

Д. М. Бондарьков<sup>1</sup>, М. В. Желтоножская<sup>2</sup>, А. М. Максименко<sup>1</sup>, Н. И. Панасюк<sup>3</sup>

<sup>1</sup> Международная радиэкологическая лаборатория,  
ул. 77-й Гвардейской Дивизии, 11, Славутич, 07100, Украина

<sup>2</sup> Институт ядерных исследований НАН Украины, просп. науки 47, Киев, 03680, Украина

<sup>3</sup> Институт проблем безопасности АЭС НАН Украины, ул. Лысогорская, 12, корп. 106, Киев, 03028, Украина

## ИССЛЕДОВАНИЕ КОНЦЕНТРАЦИИ РАДИОНУКЛИДОВ В ТОПЛИВОСОДЕРЖАЩИХ ОБРАЗЦАХ ИЗ ОБЪЕКТА «УКРЫТИЕ»

Проведены  $\gamma$ - и  $\alpha$ -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  $^{241}\text{Am}$ . Наблюдается систематическое расхождение значений выгорания, определенного по изотопам цезия по сравнению с другими радионуклидами. Обсуждаются причины таких различий.

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

### Введение

В результате аварии на 4-м энергоблоке ЧАЭС произошло попадание большого количества топливных фрагментов с различным выгоранием в окружающую среду, 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 из-за того, что 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 соотношение активностей изотопов. Если возможно существование различных форм в одном и том же образце, то тогда 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.

Изучение соотношения активностей изотопов цезия, европия и плутония позволяет оценить выгорание топлива в топливных фрагментах, что также является актуальной задачей, так как во время аварии происходило смешивание конструкционных материалов и твэлов с различной степенью выгорания. Необходимо отметить, что в абсолютном большинстве случаев выгорание рассчитывалось по соотношению активностей  $^{134,137}\text{Cs}$  [1]. Однако наличие ксенона в цепочке, по которой нарабатываются эти изотопы, может привести к значительной погрешности. В настоящий момент доступны для изучения выгорания активности  $^{134,137}\text{Cs}$ ,  $^{154,155}\text{Eu}$ , изотопы плутония и америция, что может помочь сделать более достоверные оценки выгорания топлива.

Кроме того, в результате процессов радиационного воздействия в местах протекания лавообразных ТСМ (ЛТСМ) в настоящее время идут интенсивные процессы деструкции на их поверхности. Из-за этого образуются десятки килограммов высокодисперсных аэрозолей с частицами размерами 0,06–0,3 мкм, которые содержат радионуклиды, характерные для облученного ядерного топлива. Эти аэрозоли могут являться дополнительным фактором загрязнения окружающей ЧАЭС территории в связи с большими отверстиями на крыше объекта «Укрытие».

Отметим также, что на основе знаний об отношении активностей нуклидов, таких как  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{243,244}\text{Cm}$ , по сравнению с активностью изотопов плутония можно сделать более точные оценки наработки трансурановых нуклидов, так как погрешность в расчетах трансурановых нуклидов с атомным числом больше 241 по современным прогнозам достигает 40 - 50 %.

### Методы экспериментов и результаты

Для исследований были отобраны топливные фрагменты из объекта «Укрытие», частицы отбиралась в местах, где протекали основные потоки лавы. Топливные фрагменты имели активность по  $^{137}\text{Cs}$  от  $10^4$  до  $10^7$  Бк/г. Масса частиц была 50 - 200 мкг. Для сравнительного анализа были также изучены  $\gamma$ - и  $\alpha$ -спектры для образца, полученного из неповрежденного твэла.

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

Большая 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  $\gamma$ -линии 59 кэВ  $^{241}\text{Am}$ . Эффективность этого спектрометра составляет 30 % по сравнению с NaI(Tl)-детектором размерами  $3'' \times 3'$ . Подавление комптоновского фона в низкоэнергетической области было не меньше, чем в восемь раз. Это позволило нам надежно идентифицировать активность  $^{243}\text{Am}$ .

На рис. 1 приведен фрагмент одного из измеренных  $\gamma$ -спектров в низкой энергетической области для топливного фрагмента. Требование высокой точности определения соотношения  $^{134,137}\text{Cs}$  и  $^{154,155}\text{Eu}$  обусловило необходимость обработки  $\gamma$ -спектров с использованием специализированного программного обеспечения. Для этого была адаптирована программа для обработки сложных мультиплетных спектров [2]. Программа предусматривает использование одной из одиночных  $\gamma$ -линий в качестве «табличной». Эта «табличная»  $\gamma$ -линия вписывалась в изучаемый фрагмент спектра. Таким образом, учитывалось влияние таких факторов, как искажение формы спектров при различных измерениях. Так как искажение формы  $\gamma$ -линии присутствует как в «табличной» линии, так и в изучаемых линиях, то автоматически влияние формы  $\gamma$ -линии исключается.

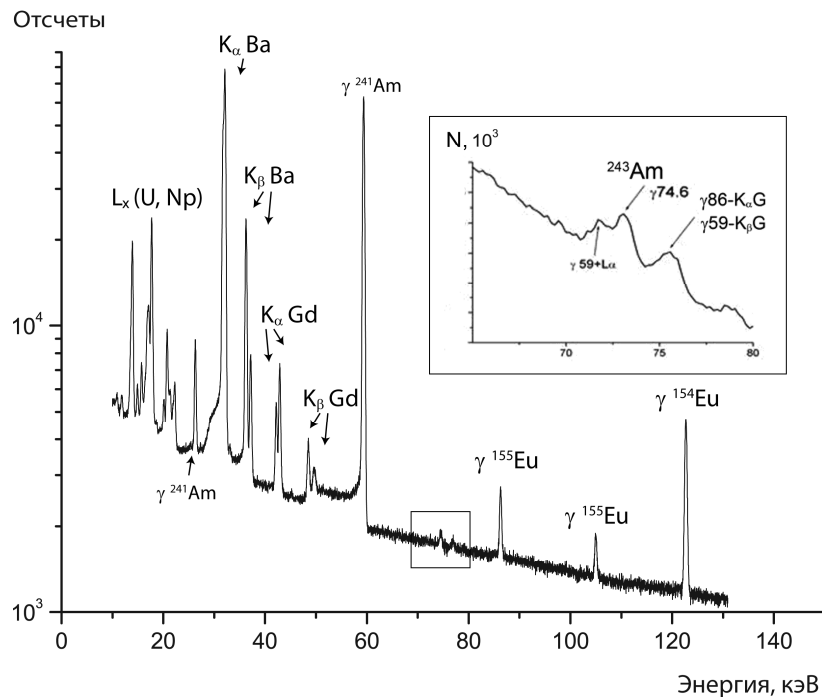


Рис. 1. Фрагменты  $\gamma$ -спектра, измеренного на антикомптоновском спектрометре.

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  $\gamma$ -линий с энергиями 73,4, 74,4, 76,6 и 77,1 кэВ. Эти  $\gamma$ -линии были нами идентифицированы как пики суммирования  $L_x$ -излучения нептуния с  $\gamma$ -линией 59 кэВ:  $\gamma$ -линия  $59 + L_{\alpha}$ ,  $\gamma$ -линия  $59 \text{ кэВ} + L_{\beta}$ ,  $\gamma$ -линия 74,67 кэВ  $^{243}\text{Am}$  и пик вылета  $\gamma$ -линия 86 кэВ –  $K_{\alpha}\text{Ge}$ .

При измерении  $\gamma$ -спектров на обычном спектрометре со свинцовой защитой всегда в  $\gamma$ -спектре присутствует  $K_x$ -излучение свинца. 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 обычном спектрометре.

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

Кроме этого, нами были проведены и радиохимические исследования. Для этого производили перевод радионуклидов в раствор путем кислотного вскрытия топливных фрагментов с применением концентрированных  $\text{HF}$ ,  $\text{HNO}_3$  и  $\text{HCl}$  в тефлоновом стакане. После полного растворения фрагментов ЛТСМ, полученный раствор упаривался до влажных солей. С помощью метода непосредственной  $\alpha$ -спектрометрии [3] был измерен изотопный состав  $\alpha$ -излучателей. Для этого производилось электро-

литическое осаждение радионуклидов на диске из нержавеющей стали. Измерения проводили на  $\alpha$ -спектрометрах Alpha Analyst. На рис. 2 и 3 показаны полученные спектры для фрагмента ТСМ из 4-го энергоблока ЧАЭС. Использование этого метода дало возможность оценить изотопный состав  $\alpha$ -излучателей в топливных фрагментах.

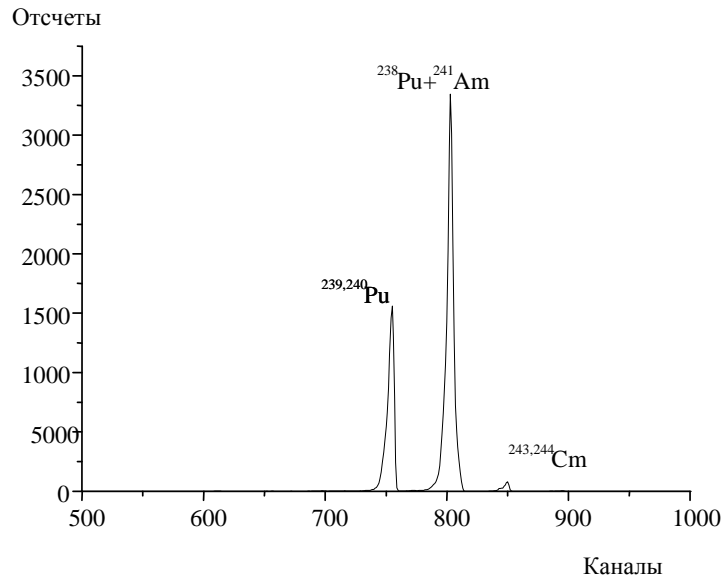


Рис. 2 Суммарный  $\alpha$ -спектр.

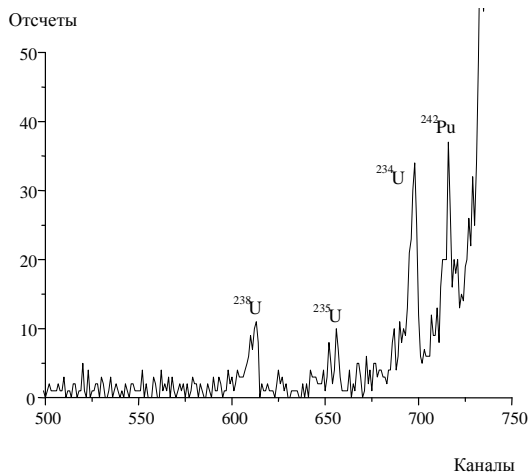


Рис. 3. Фрагмент суммарного  $\alpha$ -спектра, область урана и  $^{242}\text{Pu}$ .

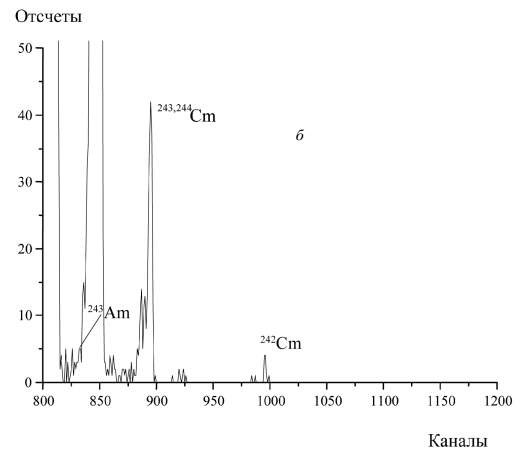


Рис. 4. Фрагмент суммарного  $\alpha$ -спектра, область  $^{243,244}\text{Cm}$ .

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

**Относительные активности радионуклидов в фрагменте ТСМ и в неповрежденном твэле (на 2012 г.)**

Изотоп	Фрагмент твэла	Фрагмент ТСМ
$^{134}\text{Cs}$	0,12	0,11
$^{137}\text{Cs}$	1000	1000
$^{154}\text{Eu}$	4,57	15
$^{155}\text{Eu}$	1,09	3,2

Изотоп	Фрагмент твэла	Фрагмент ТСМ
<sup>90</sup> Sr	949	3292
<sup>234</sup> U	0,05	0,13
<sup>235</sup> U	0,001	0,004
<sup>236</sup> U	0,01	0,02
<sup>238</sup> U	0,02	0,05
<sup>242</sup> Pu	0,03	0,10
<sup>239,240</sup> Pu	14,7	48
<sup>238</sup> Pu	7,19	29
<sup>241</sup> Pu*	163	820
<sup>243</sup> Am	0,05	0,14
<sup>241</sup> Am	27,8	83
<sup>243,244</sup> Cm	0,64	1,79
<sup>242</sup> Am+ <sup>242</sup> Cm	0,03	0,09
<sup>243</sup> Cm	0,06	0,19

\* <sup>241</sup>Pu измеряли на спектрометре TRI-CARB2500TR.

### Обсуждение результатов

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

$$\begin{aligned}
 B(\text{Cs}) &= 24,2 [A(^{134}\text{Cs})/A(^{137}\text{Cs})] - 1,2 \quad (1) \\
 B(\text{Eu}) &= 30,1 [A(^{154}\text{Eu})/A(^{155}\text{Eu})] - 11,1 \quad (2) \\
 B(\text{Pu}) &= -4,12 [A(^{238}\text{Pu})/A(^{239,240}\text{Pu})]^2 + 18,22[A(^{238}\text{Pu})/A(^{239,240}\text{Pu})] + 4,99, \quad (3)
 \end{aligned}$$

где А - активность соответствующего нуклида на 26 апреля 1986 г. Например, выгорание для фрагмента неразрушенного твэла, полученное из соотношения изотопов <sup>134,137</sup>Cs, <sup>154,155</sup>Eu и изотопов плутония оказалось равным 11,0, 13,0 и 12,8 соответственно. Для фрагмента ЛТСМ из 4-го энергоблока ЧАЭС были 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 <sup>134,137</sup>Cs, на 2-3 МВт·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 таблицах приводятся разные 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 <sup>243</sup>Am/<sup>241</sup>Am составляет величину  $2,2 \cdot 10^{-3}$ , т.е. завышено примерно на 30 % по сравнению с экспериментальными данными. В то же время сравнение активности <sup>243</sup>Am с суммарной активностью <sup>239,240</sup>Pu показывает, что в пределах точности измерений их соотношение совпадает с расчетными значениями [9].

Для данных образцов теоретические расчеты для более тяжелых трансуранов оказались завышенными по сравнению с экспериментальными данными в два-три раза в зависимости от выгорания.

В α-спектре наблюдался α-пик, принадлежащий распаду <sup>242</sup>Cm. Учитывая, что  $T_{1/2}^{242}\text{Cm} = 162$  сут, можно сделать вывод о том, что мы наблюдаем распад <sup>242m</sup>Am с  $T_{1/2} = 141$  год на основное состояние <sup>242</sup>Am, который находится в равновесии с <sup>242</sup>Cm. Таким образом, мы наблюдаем цепочку <sup>241,242,243</sup>Am, что также может значительно улучшить точность расчетов, так как позволяет получить отношение активностей изотопов <sup>241,242,243</sup>Am. Таким образом, при расчете выходов изотопов одного и того же элемента можно получить уточненный ряд ядерных параметров, так как убираются неоднозначности, обусловленные потоком различных нейтронов.

Нам бы хотелось также обратить внимание на соотношение  $^{90}\text{Sr}$  и  $^{137}\text{Cs}$ . Это соотношение значительно отличается от данных, полученных для фрагмента ТСМ из 4-го энергоблока (см. таблицу). Как видно, в топливных фрагментах выход  $^{90}\text{Sr}$  завышен в три раза по сравнению с  $^{137}\text{Cs}$ . Это может оказаться очень удобным способом оценки роли «свежих» выпадений в почвах прилегающей к объекту «Укрытие» территории. Для этого достаточно измерить соотношение  $A(^{90}\text{Sr})/A(^{137}\text{Cs})$  в пробах почвы на поверхности и на глубине, где обычно соотношение  $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr} = 2-3$ , и сравнить с полученными результатами для топливных фрагментов, отобранных внутри объекта «Укрытие».

Измерение выгорания топлива нами предлагается выполнять по изотопным отношениям  $^{134,137}\text{Cs}$  из-за простоты измерения этих активностей несмотря на то, что в настоящее время вклад  $^{134}\text{Cs}$  не превышает десятые доли процента по сравнению с  $^{137}\text{Cs}$  (см. таблицу). Однако эта трудность легко преодолевается с использованием простой установки  $\gamma$ - $\gamma$ -совпадений на базе NaI (Тl)-детектора большого размера и германиевого детектора. Распад  $^{134}\text{Cs}$  идет в основном каскадом двух  $\gamma$ -переходов с энергиями 604 и 796 кэВ, поэтому в такой установке в интегральных совпадениях интенсивность  $\gamma$ -линии 661 кэВ будет подавлена в сотни раз, а интенсивность  $\gamma$ -линии 604 кэВ не более чем в два-три раза в зависимости от размеров NaI (Тl)-детектора.

### Выводы

Проведены исследования концентрации радионуклидов в образцах топлива и ЛТСМ, отобранных внутри объекта «Укрытие» в 2011 - 2012 гг. В  $\gamma$ -спектрах, кроме основных радионуклидов наблюдались  $\gamma$ -переходы  $^{243}\text{Am}$  и  $^{243}\text{Cm}$ . В  $\alpha$ -спектрах кроме основных радионуклидов выделены переходы изотопов урана,  $^{242}\text{Pu}$ ,  $^{243}\text{Am}$ . Из полученных данных рассчитано выгорание по соотношению изотопов для различных элементов.

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Пазухин Э. М., Макарова Т. П., Степанов А. В. и др. Относительно выгорания ядерного топлива // Радиохимия. – 2000. – Т. 42, № 6. – С. 527 – 532.
2. Вишневецкий И. Н., Желтоножский В. А., Зелинский А. М. и др. Атомно-ядерные эффекты в процессах внутренней конверсии  $\gamma$ -лучей // Зб. наук. праць ІЯД НАН України. – 1999. – № 3. – С. 60 – 64.
3. Лашко А. П., Лашко Т. Н., Одинцов А. А. и др. Комплексный анализ изотопного состава плутония в аварийном выбросе 4-го энергоблока ЧАЭС // Атомная энергия. – 2001. – Т. 91, вып.6. – С. 443 – 448.
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.
7. Желтоножская М. В. Исследование изотопных отношений в почвенных разрезах 5-км зоны ЧАЭС // Ядерна фізика та енергетика. – 2009. – Т. 10, № 4. – С. 409 – 412.
8. Бондарьков М.Д., Гацак С.П., Желтоножская М.В. и др. Вертикальная миграция радионуклидов на территории чернобыльских полигонов // Проблеми безпеки атомних електростанцій і Чорнобиля. – 2006. – Вип. 6. – С. 155 – 163.
9. Боровой А.А., Довбенко А.А., Меркулов В.М., Строганов А.А. Радионуклидно-физические характеристики топлива 4-го энергоблока ЧАЭСМ и оценка их погрешности. Справочник КЭ им. Курчатова, инв. № 11.07-06/172. – Чернобыль, 1989.

Д. М. Бондарков<sup>1</sup>, М. В. Желтоножська<sup>2</sup>, А. М. Максименко<sup>1</sup>, М. І. Панасюк<sup>3</sup>

<sup>1</sup> Міжнародна радіоекологічна лабораторія,  
вул. 77-ї Гвардійської Дивізії, 11, Славутич, 07100, Україна

<sup>2</sup> Інститут ядерних досліджень НАН України, просп. Науки, 47, Київ, 03680, Україна

<sup>3</sup> Інститут проблем безпеки АЕС НАН України, вул. Лисогірська, 12, корп. 106, Київ, 03028, Україна

### ДОСЛІДЖЕННЯ КОНЦЕНТРАЦІЇ РАДІОНУКЛІДІВУ ПАЛИВОВМІЩУЮЧИХ ЗРАЗКАХ З ОБ'ЄКТА «УКРИТТЯ»

Проведено  $\gamma$ - та  $\alpha$ -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  $^{241}\text{Am}$ . Спостерігається систематична розбіжність значень виго-

рвання, визначеного з ізотопів цезію в порівнянні з іншими радіонуклідами. Обговорюються причини таких відмінностей.

*Ключові слова:* спектроскопія, паливовмісні матеріали, цезій, європій, плутоній, америцій, кюрій.

**D. M. Bondarkov<sup>1</sup>, M. V. Zheltonozhska<sup>2</sup>, A. M. Maksimenko<sup>1</sup>, M. I. Panasyuk<sup>3</sup>**

<sup>1</sup> *International Radioecology Laboratory, 77th Guards Division Str., 11, Slavutich, 07100, Ukraine*

<sup>2</sup> *Institute for Nuclear Research National Academy of Sciences of Ukraine,  
Prospekt Nauky, 47, Kyiv, 03680, Ukraine*

<sup>3</sup> *Institute for Safety Problems of Nuclear Power Plants NAS of Ukraine, Lysogirska Str., 12, building 106,  
Kyiv, 03028, Ukraine*

### RESEARCH OF RADIONUCLIDE CONCENTRATIONS IN THE FUEL-CONTAINING SAMPLES FROM «UKRYTTYA» OBJECT

The  $\gamma$ - and  $\alpha$ -spectroscopic studies of fuel-containing materials samples selected within the «Ukryttya» Object. The isotopic relations for cesium, europium, plutonium, americium, curium were measured and the fuel burnout was defined in the studied samples. There is the divergence between the theoretical estimates of the produced time for all radionuclides above <sup>241</sup>Am. There is a systematic difference of values of a burnout defined in the isotopes Cs in comparison with other radionuclides. The reasons for these differences are discusses.

*Keywords:* spectroscopy, fuel containing materials, cesium, europium, plutonium, americium, curium.

#### REFERENCES

1. *Pazukhin E. M., Makarov T. P., Stepanov A. V. et al.* Regarding the nuclear fuel burn // *Radiochimiya*. – 2000. – Vol. 42, № 6. – P. 527 – 532. (Rus)
2. *Vishniowsky J. N., Zheltonozhsky V. A., Zielinski A. M. et al.* Atomic nuclear effects in the processes of internal conversion of  $\gamma$ -rays // *Zb. Naukovykh prats KINR, National Academy of Sciences of Ukraine*. – 1999. – № 3. – P. 60 – 64. (Rus)
3. *Lashko A. P., Lashko T.N., Odintsov A.A. et al.* Comprehensive analysis of the isotopic composition of plutonium in the accidental release of the 4<sup>th</sup> unit of ChNPP // *Atomyaya Energiya*. – 2001. – Vol. 91, Iss. 6. – P. 443 – 448. (Rus)
4. *Borovoj A.A., Pazukhin E.M.* Ratios of isotopes of plutonium, depending on the degree of burn-up nuclear fuel // *Radiochimiya*. – 2003. – Vol. 45, № 2. – P. 191 – 192. (Rus)
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.
7. *Zheltonozhsky M. V.* Study of isotope ratios in the soil profiles of 5- km zone around ChNPP // *Yaderna Physica ta Energetyka*. – 2009. – Vol. 10, № 4. – P. 409 – 412. (Rus)
8. *Bondarkov M.D., Gaschak S.P., Zheltonozhskaya M.V. et al.* Vertical migration of radionuclides in the Chernobyl polygons // *Safety Problems Of Nuclear Power Plants And Chernobyl*. – 2006. – Iss. 6. – P. 155 – 163. (Rus)
9. *Borovoj A.A., Dovbenko A.A., Merkulov V.M., Stroganov A.A.* Radionuclide-physical characteristics of the fuel of the 4<sup>th</sup> unit ChNPP and assessment of their error. Reference book of KE Kurchatov, Inv. № 11.07-06/172. – Chernobyl, 1989. (Rus)

Надійшла 04.06.2014  
Received 04.06.2014