

Трансурановые элементы с низкой удельной активностью в отработавшем топливе атомных электростанций и их влияние на окружающую среду (на примере 4-го энергоблока Чернобыльской АЭС)

Разработана методика определения содержания актиноидов с низкой концентрацией в топливе 4-го энергоблока ЧАЭС, основанная на анализе измерений радионуклидного состава выпадений и на расчетах содержания радионуклидов в топливе предаварийного реактора. Представлены результаты расчетов удельной мощности основных источников нейтронов спонтанного деления в топливе 4-го энергоблока ЧАЭС и в отработавшем ядерном топливе атомных электростанций для разной временной выдержки. Анализируется роль трансурановых элементов с низкой удельной активностью как в формировании нейтронных полей в облученном топливе, так и в формировании дозы облучения на загрязненных территориях.

А. П. Лашко, Т. М. Лашко

Трансуранові елементи з низькою питомою активністю у відпрацьованому паливі атомних електростанцій та їх вплив на навколишнє середовище (на прикладі 4-го енергоблока Чорнобильської АЕС)

Розроблено методику визначення вмісту актиноїдів малої концентрації в паливі 4-го енергоблока ЧАЕС. Вона базується на аналізі вимірювань радіонуклідного складу випадін та на розрахунках вмісту радіонуклідів у паливі предаварійного реактора. Наведено результати розрахунків питомої потужності основних випромінювачів нейтронів спонтанного поділу в паливі 4-го енергоблока ЧАЕС та у відпрацьованому ядерному паливі атомних електростанцій для різної витримки. Проводиться аналіз ролі трансуранових елементів з низькою питомою активністю як у формуванні нейтронних полів в опромінену паливі, так і у формуванні дози опромінення на забруднених територіях.

Чернобыльская катастрофа изменила отношение к ядерной энергии во всем мире. Были существенно пересмотрены международные нормы радиационной защиты, национальные стратегии развития ядерной энергетики, мероприятия по усилению ядерной безопасности, ужесточены правила обращения с радиоактивными отходами.

Вопросам минимизации негативного влияния ядерного топливного цикла на окружающую среду посвящено много работ. Они касаются всех этапов — от добычи природного урана до переработки отходов, нарабатанных из этого урана. Для достижения радиационной эквивалентности рекомендуется ввести в ядерный топливный цикл ряд различных мероприятий [1], в том числе извлечение из руды совместно с ураном долгоживущих радия и тория с их последующей трансмутацией. Для уменьшения количества радиоактивных отходов рассматривается возможность создания замкнутого топливного цикла — трехкомпонентной структуры ядерной энергетики, включающей в себя быстрые, тепловые и жидкосольевые реакторы [2]. Большое внимание уделяется также вопросам переработки отработавшего ядерного топлива [3].

Исследования последних лет, проводимые нами в рамках ликвидации последствий аварии на Чернобыльской АЭС, позволили по-новому взглянуть на некоторые проблемы. На сегодняшний день становится ясно, что наряду с решением традиционных задач мониторинга основных долгоживущих радиологически значимых нуклидов вызывают интерес и другие трансурановые элементы с низкой удельной активностью, роль которых в некоторых аспектах может быть весьма существенной (например, формирование дозы облучения на загрязненных территориях, проблема подкритичности топливных масс объекта «Укрытие»).

Существующие расчеты наработки таких радионуклидов в топливе 4-го энергоблока либо отсутствуют вовсе, либо их точность недостаточна. Предпринятые исследования и призваны заполнить пробел в этой области.

Методы исследований

Наиболее полно вопрос о содержании трансурановых элементов (ТУЭ) в топливе 4-го энергоблока ЧАЭС рассмотрен в работах [4 — 7]. В них приведены расчетные данные по накоплению к моменту аварии практически всех изотопов осколков деления и большинства ТУЭ, однако расчеты по наработке актиноидов с низкой концентрацией отсутствуют. Это обусловлено, в первую очередь, стремительным снижением точности расчетов для изотопов с более высокими массовыми числами.

Оценка прогнозируемых относительных погрешностей расчетов концентраций урана и трансурановых элементов в топливе 4-го энергоблока ЧАЭС по данным [6] такова:

Изотоп	²³⁵ U	²³⁶ U	²³⁹ Pu	²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Pu	²⁴¹ Am	²⁴² Cm	²⁴³ Am	²⁴⁴ Cm
Относительная погрешность, %	1,5	1,4	11,5	16	24	24	29	35	40

Хорошо видно, как идет накопление относительной погрешности при возрастании атомного номера ядра.

Относительные измерения, как правило, выполняются легче, чем абсолютные: не требуется измерять разнообразные физические величины, устраняются связанные с этими величинами неопределенности и систематические погрешности. Особенно полезно проводить сравнения с объектами,

для которых измеряемая величина уже известна с высокой точностью. Необходим предварительный выбор или создание таких объектов. В качестве последних мы предлагаем использовать расчетные значения концентраций $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am и ^{244}Cm , относительно которых и будет определяться содержание других изотопов плутония, америция, кюрия.

Значительная часть урана первоначальной загрузки реактора и наработанных за время кампании радионуклидов содержится в топливосодержащих массах (ЛТСМ), являющихся продуктом высокотемпературного взаимодействия ядерного топлива с конструкционными материалами. Однако более предпочтительными являются измерения радионуклидного состава выпадений, соотношения активностей радионуклидов в топливной компоненте которых лучше соответствуют средним значениям этих отношений в топливе реактора. Этот вывод следует из сравнительного анализа результатов ширококомасштабных исследований распределения трансурановых элементов в объектах природной среды и данных об удельных активностях тех же радионуклидов в аварийном топливе. Более подробно правомерность экстраполяции радионуклидного состава выпадений на состав топлива предаварийного реактора рассмотрена в [7].

Таким образом, процедура определения содержания актиноидов с низкой концентрацией в топливе 4-го энергоблока ЧАЭС (и в загрязнении окружающей среды) сводится к следующим основным этапам.

1. С целью определения соответствия (представительности) проб предаварийному топливу (т. е. близости измеренных радионуклидных соотношений нелетучих радионуклидов соответствующим расчетным для доаварийного 4-го блока) выполняют исследование содержания $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am и ^{244}Cm (базовых трансурановых элементов) в отобранных пробах.

2. Измеряют отношения активностей изотопов с низкой и высокой концентрацией методами прецизионной альфа- и гамма-спектрометрии.

3. Рассчитывают их содержание в загрязнении на основании экспериментальных данных о плотностях загрязнения территории базовыми элементами

4. Рассчитывают их содержание в реакторе на основании расчетов концентраций базовых элементов.

Результаты и обсуждение

Эта методика использована нами при определении содержания в топливе 4-го энергоблока ЧАЭС $^{242\text{m}}\text{Am}$ [8], ^{239}Np , ^{243}Am и ^{243}Cm [9], ^{242}Pu [10] и дала хорошие результаты.

Отношения активностей $^{243}\text{Am}/^{241}\text{Am}$, $^{243}\text{Cm}/^{244}\text{Cm}$, $^{242}\text{Cm}/^{244}\text{Cm}$ и $^{242}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ определены при радиохимическом анализе кернов из скважин, отобранных в 1997 г. на промплощадке объекта «Укрытие», а также проб почвы, отобранных по точкам реперной сети и на паспортизованных полигонах 30-километровой зоны Чернобыльской АЭС.

С целью определения «представительности» проб предаварийному топливу были выполнены исследования содержания ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am , а также ^{244}Cm в отобранных пробах. Соотношения активностей нелетучих радионуклидов указывают на практически топливный характер загрязнения.

Альфа-спектры измерялись на восьмиканальном альфа-спектрометре с полупроводниковыми кремниевыми детекторами. Высокое энергетическое разрешение (меньше 19 кэВ на линиях ^{241}Am) и низкий собственный фон прибора (порядка

одного отсчета в сутки в областях локализации основных групп альфа-частиц) при эффективности регистрации около 25 % позволяют уверенно детектировать активности от 10^{-14} Ки.

Измерения гамма-спектров проводили на гамма-спектрометре, включающем в себя два HPGe-детектора: GМХ-30190 и GLP-36360/13 с разрешением 750 эВ и 580 эВ на гамма-линии 122 кэВ ^{57}Co соответственно.

Измеренные соотношения активностей изотопов использованы для расчетов содержания актиноидов с низкой удельной активностью в топливе аварийного реактора и в пробах объектов окружающей среды.

Относительные плотности загрязнения почв (на 26.04.1986 г.) зоны отчуждения актиноидами и ^{239}Pu составляли:

Изотоп	^{242}Pu	^{239}Np	^{243}Am	^{243}Cm	$^{242\text{m}}\text{Am}$	^{239}Pu
Плотности загрязнения, Бк/м ² (отн. ед.)	0,2	0,6	0,6	0,88	1,1	100

Эти данные могут быть использованы для определения абсолютных величин загрязнения территории низкоактивными актиноидами на основании существующих карт загрязнений окружающей среды ^{239}Pu .

Плотности загрязнения почв (на 26. 04. 1986 г.) зоны отчуждения ^{237}Np , ^{243}Am , ^{239}Pu , ^{90}Sr и ^{137}Cs для топливного компонента (что характерно, например, для северо-западного следа выброса) таковы:

Изотоп	^{237}Np	^{243}Am	^{239}Pu	^{90}Sr	^{137}Cs
Плотности загрязнения, Бк/м ² (отн. ед.)	0,000054	0,0012	0,19	46,0	53,8

Как следует из приведенных данных, вклад в загрязнение низкоактивных актиноидов не превышает 1 % вклада ^{239}Pu . Казалось бы, ими можно пренебречь, однако это совсем не так при оценке вклада подобных радионуклидов в формирование дозовых нагрузок, где их роль становится значимой.

Авторами работы [11] рассчитаны дозовые нагрузки вследствие загрязнения территории основными долгоживущими нуклидами — продуктами ядерного топливного цикла. Оказалось, что, при одинаковой величине плотности загрязнения, накопленные за 50 лет суммарные эффективные дозы облучения, инициированные различными радионуклидами, могут отличаться в 100 и более раз. Ниже приведены рассчитанные дозовые нагрузки от этих же радионуклидов согласно данным работы [11] и реально существующим соотношениям между радионуклидами в 30-километровой зоне Чернобыльской АЭС:

Изотоп	^{237}Np	^{243}Am	^{239}Pu	^{90}Sr	^{137}Cs
Дозовые нагрузки, отн. ед.	0,018	0,0049	0,0033	50,0	50,0

Несмотря на то что вклад в загрязнение ^{237}Np и ^{243}Am не превышает 1 % вклада ^{239}Pu , инициированные этими радионуклидами дозовые нагрузки превышают эффективную дозу облучения, обусловленную ^{239}Pu . К сожалению, отсутствуют данные о формировании дозовых нагрузок от ^{239}Np . Если проводить аналогию с ^{237}Np , суммарная доза облучения от которого согласно расчетам [11] превышает эффективную дозу от ^{239}Pu в 20 000 раз, можно ожидать существенного вклада и от ^{239}Np .

Содержание актиноидов с низкой удельной активностью и ^{239}Pu в топливе четвертого энергоблока ЧАЭС (на 26.04.1986 г.) таково:

Изотоп	^{242}Pu	^{239}Np	^{243}Am	^{243}Cm	$^{242\text{m}}\text{Am}$	^{239}Pu
Удельные активности, Бк/кг топлива	$1,0 \times 10^7$	$3,0 \times 10^7$	$3,0 \times 10^7$	$4,4 \times 10^7$	$5,5 \times 10^7$	$5,0 \times 10^9$

Хорошо известно, что именно четные изотопы кюрия — ^{242}Cm ($T_{1/2} = 163$ дня) и ^{244}Cm ($T_{1/2} = 18$ лет) — полностью формируют поток нейтронов спонтанного деления в облученном ядерном топливе. Вследствие малого периода полураспада нарабатанный в реакторе к концу кампании ^{242}Cm в течение нескольких лет практически полностью распадается, но в то же время он постоянно генерируется $^{242\text{m}}\text{Am}$ ($T_{1/2} = 152$ года). Представляет несомненный интерес оценить удельные мощности источников нейтронов спонтанного деления как в топливе 4-го энергоблока ЧАЭС, так и в отработавшем ядерном топливе атомных электростанций.

При изучении актиноидов установлено, что:

период спонтанного деления быстро уменьшается с ростом порядкового номера трансурановых элементов;

степень нестабильности различных изотопов данного элемента по отношению к спонтанному делению существенно зависит от числа содержащихся в них нейтронов;

периоды спонтанного деления ядер с нечетными массовыми числами на несколько порядков больше периодов спонтанного деления соседних четно-четных ядер.

Опираясь на эти основные закономерности, можно утверждать, что при расчетах удельных активностей нейтронов спонтанного деления 4-го энергоблока Чернобыльской АЭС имеет смысл учитывать только четные изотопы урана, плутония и кюрия.

Представим результаты расчетов удельной мощности (в нейтронах на 1 кг топлива) основных источников нейтронов спонтанного деления 4-го энергоблока ЧАЭС для разных временных промежутков с момента аварии:

Изотоп	1986 г.	2006 г.	2086 г.	2186 г.
$^{242\text{m}}\text{Am}$	0	7,37	5,11	3,25
^{238}U	15,1	15,1	15,1	15,1
^{238}Pu	28,9	24,7	13,1	5,96
^{242}Pu	126	126	126	126
^{240}Pu	1030	1030	1020	1010
^{244}Cm	6560	3050	143	3,11
^{242}Cm	33800	0	0	0

Выходы нейтронов спонтанного деления для ^{242}Cm , $^{242\text{m}}\text{Am}$, и ^{242}Pu рассчитаны исходя из полученных нами значений их удельных активностей в топливе реактора. Для расчетов выходов нейтронов спонтанного деления других радионуклидов использованы данные [3].

Как видно из последней таблицы, поток нейтронов спонтанного деления на момент аварии формируется в основном ^{242}Cm . Вклад нейтронов спонтанного деления от ^{242}Pu на это время составляет 0,3 %, но с распадом ^{242}Cm вклад от $^{242\text{m}}\text{Am}$ и ^{242}Pu стремительно возрастает и в 2086 г. превысит 10 % от общего потока нейтронов, который будет формироваться в основном ^{240}Pu . Следует отметить, что при этом выход нейтронов спонтанного деления от $^{242\text{m}}\text{Am}$ сопоставим по величине с выходом от ^{238}U .

Результаты расчетов удельной мощности (в нейтронах на 1 кг топлива) основных источников нейтронов спонтанного деления отработавшего топлива РБМК-1000 с выгоранием 29,3 МВт×сут/кг урана для разной временной выдержки (10, 100 и 200 лет) таковы:

Изотоп	10 лет	100 лет	200 лет
$^{242\text{m}}\text{Am}$	19,9	13,2	8,39
^{238}U	14,9	14,9	14,9
^{238}Pu	256	126	57
^{242}Pu	1350	1350	1350
^{240}Pu	2550	2530	2500
^{244}Cm	131000	4180	91

Данные о концентрациях актиноидов взяты из [11].

В отличие от топлива 4-го энергоблока ЧАЭС вклад нейтронов спонтанного деления от ^{240}Pu и ^{242}Pu в отработавшем топливе РБМК-1000 становится определяющим только через 200 лет выдержки. Доля ^{242}Pu составит около трети от общего потока нейтронов, который будет формироваться в основном ^{240}Pu . Это обусловлено разными величинами выгорания топлива аварийного блока и отработавшего топлива РБМК-1000 (10,9 и 29,3 МВт×сут/кг урана соответственно).

Выводы

Приведенные данные убедительно доказывают, что влияние трансурановых элементов с низкой удельной активностью на окружающую среду весьма и весьма существенно. Актуальными с нашей точки зрения являются дальнейшие исследования по ^{239}Np и другим долгоживущим изотопам кюрия.

Литература

1. Габараев Б. А., Ганеев И. Х., Лопаткин А. В. Потенциальная биологическая опасность урана, используемого в ядерном топливном цикле // Атомная энергия. — 2004. — Т. 96. — Вып. 6. — С. 462 — 468.
2. Асеев А. Г. Оценка количества и активности радионуклидов топливных циклов трехкомпонентной структуры ядерной энергетики // Атомная энергия. — 2006. — Т. 101. — Вып. 3. — С. 214 — 221.
3. Лопаткин А. В., Орлов В. В. Влияние спектра нейтронов на характеристики трансмутационных цепочек Np, Am и Cm // Атомная энергия. — 2006. — Т. 100. — Вып. 6. — С. 452 — 458.
4. Герасько В. Н., Ключников А. А., Корнеев А. А. и др. Объект “Укрытие”. История, состояние и перспективы. — К.: Интерграфик, 1997.
5. Анализ текущей безопасности объекта “Укрытие” и прогнозные оценки развития ситуации. Отчет МНТЦ “Укрытие”, арх. №3601. — Чернобыль, 1996.
6. Боровой А. А., Довбенко А. А., Маркушев В. М., Строганов А. А. Радиационно-физические характеристики топлива 4-го энергоблока ЧАЭС и оценка их погрешности. Справочник / КЭ при ИАЭ им. И. В. Курчатова, 11.07-06/172. — Чернобыль, 1989.
7. Бегичев С. Н., Боровой А. А., Бураков Е. В. и др. Пре-принт ИАЭ-5268/3. — М., 1990.
8. Агеев В. А., Выричек С. Л., Лашко А. П. и др. Оценка содержания $^{242\text{m}}\text{Am}$ в топливе 4-го энергоблока Чернобыльской АЭС // Атомная энергия. — 1998. — Т. 84. — Вып. 4. — С. 340 — 344.
9. Агеев В. А., Выричек С. Л., Лашко А. П. и др. Удельная активность ^{243}Am и ^{243}Cm в топливе 4-го энергоблока Чернобыльской АЭС // Атомная энергия. — 1999. — Т. 87. — Вып. 5. — С. 327 — 329.
10. Лашко А. П., Лашко Т. Н., Одинцов А. А., Хоменков В. П. Комплексный анализ изотопного состава плутония в аварийном выбросе 4-го энергоблока Чернобыльской АЭС // Атомная энергия. — 2001. — Т. 91. — Вып. 6. — С. 443 — 448.
11. Einfeld K., Matthies M., Paretzke H. G., Wirth E. An assessment of the relative importance of long-lived radionuclides released in accidents from the back-end of the nuclear fuel cycle // Environmental migration of long-lived radionuclides, IAEA. — Vienna, 1982. — P. 701 — 708.
12. Колобашкин В. М., Рубцов П. М., Ружанский П. А., Сидоренко В. Д. Радиационные характеристики облученного ядерного топлива. Справочник. — М.: Энергоатомиздат, 1983.