

Д. М. Бондарьков¹, М. В. Желтоножская²,
А. М. Максименко¹, Н. И. Панасюк³

¹ Международная радиоэкологическая лаборатория,
г. Славутич Киевской обл., Украина

² Институт ядерных исследований Национальной
академии наук Украины, г. Киев, Украина

³ Институт проблем безопасности АЭС
Национальной академии наук Украины, г. Киев, Украина

Исследование концентрации радионуклидов в топливосодержащих материалах

Проведены γ - и α -спектроскопические исследования образцов топливосодержащих материалов, отобранных внутри объекта «Укрытие». Измерены изотопные отношения для цезия, европия, плутония, америция, кюрия и определено выгорание топлива в изучаемых образцах. Обнаружено расхождение теоретических оценок по наработке для всех радионуклидов выше ^{241}Am . Наблюдается систематическое расхождение значений выгорания, определенных по изотомам цезия, по сравнению с другими радионуклидами. Обсуждаются причины таких различий.

Ключевые слова: спектрометрия, топливосодержащие материалы, цезий, европий, плутоний, америций, кюрий

**Д. М. Бондарков, М. В. Желтоножська, А. М. Максименко,
М. І. Панасюк**

Дослідження концентрації радіонуклідів у паливовмісних матеріалах

Проведено γ - та α -спектроскопічні дослідження зразків паливовмісних матеріалів, що були відібрані всередині об'єкта «Укриття». Виміряно ізотопні співвідношення для ізотопів цезію, Європію, плутонію, америцію, кюрію та визначено вигорання палива в досліджуваних зразках. Виявлено розбіжність теоретичних оцінок з напрацювання для всіх радіонуклідів вище за ^{241}Am . Спостерігається систематична розбіжність значень вигорання, визначених по ізотопах цезію порівняно з іншими радіонуклідами. Обговорюються причини таких відмінностей.

Ключові слова: спектроскопія, паливовмісні матеріали, цезій, Європій, плутоній, америцій, кюрій

© Д. М. Бондарьков, М. В. Желтоножская, А. М. Максименко,
Н. И. Панасюк, 2014

В результате аварии на энергоблоке № 4 Чернобыльской АЭС в окружающую среду попало большое количество топливных фрагментов с различным выгоранием, что привело к появлению в одних и тех же слоях почвы частиц с разным выгоранием топлива. Разрушение таких топливных фрагментов может происходить с разной скоростью, поскольку различное выгорание приводит к разному тепловыделению, а это, в свою очередь, — к образованию топливосодержащих материалов (ТСМ) разных модификаций.

Для изучения этих процессов нами предлагается исследовать отношения активностей изотопов. Если возможно существование различных форм в одном и том же образце, то скорость деструкции частиц, а значит, и скорость миграции радионуклидов будут изменяться в зависимости от преобладания в почве той или иной модификации ТСМ, что может проявляться в изотопных отношениях.

Актуальность изучения соотношения активностей изотопов цезия, европия и плутония, результатом которого будет оценка выгорания топлива в топливных фрагментах, объясняется тем, что во время аварии происходило смешивание конструкционных материалов и ТВЭЛов с различной степенью выгорания. В абсолютном большинстве случаев выгорание рассчитывалось по соотношению активностей $^{134,137}\text{Cs}$ [1]. Однако наличие в цепочке, по которой нарабатываются эти изотопы ксенона, может привести к значительной погрешности. В настоящий момент доступны для изучения выгорания активности $^{134,137}\text{Cs}$, $^{154,155}\text{Eu}$, $^{238-240}\text{Pu}$ и $^{241, 243}\text{Am}$, что может повысить достоверность оценки выгорания топлива.

Кроме того, в результате процессов радиационного воздействия в местах протекания лавинообразных топливосодержащих материалов (ЛТСМ) в настоящее время идут интенсивные процессы деструкции на их поверхности, из-за чего образуются десятки килограмм высокодисперсных аэрозолей с размерами частиц 0,06–0,3 мкм, содержащих радионуклиды, которые характерны для облученного ядерного топлива. Эти аэрозоли могут служить дополнительным фактором загрязнения окружающей Чернобыльскую АЭС территории в связи с большими отверстиями на крыше объекта «Укрытие».

Отметим также, что знания об отношении активностей нуклидов, таких как ^{241}Am , $^{243, 244}\text{Cm}$, по сравнению с активностью изотопов Pu позволят сделать более точные оценки наработки трансурановых нуклидов, поскольку погрешность в расчетах трансурановых нуклидов с атомным числом больше 241 по современным прогнозам достигает 40–50 %.

Методы экспериментов и результаты. Для исследований в местах, где протекали основные потоки лавы, были отобраны топливные фрагменты из объекта «Укрытие». Их активность по ^{137}Cs составляла от 10^4 до 10^7 Бк/г, масса частиц — от 50 до 200 мкг. Для сравнительного анализа изучались γ - и α -спектры образца, полученного из неповрежденного ТВЭЛа.

Большая 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'' \times 3'). Комптоновский фон в низкоэнергетической области подавлялся не меньше, чем в 8 раз, что позволило надежно идентифицировать активность ^{243}Am .

На рис. 1 приведен фрагмент одного из измеренных γ -спектров в низкой энергетической области для топливного фрагмента. Требование высокой точности определения

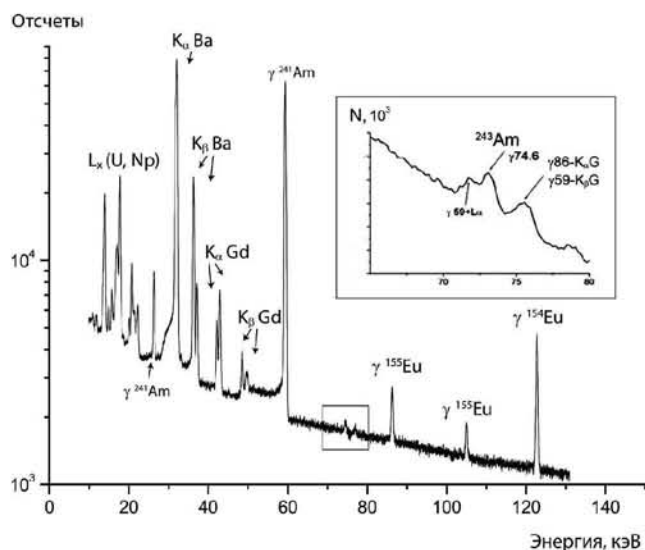


Рис. 1. Фрагменты γ -спектра, измеренного на антикомптоновском спектрометре

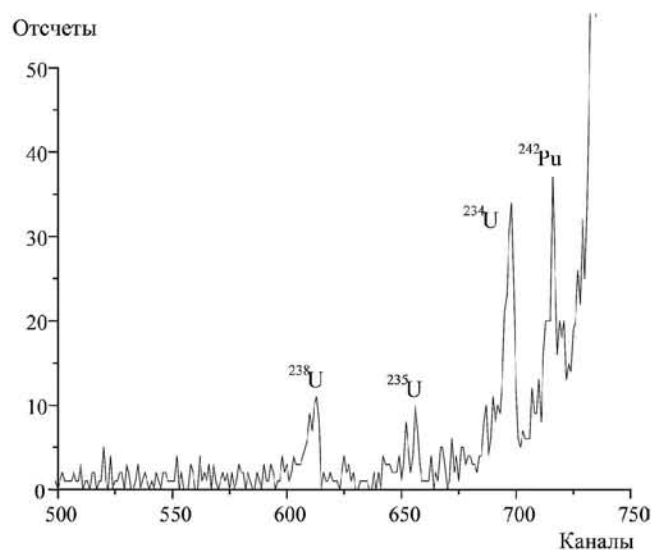


Рис. 3. Фрагмент суммарного α -спектра, область урана и ^{242}Pu

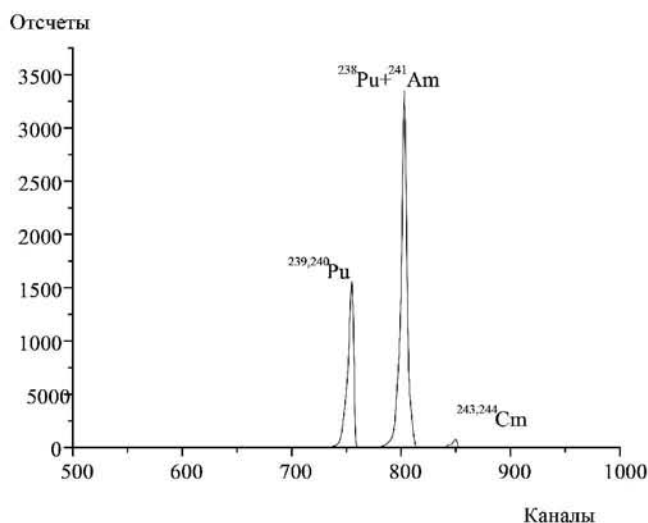


Рис. 2. Суммарный α -спектр

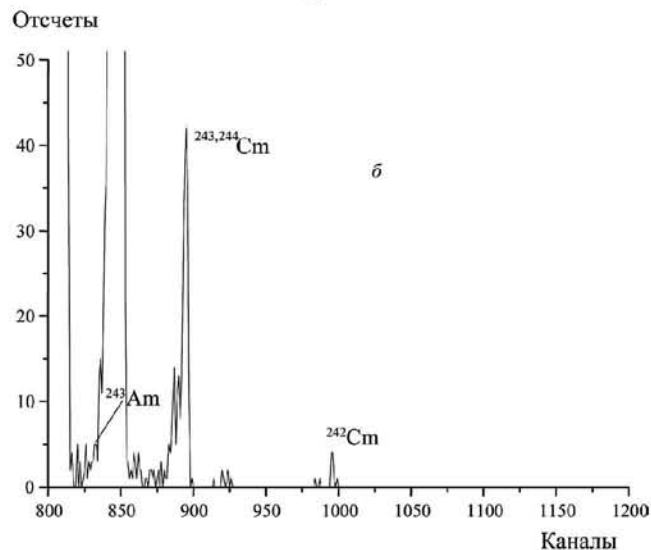


Рис. 4. Фрагмент суммарного α -спектра, область $^{243}, ^{244}\text{Cm}$

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 обработки сложных мультиплетных спектров [2], в которой предусмотрено использование одной из одиночных γ -линий в качестве «табличной». «Табличная» γ -линия вписывалась в изучаемый фрагмент спектра. Таким образом учитывалось влияние искажения формы спектров при различных измерениях. Поскольку искажение формы γ -линии присутствует как в «табличной» линии, так и в изучаемых линиях, автоматически влияние формы γ -линии исключается.

Из полученных спектров видно, что в образцах ЛТСМ, отобранных из объекта «Укрытие» ЧАЭС, в настоящее время наблюдается активность $^{241}, ^{243}\text{Am}$ (см. рис. 1). Как видно, в области 70–80 кэВ присутствует мультиплет γ -линий с энергиями 73,4, 74,4, 76,6 и 77,1 кэВ. Эти

γ -линии идентифицированы нами как пики суммирования L_x -излучения нептуния с γ -линией 59 кэВ: γ -линия 59 + L_{α} , γ -линия 59 кэВ + L_{β} , γ -линия 74,67 кэВ ^{243}Am и пик вылета γ -линия 86 кэВ — $K_{\alpha}\text{Ge}$.

При измерении γ -спектров на обычном спектрометре со свинцовой защитой в γ -спектре всегда присутствует K_x -излучение свинца. Энергии K_{α} -группы равны 72,8 и 75,0 кэВ, т. е. $K_{\alpha 1}\text{Pb}$ в пределах энергетического разрешения спектрометров в этой области не разделяется от γ -линии 74,7 кэВ ^{243}Am и это является, в первую очередь, причиной отсутствия достоверных данных о ^{243}Am из измерений на обычном спектрометре.

В установке с антикомптоновским спектрометром используется комбинированная защита, обеспечивающая практически полное отсутствие $K_x\text{Pb}$.

Кроме этого, нами проведены и радиохимические исследования. Радионуклиды переводились в раствор кислотным

вскрытием топливных фрагментов с применением концентрированных HF , HNO_3 и HCl в тефлоновом стакане. После полного растворения фрагментов ЛТСМ полученный раствор упаривался до влажных солей. С помощью метода непосредственной α -спектрометрии [3] измерен изотопный состав α -излучателей. Для этого производилось электролитическое осаждение радионуклидов на диске из нержавеющей стали. Измерения проводили на α -спектрометрах Alpha Analyst. На рис. 2 и 3 показаны полученные спектры для фрагмента ТСМ из энергоблока № 4 ЧАЭС. Использование этого метода дало возможность оценить изотопный состав α -излучателей в топливных фрагментах.

Полученные данные приведены в табл. 1. Как видно, в пробе присутствуют ^{234}U , ^{235}U , ^{236}U , ^{238}U , $^{238-242}\text{Pu}$, $^{241-243}\text{Am}$, $^{242-244}\text{Cm}$.

Таблица 1. Относительные активности радионуклидов во фрагменте ТСМ и в неповрежденном твэле (на 2012 г.)

Изотоп	Фрагмент твэла	Фрагмент ТСМ
^{134}Cs	0,12	0,11
^{137}Cs	1000	1000
^{154}Eu	4,57	15
^{155}Eu	1,09	3,2
^{90}Sr	949	3292
^{234}U	0,05	0,13
^{235}U	0,001	0,004
^{236}U	0,01	0,02
^{238}U	0,02	0,05
^{242}Pu	0,03	0,10
$^{239,240}\text{Pu}$	14,7	48
^{238}Pu	7,19	29
$^{241}\text{Pu}^*$	163	820
^{243}Am	0,05	0,14
^{241}Am	27,8	83
$^{243,244}\text{Cm}$	0,64	1,79
$^{242}\text{Am}+^{242}\text{Cm}$	0,03	0,09
^{243}Cm	0,06	0,19

* ^{241}Pu измеряли на спектрометре TRI-CARB2500TR.

Обсуждение результатов. Расчеты выгорания (В) выполнены по формулам [4]

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

$$V(\text{Eu}) = 30,1 [A(^{154}\text{Eu})/A(^{155}\text{Eu})] - 11,1; \quad (2)$$

$$V(\text{Pu}) = -4,12 [A(^{238}\text{Pu})/A(^{239,240}\text{Pu})]^2 + 18,22[A(^{238}\text{Pu})/A(^{239,240}\text{Pu})] + 4,99, \quad (3)$$

где A — активность соответствующего нуклида на 26.04.1986.

Выгорание для фрагмента неразрушенного твэла, полученное из соотношения активностей изотопов ^{134}Cs , ^{137}Cs ,

^{154}Eu , ^{155}Eu и изотопов плутония, оказалось равным 11,0, 13,0 и 12,8 соответственно. Для фрагмента ЛТСМ из энергоблока № 4 ЧАЭС получены соотношения 10,0, 14,2 и 14,4 соответственно.

Как и в [7], видно, что наблюдается систематическое занижение величины выгорания, определенной по изотопным отношениям ^{134}Cs , ^{137}Cs , на 2—3 МВт \times сут/кг урана, по сравнению с расчетами по европию и плутонию. Это же наблюдается и в пробах почвы, отобранных вблизи объекта «Укрытие» [8]. Можно предположить, что коэффициенты для расчета выгорания по цезию занижены.

Одной из причин такого расхождения может быть выбор периодов полураспада. В различных источниках приводятся значения, отличающиеся друг от друга на 3—4 % [5, 6]. С учетом того, что с момента аварии прошло 26,6 года, эта ошибка может привести к значительным систематическим погрешностям.

Анализ данных об α -излучателях других нуклидов показывает значительные расхождения в оценках их наработки с теоретическими расчетами. Например, теоретическое значение для изотопного отношения $A(^{243}\text{Am})/A(^{241}\text{Am}) = 2,2 \times 10^{-3}$, т. е. завышено примерно на 30 % по сравнению с экспериментальными данными. В то же время сравнение активности ^{243}Am с суммарной активностью $^{239,240}\text{Pu}$ показывает, что в пределах точности измерений их соотношение совпадает с расчетными значениями [9].

Для данных образцов результаты теоретических расчетов по более тяжелым трансуронам оказались завышенными по сравнению с экспериментальными данными в 2—3 раза в зависимости от выгорания.

В α -спектре наблюдался α -пик, принадлежащий распаду ^{242}Cm . Учитывая, что период полураспада ^{242}Cm равен 162 сут, можно сделать вывод о том, что мы наблюдаем распад $^{242\text{m}}\text{Am}$ с периодом полураспада в 141 год на основное состояние ^{242}Am , который находится в равновесии с ^{242}Cm . Таким образом, мы наблюдаем цепочку $^{241,242,243}\text{Am}$, что также может значительно улучшить точность расчетов, позволяя получить отношение активностей изотопов $^{241,242,243}\text{Am}$ с высокой точностью. В результате при расчете выходов изотопов одного и того же элемента можно получить уточненный ряд ядерных параметров, так как устраняются неоднозначности, обусловленные потоком различных нейтронов.

Обратим также внимание на соотношение активностей ^{90}Sr и ^{137}Cs , которое значительно отличается от данных, полученных для фрагмента ТСМ из энергоблока № 4 (см. табл. 1). Как видно, в топливных фрагментах выход ^{90}Sr завышен в 3 раза по сравнению с выходом ^{137}Cs . Завышение активности ^{90}Sr по сравнению с ^{137}Cs может оказаться очень наглядным способом оценки роли «свежих» выпадений в почвах прилегающей к объекту «Укрытие» территории. Достаточно измерить соотношение $A(^{90}\text{Sr})/A(^{137}\text{Cs})$ в пробах почвы на поверхности и на глубине, где обычно соотношение $A(^{137}\text{Cs})/A(^{90}\text{Sr}) = 2...3$, и сравнить его с полученными результатами для топливных фрагментов, отобранных внутри объекта «Укрытие».

Измерение выгорания топлива предлагается выполнять по изотопным отношениям ^{134}Cs , ^{137}Cs ввиду простоты измерения этих активностей, несмотря на то что в настоящее время вклад ^{134}Cs не превышает десятых долей процента по сравнению с вкладом ^{137}Cs (см. табл. 1). Однако трудность, связанная с малой активностью ^{134}Cs в настоящее время, ввиду чего при измерениях одиночных спектров ее тяжело отделить от фона, легко преодолевается

использованием простой установки γ - γ -совпадений на базе NaI (Тl)-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 интенсивность γ -линии 661 кэВ будет подавлена в сотни раз, а интенсивность γ -линии 604 кэВ — не более чем в 2–3 раза в зависимости от размеров NaI (Тl)-детектора.

Выводы

Проведены исследования концентрации радионуклидов в образцах топлива из ЛТСМ, отобранных внутри объекта «Укрытие» в 2011–2012 годах. В γ -спектрах, кроме основных радионуклидов, наблюдались γ -переходы ^{243}Am и ^{243}Cm . В α -спектрах, кроме основных радионуклидов, выделены переходы изотопов урана, ^{242}Pu , ^{243}Am . Из полученных данных рассчитано выгорание по соотношению изотопов для различных элементов. Обнаружено систематическое занижение величины выгорания, определенной по изотопным отношениям $^{134},^{137}\text{Cs}$, на 2–3 МВт \times сут/кг урана по сравнению с расчетами по европию и плутонию.

Список использованной литературы

1. Относительно выгорания ядерного топлива / Э. М. Пазухин, Т. П. Макарова, А. В. Степанов // Радиохимия. — 2000. — Т. 42, № 6. — С. 527–532.
2. Атомно-ядерные эффекты в процессах внутренней конверсии γ -лучей / И. Н. Вишневский, В. А. Желтоножский, А. М. Зелинский, Л. В. Садовников, Н. В. Стрильчук, В. П. Хоменков, Ю. М. Шевченко // Зб. наук. праць ІЯД НАН України. — К., 1999. — № 3. — С. 60–64.
3. Комплексный анализ изотопного состава плутония в аварийном выбросе 4-го энергоблока ЧАЭС / А. П. Лашко, Т. Н. Лашко, А. А. Одинцов, В. П. Хоменков // 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. — 2003. — Т. 45, № 2. — С. 191–192.
5. Lederer C. M. Table of Isotopes / C. M. Lederer, V. S. Shirley. — Wiley-Interscience, New York, 1978; xx-1523-A64 pp.
6. Firestone R. B. Table of radioactive isotopes / Firestone R. B., Browne E., Shirley V. S. // A Wiley-Interscience Publication: John Wiley&Sons — New York, 1986.

7. Желтоножская М. В. Исследование изотопных отношений в почвенных разрезах 5-км зоны ЧАЭС / М. В. Желтоножская // Ядерна фізика та енергетика. — 2009. — Т. 10, № 4. — С. 409–412.

8. Вертикальная миграция радионуклидов на территории чернобыльских полигонов / М. Д. Бондарьков, С. П. Гашак, М. В. Желтоножская, Л. В. Садовников // Проблеми безпеки атомних електростанцій і Чорнобиля. — 2006. — Вип. 6. — С. 155–163.

9. Радионуклидно-физические характеристики топлива 4-го энергоблока ЧАЭС и оценка их погрешности. Справочник КЭ им. Курчатова, инв. № 11.07–06/172 / А. А. Боровой, А. А. Довбенко, В. М. Меркулов, А. А. Строганов. — Чернобыль, 1989. — 115 с.

References

1. Pazukhin E. M., Makarov T. P., Stepanov A. V. Regarding the nuclear fuel burn // Radiochemistry — 2000. — Vol. 42, № 6. — P. 527–532. (Rus)
2. Vishniewsky J. N., Zheltonozhsky V. A., Zielinski A. M., Sadovnikov L. V., Strilchuk N. V., Khomenkov V. P., Shevchenko Yu. M. Atomic nuclear effects in the processes of internal conversion of γ -rays // Zb. Naukovykh prats KINR, National Academy of Sciences of Ukraine. — Kiev, 1999. — № 3. — P. 60–64. (Rus)
3. Lashko A. P., Lashko T. N., Odintsov A. A., Khomenkov V. P. Comprehensive analysis of the isotopic composition of plutonium in the accidental release of the 4th unit of ChNPP // Atomic Energy. — 2001. — Vol. 91, Iss. 6. — P. 443–448. (Rus)
4. Borojov A. A., Pazukhin E. M. Ratios of isotopes of plutonium, depending on the degree of burn-up nuclear fuel // Radiochemistry. — 2003. — Vol. 45, № 2. — P. 191–192. (Rus)
5. Lederer C. M., Shirley V. S. Table of Isotopes. — Wiley-Interscience, New York, 1978; xx-1523-A64 pp.
6. Firestone R. B., Browne E., Shirley V. S. Table of radioactive isotopes // A Wiley-Interscience Publication: John Wiley&Sons. — New York, 1986.
7. Zheltonozhsky M. V. Study of isotope ratios in the soil profiles of 5-km zone around ChNPP // Nuclear Physics and Power Engineering. — 2009. — Vol. 10, № 4. — P. 409–412. (Rus)
8. Bondarkov M. D., Gaschak S. P., Zheltonozhskaya M. V., Sadovnikov L. V. Vertical migration of radionuclides in the Chernobyl polygons // Safety Problems Of Nuclear Power Plants And Chernobyl. — 2006. — Vol. 6. — P. 155–163. (Rus)
9. Borojov A. A., Dovbenko A. A., Merkulov V. M., Stroganov A. A. Radionuclide-physical characteristics of the fuel of the 4th unit ChNPP and assessment of their error. Reference book of KE Kurchatov, Inv. № 11.07–06/172. — Chernobyl, 1989. — 115 p.

Получено 06.06.2014.