

ВИЗНАЧЕННЯ ВМІСТУ АЛЬФА-ВИПРОМІНЮВАЧІВ У “ПАЛИВНИХ” ЧАСТИНКАХ МЕТОДОМ БЕЗПОСЕРЕДНЬОЇ АЛЬФА-СПЕКТРОСКОПІЇ

А.П. Лашко, Т.М. Лашко, О.О. Одинцов

Запропоновано методику визначення вмісту ^{238}U , ^{234}U , ^{242}Pu , ^{241}Pu , $^{240}\text{Pu}+^{239}\text{Pu}$, ^{238}Pu , ^{243}Am , ^{241}Am , ^{244}Cm та ^{242}Cm у “паливних” частинках. Встановлено, що нижній рівень детектування радіоізоотопів становить 0.001 Бк/част.

Розроблена методика, яка дозволяє без радіохімічного розділення нуклідів визначати вміст урану та трансуранових елементів у “паливних” частинках, складається з трьох основних етапів.

На першому етапі готують джерело випромінювання, придатне для альфа-спектроскопії.

“Гаряча” частинка послідовно обробляється одномолярною соляною кислотою протягом 24 год, потім восьмимольною азотною кислотою при температурі 95 °С протягом 2 год, потім сумішшю восьмимольної азотної кислоти та 30 %-ного перекису водню. При цьому трансуранові елементи з уранової матриці переходять у розчин (табл. 1).

Таблиця 1. Ступінь переходу плутонію та америцію у вилужуючий розчин, %

| Вилужуючий розчин | $^{239+240}\text{Pu}$ | ^{241}Am |
|---|-----------------------|-------------------|
| 1 моль/л HCl | 2.8 | 3.7 |
| 8 моль/л HNO ₃ | 86.6 | 92.4 |
| 8 моль/л HNO ₃ + 30% H ₂ O ₂ | 10.6 | 3.9 |

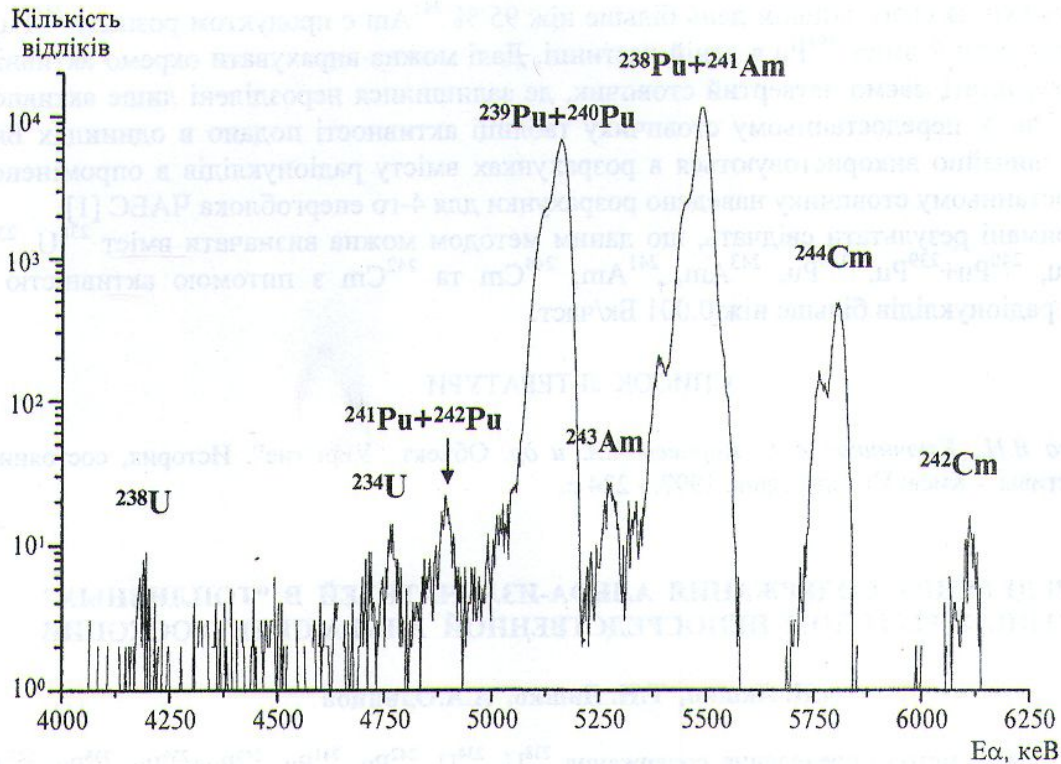
З таблиці видно, що плутоній та америцій по-різному вилужуються з “паливної” частинки, але в результаті такої послідовної обробки вони повністю переходять у розчин.

Далі отримані розчини упарюються із сульфатом натрію, сухий залишок розчиняється в 1 %-ній сірчаній кислоті й переноситься в комірку для електролізу. Оскільки вилужуючі розчини зразу після деконтації упарювалися без додаткових радіохімічних операцій, сухий залишок містить уран, продукти поділу урану (^{90}Sr , ^{125}Sb , ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{154}Eu , ^{155}Eu тощо) і трансуранові елементи.

Електролітичне осадження радіонуклідів проводиться на диски полірованої нержавіючої сталі (діаметр активної плями 12 мм) при густині струму близько 200 мА/см², напрузі 10 В протягом 30 - 40 хв при кімнатній температурі. У даних умовах відбувається практично повне співосадження ізоотопів урану, Європію, плутонію, америцію та кюрію. Ізотопи стронцію, стибію та цезію залишаються в розчині. Вихід плутонію при електролізі, визначений по “міткам” ^{236}Pu і ^{242}Pu , складає 92 - 96 %. Ступінь осадження урану спеціально не вивчався, але можна припустити, що вихід урану не гірший за плутоній.

На другому етапі виконують прецизійні виміри альфа- та гамма-спектрів джерела випромінювання.

Для вимірювання альфа-спектра використано восьмиканальний альфа-спектрометр ОСТЕТЕ РС з напівпровідниковими кремнієвими детекторами серії ULTRA. На рисунку показано альфа-спектр “паливної” частинки, відібраної в 1986 р. у м. Прип’ять.



Дуже добре видно альфа-лінії ^{238}U , ^{234}U , ^{242}Pu , ^{241}Pu , ^{240}Pu , ^{239}Pu , ^{238}Pu , ^{243}Am , ^{241}Am , ^{244}Cm та ^{242}Cm .

Активність ^{241}Am виміряно на гамма-спектрометрі з напівпровідниковими HPGe-детекторами GMX-30190 та GLP-36360/13.

Результати вимірів альфа- та гамма-спектрів наведено відповідно в другому та третьому стовпчиках табл. 2.

Таблиця 2. Результати аналізу “паливної” частинки, відібраної в 1986 р. у м. Прип’ять. Активності приведені на 26 квітня 1998 р.

| Нуклід | Активність із α -спектра, Бк/част. | Активність із γ -спектра, Бк/част. | Результуюча активність, Бк/част. | Результуюча активність, Бк/кг урану | Розрахунок, Бк/кг урану [1] |
|-------------------|---|---|----------------------------------|-------------------------------------|-----------------------------|
| ^{238}U | 0.0055 ± 0.0010 | | 0.0055 ± 0.0010 | $(1.24 \pm 0.23) \cdot 10^7$ | $1.2 \cdot 10^7$ |
| ^{234}U | 0.0136 ± 0.0026 | | 0.0136 ± 0.0026 | $(3.1 \pm 0.8) \cdot 10^7$ | - |
| ^{242}Pu | Σ | | 0.0094 ± 0.0026 | $(2.1 \pm 0.7) \cdot 10^7$ | $1.4 \cdot 10^7$ |
| ^{241}Pu | 0.0204 ± 0.0029 | 482 ± 29 | 482 ± 29 | $(1.09 \pm 0.22) \cdot 10^{12}$ | $5.4 \cdot 10^{11}$ |
| ^{240}Pu | Σ | | Σ | Σ | Σ |
| ^{239}Pu | 10.9 ± 0.6 | | 10.9 ± 0.6 | $(2.5 \pm 0.5) \cdot 10^{10}$ | $1.3 \cdot 10^{10}$ |
| ^{238}Pu | Σ | | 4.50 ± 0.23 | $(1.02 \pm 0.20) \cdot 10^{10}$ | $7.1 \cdot 10^9$ |
| ^{241}Am | 16.9 ± 0.8 | 12.4 ± 0.7 | 12.4 ± 0.7 | $(2.8 \pm 0.6) \cdot 10^{10}$ | $1.5 \cdot 10^{10}$ |
| ^{243}Am | 0.027 ± 0.003 | | 0.027 ± 0.003 | $(6.1 \pm 1.3) \cdot 10^7$ | $5.1 \cdot 10^7$ |
| ^{244}Cm | 0.67 ± 0.03 | | 0.67 ± 0.03 | $(1.5 \pm 0.3) \cdot 10^9$ | $1.1 \cdot 10^9$ |
| ^{242}Cm | 0.0171 ± 0.0014 | | 0.0171 ± 0.0014 | $(3.9 \pm 0.8) \cdot 10^7$ | - |

На третьому етапі проводиться комплексний аналіз експериментальних даних з метою отримати найбільш повну інформацію про вміст окремих радіонуклідів у “паливній” частинці.

Оскільки на сьогоднішній день більше ніж 95 % ^{241}Am є продуктом розпаду ^{241}Pu , то легко розрахувати й вміст ^{241}Pu в даній частинці. Далі можна вирахувати окремо активність ^{242}Pu і в результаті маємо четвертий стовпчик, де залишилися нерозділені лише активності ^{239}Pu та ^{240}Pu . У передостанньому стовпчику таблиці активності подано в одиницях Бк/кг урану, які звичайно використовуються в розрахунках вмісту радіонуклідів в опромінену паливі. В останньому стовпчику наведено розрахунки для 4-го енергоблока ЧАЕС [1].

Отримані результати свідчать, що даним методом можна визначати вміст ^{238}U , ^{234}U , ^{242}Pu , ^{241}Pu , $^{240}\text{Pu}+^{239}\text{Pu}$, ^{238}Pu , ^{243}Am , ^{241}Am , ^{244}Cm та ^{242}Cm з питомою активністю по кожному з радіонуклідів більше ніж 0.001 Бк/част.

СПИСОК ЛІТЕРАТУРИ

1. Герасько В.Н., Ключников А.А., Корнеев А.А. и др. Объект "Укрытие". История, состояние и перспективы. - Киев: Интерграфик, 1997. - 224 с.

ОПРЕДЕЛЕНИЕ СОДЕРЖАНИЯ АЛЬФА-ИЗЛУЧАТЕЛЕЙ В "ТОПЛИВНЫХ" ЧАСТИЦАХ МЕТОДОМ НЕПОСРЕДСТВЕННОЙ АЛЬФА-СПЕКТРОСКОПИИ

А.П. Лашко, Т.Н. Лашко, А.А.Одинцов

Предложен метод определения содержания ^{238}U , ^{234}U , ^{242}Pu , ^{241}Pu , $^{240}\text{Pu}+^{239}\text{Pu}$, ^{238}Pu , ^{243}Am , ^{241}Am , ^{244}Cm и ^{242}Cm в "топливных" частицах. Установлено, что нижний уровень детектирования радионуклидов составляет 0.001 Бк/част.

THE DETERMINATION OF ALPHA-RAY EMITTER CONTENT IN "HOT" PARTICLES BY MEANS OF THE DIRECT ALPHA-SPECTROSCOPY METHOD

A.P. Lashko, T.N. Lashko, A.A. Odintsov

The method of the determination of ^{234}U , ^{238}U , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Pu , ^{242}Pu , ^{241}Am , ^{243}Am , ^{242}Cm and ^{244}Cm content in "hot" particles was proposed. It is defined that the detection limit of these radioisotopes is 0.001 Bq.