряно ізотопні співвідношення $^{134,137}\text{Cs}$ та $^{154,155}\text{Eu}$, $^{242,243}\text{Am}$ в пробах ґрунтів ближньої 10-кілометрової зони ЧАЕС. Виявлено розбіжність на 20 - 25 % оцінок вигорання для різних елементів. Обговорюється причини таких розбіжностей. Запропоновано методику вимірювання ізотопних співвідношень.

Ключові слова: радіонукліди, ізотопні співвідношення, ґрунти, паливо, вигорання.

**ISOTOPES RATIO INVESTIGATION IN SOILS SAMPLED
NEAR SHELTER OBJECT ZONE**

**M. V. Zheltonozhska, M. V. Kulych, L. V. Sadovnykov, V. A. Kanchenko,
E. M. Pazukhin, M. I. Panasiuk**

Isotopic ratios of $^{134,137}\text{Cs}$, $^{154,155}\text{Eu}$ and $^{242,243}\text{Am}$ were measured in soil samples from nearest 10-km ChNPP zone. The discrepancy from 20 to 25 % was obtained in estimations for different elements burning out. Reasons of the discrepancy are under discussion. Procedure of measurements of isotopic ratios of $^{134,137}\text{Cs}$ was proposed.

Keywords: radionuclides, isotopes ratio, soils, fuel, burnout.

Поступила в редакцію 21.10.09