

ПРО ДОЦІЛЬНІСТЬ ВИМІРІВ ^{137}Cs ПРИ ВИЗНАЧЕННІ ЗАБРУДНЕННЯ НАВКОЛИШНЬОГО СЕРЕДОВИЩА ТРАНСУРАНОВИМИ ЕЛЕМЕНТАМИ

В. А. Агєєв, А. П. Лашко, Т. М. Лашко, О. О. Одинцов

Радіохімічним та гамма-спектрометричним методами визначено вміст ^{241}Am у 23 пробах ґрунту, відібраних у напрямках основних слідів викиду радіонуклідів з рівнями забруднення місцевості ^{137}Cs від 4 до 1200 $\text{Кі}/\text{км}^2$ та співвідношеннями Cs/Am від 60 до 7000. На основі аналізу експериментальних даних зроблено висновок про доцільність вимірів ^{137}Cs при визначенні забруднення навколишнього середовища трансурановими елементами у всій зоні впливу аварії на ЧАЕС.

Ядерні реактори - генератори величезної кількості штучних радіонуклідів, основні з яких - продукти поділу та актиноїди. До продуктів поділу прийнято відносити не тільки радіонукліди, отримані безпосередньо в результаті (n,f)-реакцій поділу важких ядер, але й ті радіонукліди, що утворилися в результаті радіоактивних перетворень і ядерних реакцій типу (n, γ), (n,2n) і т.п. на радіоактивних та стабільних продуктах поділу. Згідно з [1], в ядерних реакторах генерується до 600 радіонуклідів з масовими числами від 72 до 166 і біля 60 актиноїдів - трансуранових та трансплутонієвих елементів. Більшість з них характеризується малими періодами напіврозпаду (від кількох секунд до десятків діб), тому довгоживучих радіонуклідів не так багато. Це ^{85}Kr , ^{90}Sr , ^{106}Ru , $^{110\text{m}}\text{Ag}$, ^{125}Sb , $^{127\text{m}}\text{Te}$, $^{134, 137}\text{Cs}$, ^{144}Ce , ^{147}Pm , $^{154, 155}\text{Eu}$, $^{238-242, 244}\text{Pu}$, $^{241-243}\text{Am}$, $^{242-248}\text{Cm}$. Переважна більшість із них є альфа- та бета-випромінювачами.

Фізико-хімічні властивості радіоактивного забруднення території внаслідок аварії на ЧАЕС обумовлені впливом багатокомпонентної аеродисперсної системи, яка складається з аерозолів різного походження [2]:

частинок диспергованого палива діоксиду урану (паливні частинки);

частинок диспергової інклюдивної речовини, що складається з суміші ізоотопів рутенію, родію, срібла, технецію; відторгнутих із діоксиду урану при високих температурах ("гарячі" частинки);

конденсаційних аерозолів, що утворилися в струмені викиду шляхом конденсації випарів радіоактивних елементів на поверхню аерозольних частинок та на атмосферні ядра конденсації;

фрактальних структур - конденсаційних аерозолів і конгломератів, основу яких становлять частинки сажі з об'ємною густиною, практично рівною густині повітря;

радіоактивних інертних газів та різних фізико-хімічних форм ізоотопів йоду.

На відміну від радіонуклідів "летючих" елементів (йоду, телуру та цезію) забруднення природного середовища ближньої зони ЧАЕС трансурановими і трансплутонієвими елементами обумовлено паливними частинками. Характерною особливістю проб ґрунту чи інших складових навколишнього середовища, що містять кілька десятків паливних частинок, є близькість експериментальних радіонуклідних співвідношень "нелетючих" елементів до відповідних, розрахованих для доаварійного 4-го блока ЧАЕС. Іншими словами, такого роду проби можна вважати "репрезентуючими" передаварійне паливо.

Для визначення вмісту трансуранових елементів використовують радіохімічний та гамма-спектрометричний методи, а також метод ізоотопних кореляцій.

Гамма-спектрометричний метод базується на реєстрації гамма- і рентгенівських квантів [3, 4]. Слід відзначити, що ^{241}Am - єдиний із довгоживучих актиноїдів, який має зручну для вимірювання та достатньо інтенсивну гамма-лінію.

Метод ізотопних кореляцій можна використовувати, якщо між концентраціями радіонуклідів існують постійні співвідношення. Так, наприклад, в роботі [5] концентрацію плутонію в зоні аварії на ЧАЕС оцінювали за коефіцієнтом кореляції $^{144}\text{Ce}/\text{Pu}$. У даний час, внаслідок розпаду ^{144}Ce , це здійснити неможливо. Тому сьогодні більш перспективним є визначення вмісту трансуранових елементів за результатами вимірів інтенсивності гамма-випромінювання ^{241}Am . Коефіцієнт кореляції можна отримати або за даними радіохімічних аналізів, або, як пропонується в роботі [6], за даними рентгеноспектрометричних вимірів.

Радіохімічний метод на сьогоднішній день залишається найбільш чутливим і використовується там, де перші два методи не дають результатів.

Звичайно при радіохімічному аналізі проби з неї відбирають 2 - 4 наважки. Це обумовлено двома причинами: по-перше - високою трудоемкістю та вартістю аналізу всієї проби; по-друге - необхідністю забезпечити приблизно рівні активності трансуранових елементів та радіоактивних "міток", які використовуються для визначення хімічного виходу.

Так, наприклад, хімічний вихід ^{241}Am визначається за допомогою радіоактивної "мітки" ^{243}Am . В альфа-спектрі лінії ^{243}Am мають меншу енергію, ніж лінії ^{241}Am , а отже, знаходяться на "передньому хвості" лінії ^{241}Am . За нашими оцінками, вклад "переднього хвоста" альфа-спектра внаслідок самопоглинання альфа-частинок у джерелі випромінювання в інтенсивності альфа-груп з більш низькою енергією у звичайних умовах не перевищує 1 %. Але це справедливо лише при приблизно рівних активностях ^{243}Am та ^{241}Am . Аналогічна ситуація складається й при альфа-спектрометрії плутонієвої фракції, коли в якості радіоактивної "мітки" використовують ^{242}Pu .

Тепер виникає питання, як перенести дані радіохімічного аналізу наважок на всю пробу. Є два шляхи:

- а) зробити перерахунок за масою;
- б) зробити перерахунок за активністю якогось гамма-випромінюючого радіонукліду.

У перші роки після аварії на ЧАЕС для цього використовували ^{144}Ce , сьогодні реальним є лише використання ^{137}Cs .

Відомо, що щільність забруднення територій ^{137}Cs внаслідок Чорнобильської катастрофи коливається в досить широкій межі - від майже фонових рівнів до 20 - 30 $\text{Ки}/\text{км}^2$ поблизу ЧАЕС. При цьому співвідношення активностей Cs/Am може змінюватись, починаючи від "паливних" значень $\sim 50 - 60$, до $\sim 10^5$ у місцях окремих "цезієвих плям". І якщо ^{137}Cs є хорошим маркером трансуранових елементів у випадку, коли його активність визначається в основному "паливною" складовою, то там, де його активність обумовлена в основному "конденсаційною" складовою, використання ^{137}Cs як маркера є звичайно проблематичним.

Для розв'язання цього питання було відібрано 23 проби ґрунту в напрямках південного, південно-західного, західного, північно-західного та північно-східного слідів викиду радіонуклідів з рівнями забруднення місцевості ^{137}Cs від 4 до 1200 $\text{Ки}/\text{км}^2$ та співвідношеннями Cs/Am від 60 до 7000. Було проведено радіохімічний аналіз на америцій з перерахунком як за масою, так і за активністю ^{137}Cs та визначено вміст америцію в цій пробі гамма-спектрометричним методом.

Концентрація та виділення без носіїв ^{241}Am із проб ґрунту проводилась за методикою [7] та детально описана в роботі [8].

Джерела для альфа-спектрометричних вимірів готували електрохімічним висадженням америцію на диски з полірованої нержавіючої сталі із сірчанокислого розчину з $\text{pH} = 2.2$. Хімічний вихід америцію, визначений за допомогою радіоактивної "мітки" ^{243}Am , складає $60 \div 80 \%$.

Альфа-спектри вимірювали на восьмиканальному альфа-спектрометрі ОСТЕТЕ РС фірми ORTEC з напівпровідниковими кремнієвими детекторами серії ULTRA. Висока роздільна здатність (менше 19 кеВ на лініях ^{241}Am) та низький власний фон приладу (біля

одного відліку за добу в областях локалізації основних альфа-груп) при ефективності реєстрації близько 25 % дозволяють впевнено детектувати активності до 10^{-14} Кі.

Для вимірювання гамма-спектрів використовували гамма-спектрометри на базі напівпровідникових детекторів GMX-30190, GEM-40195, GLP-36360/13 та багатоканального буфера 919 SPECTRUM MASTER, а також антикомptonівський гамма-спектрометр виробництва CANBERRA з коефіцієнтом пригнічення комптонівського фону від ^{137}Cs близько 8.

Обробка альфа- та гамма-спектрів проводилась на ПЕОМ методом найменших квадратів шляхом вписування табличної лінії у відповідну ділянку спектра аналогічно роботі [9].

Результати радіохімічного аналізу 23 проб ґрунту, відібраних у напрямках основних слідів викиду, наведено в таблиці. Причому перерахунок зроблено як за масою, так і за активністю ^{137}Cs . Тут же наведено дані гамма-спектрометрії. Вони представляють собою зважені результати вимірів вмісту ^{241}Am у пробі на кількох гамма-спектрометрах.

Номер проби	Шифр проби	^{241}Am , Бк/пробу			Cs/Am
		Радіохімічний аналіз		Гамма-спектрометрія	
		Перехід за масою	Перехід за ^{137}Cs		
1	СПнЗ2-1-3	440 ± 40	330 ± 50	333 ± 10	53 ± 2
2	СПд-12-6	1.35 ± 0.22	2.0 ± 0.4	3.8 ± 0.3	63 ± 5
3	СПд1-3-5	31 ± 4	40 ± 6	48.2 ± 2.2	100 ± 5
4	СПд-12-2	2.5 ± 0.4	2.6 ± 0.4	2.01 ± 0.24	103 ± 12
5	СПд-12-1	2.1 ± 0.4	2.5 ± 0.5	3.13 ± 0.28	108 ± 10
6	СЗ-4-7	198 ± 20	235 ± 24	293 ± 16	140 ± 7
7	СЗ-4-5	291 ± 29	240 ± 24	356 ± 11	154 ± 5
8	СЗ-16-2	47 ± 7	38 ± 11	39.3 ± 1.6	164 ± 7
9	СПдЗ-8А-3	3.4 ± 0.5	5.3 ± 0.7	5.4 ± 0.7	260 ± 30
10	СПнС-10А-9	28 ± 4	19 ± 3	28.5 ± 1.4	271 ± 14
11	СПдЗ-8А-1	3.5 ± 0.5	5.0 ± 0.7	6.5 ± 0.6	300 ± 30
12	СПдЗ-8А-7	4.2 ± 0.6	5.0 ± 0.7	6.2 ± 0.6	310 ± 30
13	СПнС-10А-1	13.6 ± 2.3	26 ± 4	38.3 ± 1.9	400 ± 20
14	СПнС-10А-3	48 ± 7	56 ± 13	53.9 ± 2.4	420 ± 20
15	СПнС-10А-5	56 ± 15	49 ± 7	54.3 ± 2.8	470 ± 20
16	СПнС-10А-7	70 ± 10	57 ± 8	74 ± 3	630 ± 30
17	СПдЗ-8-4	8.5 ± 1.2	3.3 ± 0.5	3.6 ± 0.6	860 ± 150
18	СПнС1-2-1	48 ± 7	50 ± 5	49 ± 3	1490 ± 100
19	СПнС1-2-2	48 ± 5	30 ± 3	28.2 ± 2.2	1560 ± 130
20	СПдЗ-12-2	10.2 ± 1.4	8.2 ± 1.1	8.8 ± 1.4	2100 ± 300
21	СПдЗ-14-3	6.5 ± 2.1	4.7 ± 1.1	3.0 ± 1.0	2700 ± 900
22	СПдЗ-11-1	3.6 ± 0.8	4.5 ± 0.7	4.5 ± 1.6	4900 ± 800
23	СПдЗ-10-1	9.8 ± 1.4	4.5 ± 0.6	4.7 ± 2.0	7600 ± 1500

На рис. 1 та 2 наведено відношення вмісту ^{241}Am у пробах ґрунту, визначеного за допомогою гамма-спектрометрії та радіохімічним методом з перерахунком за масою та з перерахунком за ^{137}Cs відповідно. Тут же прямими лініями показано середні зважені значення цих відношень.

Як видно з рисунків, дані про вміст ^{241}Am в пробах ґрунту, отримані методами гамма-спектрометрії, співпадають в середньому з похибкою 10 - 15 % із значеннями, отриманими методами радіохімії як з перерахунком за масою, так і з перерахунком за ^{137}Cs . Середнє

Відношення
активностей

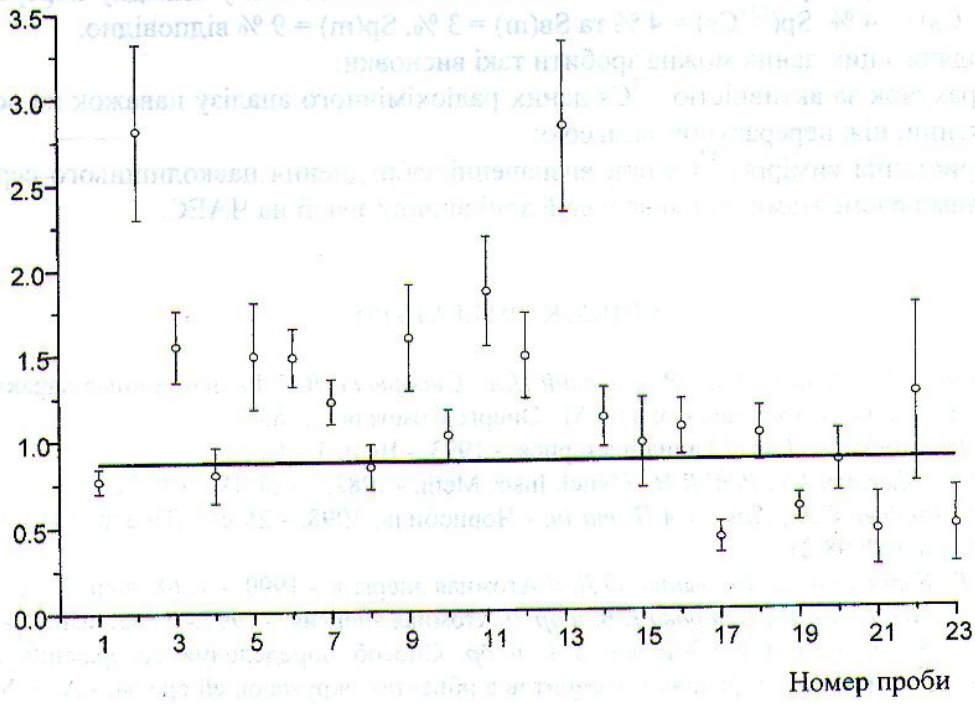


Рис. 1

Відношення
активностей

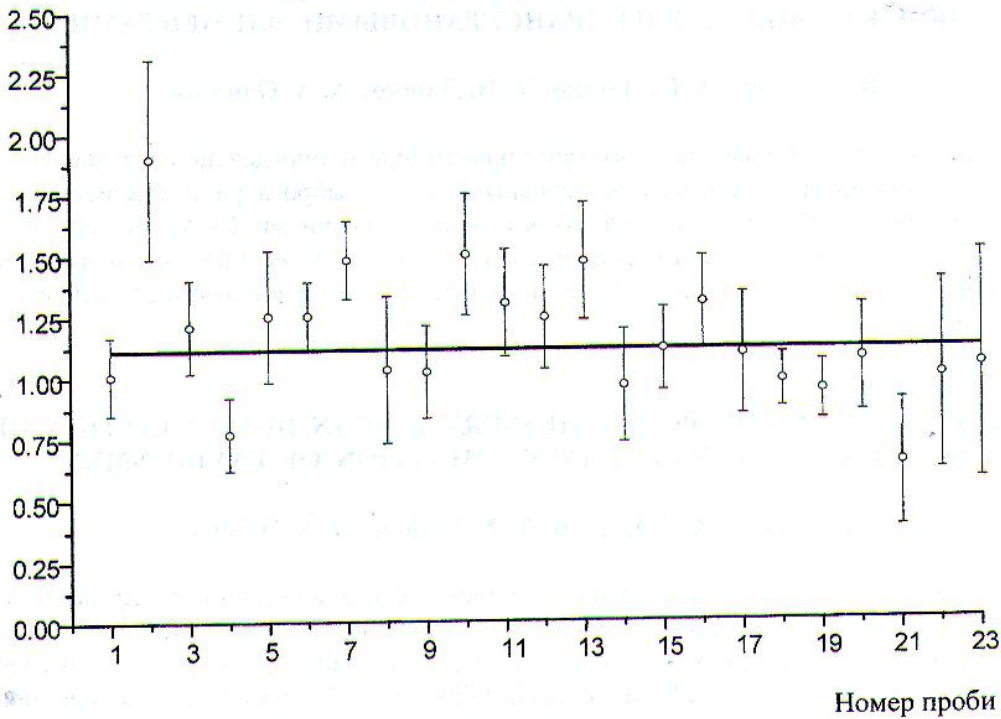


Рис. 2

зважає на значення відношення вмісту ^{241}Am у пробах ґрунту, визначеного за допомогою гамма-спектрометрії та радіохімічного аналізу з перерахунком за ^{137}Cs , має значно меншу похибку розкиду при приблизно однаковій ваговій похибці, ніж у випадку перерахунку за масою $\text{Sv}(^{137}\text{Cs}) = 4\%$, $\text{Sp}(^{137}\text{Cs}) = 4\%$ та $\text{Sv}(m) = 3\%$, $\text{Sp}(m) = 9\%$ відповідно.

Виходячи з цих даних можна зробити такі висновки:

перерахунок за активністю ^{137}Cs даних радіохімічного аналізу наважок на всю пробу більш коректний, ніж перерахунок за масою;

використання вимірів ^{137}Cs при визначенні забруднення навколишнього середовища трансураними елементами доцільне у всій зоні впливу аварії на ЧАЕС.

СПИСОК ЛІТЕРАТУРИ

1. Колобашикин В.М., Рубцов П.М., Ружанский П.А., Сидоренко В.Д. Радиационные характеристики облученного ядерного топлива: Справ. - М.: Энергоатомиздат, 1983.
2. Ермилов А.П., Зиборов А.М. // Радиация и риск. - 1993. - Вып. 3. - С. 134.
3. Strauss M.G., Sherman I.S., Pehl R.H. // Nucl. Instr. Meth. - 1982. - Vol. 193. - P. 203.
4. Агеев В.А., Выричек С.Л., Лашко А.П. та ін. - Чернобыль, 1998. - 26 с. - (Препр. / НАН України. МНТЦ "Укриття"; 98-2).
5. Беляев С.Т., Боровой А.А., Добрынин Ю.Л. // Атомная энергия. - 1990. - Т. 68, вып. 3. - С. 197.
6. Бушуев А.В., Зубарев В.И., Петрова Е.В. и др. // Атомная энергия. - 1997. - Т. 82, вып. 2. - С. 117.
7. Агеев В.А., Ключников А.А., Одинцов А.А. и др. Способ определения содержания плутония, продуктов деления и трансураниевых элементов в объектах окружающей среды. - А. с. № 1701047 SU, 1991.
8. Агеев В.А., Выричек С.Л., Ключников А.А. и др. // Атомная энергия. - 1998. - Т. 84, вып. 4. - С. 340.
9. Булгаков В.В., Гаврилюк В.И., Лашко А.П. и др. - Киев, 1986. - 48 с. - (Препр. / АН УССР. Ин-т ядерных исслед.; КИЯИ-86-33).

О ЦЕЛЕСООБРАЗНОСТИ ИЗМЕРЕНИЙ ^{137}Cs ПРИ ОПРЕДЕЛЕНИИ ЗАГРЯЗНЕНИЯ ОКРУЖАЮЩЕЙ СРЕДЫ ТРАНСУРАНИЕВЫМИ ЭЛЕМЕНТАМИ

В. А. Агеев, А. П. Лашко, Т. Н. Лашко, А. А. Одинцов

Радиохимическим и гамма-спектрометрическим методами определено содержание ^{241}Am в 23 пробах почвы, отобранных в направлении основных следов выброса радионуклидов с уровнями загрязнения местности ^{137}Cs от 4 до 1200 Ки/км² и соотношениями Cs/Am от 60 до 7000. На основании анализа экспериментальных данных сделан вывод о целесообразности измерений ^{137}Cs при определении загрязнения окружающей среды трансураниевыми элементами во всей зоне влияния аварии на ЧАЭС.

ABOUT ADVISABILITY OF ^{137}Cs MEASUREMENT IN DETERMINATION OF TRANSURANIUM ELEMENT CONTAMINATION OF ENVIRONMENT

V. A. Ageev, A. P. Lashko, T. N. Lashko, A. A. Odintzov

^{241}Am content has been determined by means of radiochemical and gamma-spectrometry methods in 23 soil samples, selected in the directions of main traces of radionuclide release with ^{137}Cs contamination levels of locality from 4 to 1200 Ki/km² and Cs/Am ratio from 60 to 7000. On the base of experimental data analyses the conclusion has been made about advisability of ^{137}Cs measurement in determination of transuranium element contamination in total zone of Chernobyl accident influence.