

## ИССЛЕДОВАНИЕ “ГОРЯЧИХ” ЧАСТИЦ ИЗ 5-КИЛОМЕТРОВОЙ ЗОНЫ ЧАЭС

М. Д. Бондарьков<sup>1</sup>, В. А. Желтоножский<sup>2</sup>, М. В. Желтоножская<sup>3</sup>,  
Л. В. Садовников<sup>2</sup>, В. В. Токаревский<sup>3</sup>

<sup>1</sup> *Международная радиэкологическая лаборатория, Славутич*

<sup>2</sup> *Институт ядерных исследований НАН Украины, Киев*

<sup>3</sup> *ГСП “Техноцентр”, Киев*

Проведены измерения радионуклидов в “горячих” частицах, отобранных в 1989 - 2002 гг. в 5-километровой зоне ЧАЭС. Обнаружено  $K_{\alpha}$ -излучение плутония и урана. Измерено соотношение изотопов  $^{154,155}\text{Eu}$  в отобранных “горячих” частицах из ближней зоны ЧАЭС. Сравнение с расчетными справочными данными показало расхождение в 2 - 2,5 раза. Проводится обсуждение полученных результатов.

### Введение

В результате аварии на Чернобыльской атомной станции (ЧАЭС) в окружающую среду попало большое количество радиоактивных веществ. Причем значительное количество радионуклидов находится в небольших по размерам ( $1 \div 100$  мкм) частицах, представляющих собой часть твэлов и конструкционных материалов (“горячие” частицы). Эти частицы обладают большой удельной активностью ( $10 \div 10^4$  Бк/образец), поэтому исследование свойств таких частиц представляет большой интерес как для изучения влияния их на окружающую среду, так и для понимания процессов, протекающих при разрушении активной зоны 4-го реактора [1, 2].

Отметим, что в последние годы проводятся многочисленные исследования природы таких частиц и их воздействия на различные биологические объекты [3]. При этом, в основном, проводились  $\gamma$ -спектрометрические измерения,  $\alpha$ -спектроскопические данные получены в ограниченном числе случаев. Это связано как с методическими трудностями, так и с безвозвратной потерей “горячей” частицы после радиохимического растворения в процессе получения тонкого  $\alpha$ -источника для  $\alpha$ -спектрометрии, а при этом каждая из них – уникальный объект для исследования. В то же время из-за сильного воздействия на окружающую среду именно  $\alpha$ -активных радионуклидов, которые обладают наиболее сильным ионизационным воздействием, знание их концентрации особенно важно.

Нами для проведения работ по изучению состава  $\alpha$ -нуклидов в “горячих” частицах была разработана методика, основанная на исследовании характеристического излучения, сопровождающего  $\alpha$ - и  $\beta$ -распад радионуклидов [4]. В данной работе по этой методике были проведены исследования “горячих” частиц, с достаточно высоким удельным содержанием топливных масс, отобранных в 2001 - 2002 гг. в 5-километровой зоне ЧАЭС (“Рыжий лес”).

Работа выполнялась в плане научно-технического сотрудничества Института ядерных исследований, Славутичской международной радиэкологической лабораторией и ГСП “Техноцентр”.

### Экспериментальные результаты

Согласно нашей методике были отобраны пробы в верхних слоях грунта (до 2 см) вблизи населенного пункта Чистоголовка. Далее, на  $\gamma$ -спектрометре с детектором из свехчистого германия с входным бериллиевым окном толщиной 250 мкм были проведены исследования  $\gamma$ -излучения в области энергий до 100 кэВ. В ряде проб было обнаружено характеристическое  $K_{\alpha}$ -излучение урана. Возникновение этого излучения урана возможно только при ионизации атомов урана либо  $\gamma$ -, либо  $\beta$ -излучением достаточной интенсивности и энергии. При этом уран должен находиться только в виде кусочков топлива значительных



размеров (в известных масштабах для “горячей” частицы). Из этих проб визуально под микроскопом и при контроле методом  $\gamma$ -спектрометрии были отобраны топливные “горячие” частицы,  $\gamma$ -излучение которых исследовалось в различных энергетических диапазонах на полупроводниковых рентгеновских и гамма-спектрометрах.

Характеристическое излучение, сопровождающее распад изотопов в “горячих” частицах, измерялось на различных детекторах с частично перекрывающимися диапазонами. В области  $10 \div 1500$  кэВ измерения проводились на  $\gamma$ -спектрометре с активным подавлением комптоновского рассеяния, с детектором из сверхчистого германия с входным бериллиевым окном толщиной 250 мкм и энергетическим разрешением 0,95 кэВ на  $\gamma = 123$  кэВ изотопа  $^{154}\text{Eu}$ .

В области энергий  $5 \div 100$  кэВ измерения проводились на Ge-детекторе с ультратонким бериллиевым окном (толщиной 1 мкм) и с разрешением 0,15 кэВ на  $\gamma = 6.5$  кэВ по линии  $K_{\alpha}(\text{Fe})$ . Этот спектрометр позволяет регистрировать спектры рентгеновских и  $\gamma$ -лучей начиная с энергии 1 кэВ.

Особое внимание при измерениях уделялось области  $10 \div 60$  кэВ. Это обусловлено тем, что в этой области находится  $K_{\text{X}}$ -излучение нуклидов от арсенида до европия, т.е. основных радионуклидов, образующихся при делении тяжелых атомных ядер. Кроме того, в этой же области лежит  $L_{\text{X}}$ -излучение трансурановых нуклидов. Именно по  $L_{\text{X}}$ -излучению можно определить наличие трансурановых изотопов и, в частности, плутония в “горячих” частицах [4]. На рис. 1 приведены спектры “горячей” частицы particle-132 (P-132), измеренные на различных спектрометрах. Как видно, спектр в области  $5 \div 100$  кэВ очень сложный, поэтому для его обработки была адаптирована специальная программа.

По этой программе в спектре выбирается одиночная  $\gamma$ -линия и затем она вписывается методами сплайнов в изучаемый участок спектра. Особенностью обработки  $K_{\text{X}}$ - и  $L_{\text{X}}$ -спектров является то, что в отличие от  $\gamma$ -линий естественная ширина  $K_{\text{X}}$ - и  $L_{\text{X}}$ -линий сравнима с энергетическим разрешением спектрометров, а это приводит к изменению формы сигнала и, как следствие, появлению “ложных” линий. Решению этой проблемы было уделено особое внимание. Была разработана специальная процедура по учету этих эффектов [5].

Всего было исследовано более 20 частиц. Особое внимание также уделялось соотношению изотопов ( $^{154}\text{Eu} / ^{155}\text{Eu}$ ). В табл. 1 приведены данные измерений характерной топливной “горячей” частицы P-132.

Таблица 1. Активность радионуклидов в “горячей” частице P-132, Бк/образец

$^{60}\text{Co}$	$^{134}\text{Cs}$	$^{137}\text{Cs}$	$^{154}\text{Eu}$	$^{155}\text{Eu}$	$K_{\text{X}}\text{U}$
$1,65 \pm 0,05$	$65 \pm 6$	$(1,67 \pm 0,015) \cdot 10^4$	$161 \pm 4$	$84 \pm 3$	$249 \pm 15$

### Обсуждение

В спектре частицы P-132 нами впервые обнаружено  $K_{\alpha}$ -излучение плутония (см. рис. 1, б). Изотопы плутония в топливных “горячих” частицах могут находиться только в кусочках твэлов, которые входят в матрицу “горячей” частицы, а в твэле образуются по реакции ( $n, \gamma$ ) в процессе работы реактора. Поэтому распределение атомов плутония в урановой “горячей” частице, как и в твэле, является гомогенным, поскольку образуется равномерно по всему объему тепловыделяющего элемента зоны под воздействием гомогенного потока нейтронов (со степенью гомогенности не хуже 5 % [6, 7]) и поэтому полностью совпадает с распределением массы урана в твэле. Рентгеновское излучение урана и плутония возникает в результате облучения атомов урана и плутония внешним ионизирующим  $\alpha$ -,  $\beta$ - и  $\gamma$ -излучением. Наиболее сильное возбуждение их  $K_{\alpha}$ -уровней обусловлено  $\gamma$ -квантами 662 кэВ от  $^{137\text{m}}\text{Ba}$  и электронами от распада  $^{137}\text{Cs}$  и ( $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$ ). Т.е. возбуждение К-оболочки урана и плутония происходит  $\gamma$ -квантами с энергией 662 кэВ и электронами с граничными энергиями спектров 0,6 и 2,3 МэВ соответственно. Надо заметить, что зависи-

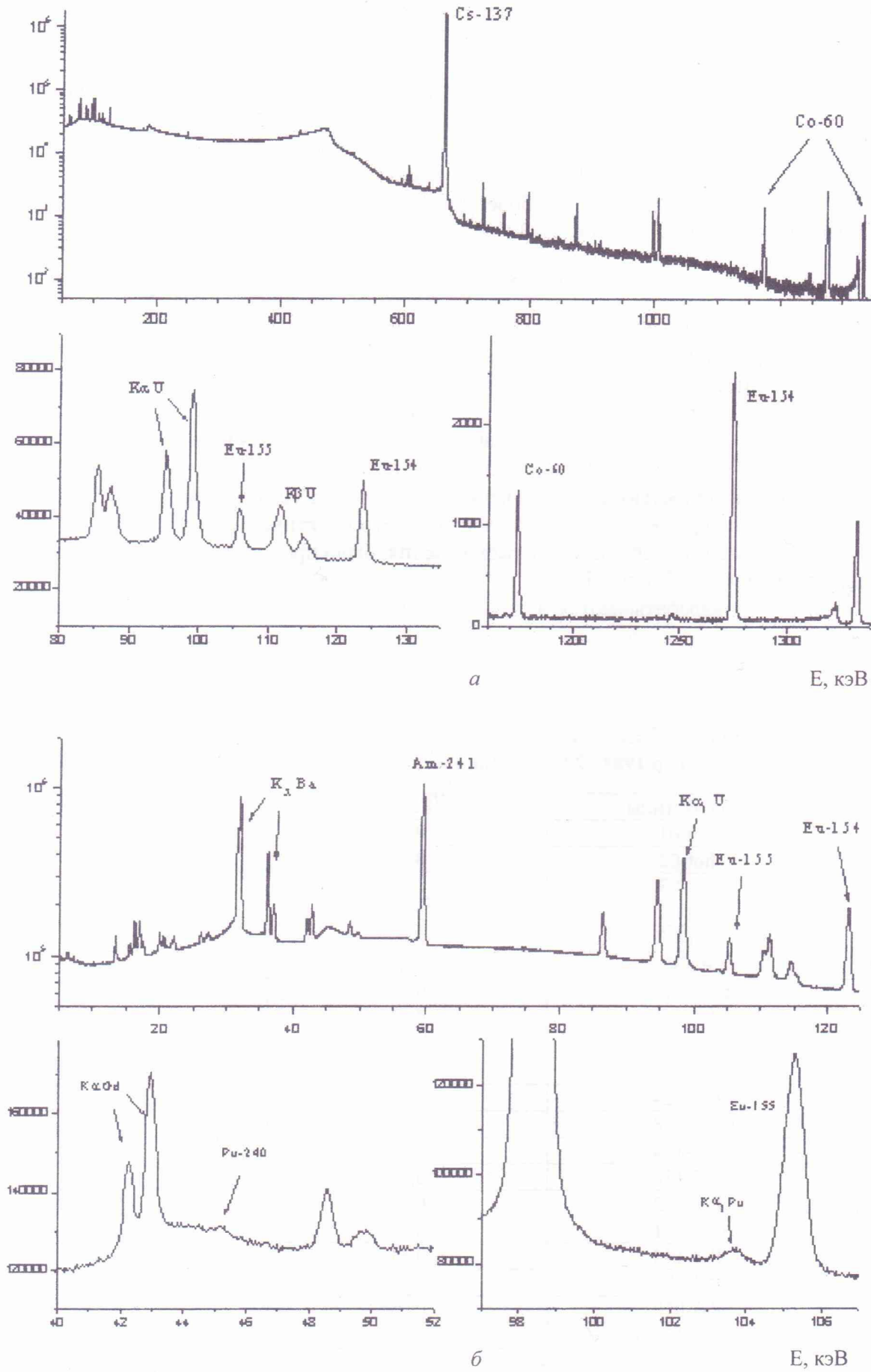


Рис. 1. Спектры "горячей" частицы P-132 на  $\gamma$ - (а) и рентгеновском (б) Ge-спектрометрах.



мость сечения фотоионизации для атомов при таких энергиях пропорциональна  $\sigma_{\phi} \sim Z^5$ , а при возбуждении атомов электронами сечение  $\sigma_e \sim Z^2$ .

Размеры “горячих” частиц таковы, что электроны из распада  $^{137}\text{Cs}$  и  $(^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y})$  практически полностью участвуют в возбуждении К-оболочек, тогда как  $\gamma$ -излучение с энергией 662 кэВ даже для самых больших частиц ( $\approx 10^2$  мкм) “задействовано” не более, чем на 10 %. Очевидно, что по этой же причине сечения возбуждения атомов урана и плутония не могут отличаться более чем на 2 %, а значит, и выход  $K_{\alpha}$ -излучения урана и плутония, при одинаковой массе, не будет отличаться более чем на 2÷3 %.

В наших измерениях частицы P-132 было получено, что

$$P(K_{\alpha}\text{Pu})/P(K_{\alpha}\text{U}) = (0,90 \pm 0,03) \%$$

Загрузка 4-го реактора составила 192 т диоксида урана. Отсюда следует, что при одинаковом (в пределах 5÷7 %, согласно [7]) “выгорании” топлива должно нарабататься  $(1520 \pm 5)$  кг изотопов плутония. В работах [6, 7] были проведены расчеты наработки изотопов плутония и было получено, что эта масса составляет 630 кг с учетом распада к настоящему времени  $^{241}\text{Pu}$ , т.е. есть наблюдается значительное (в 2,4 раза) расхождение.

Измерение  $K_{\alpha}$ -излучения плутония достаточно сложная задача, требуются “горячие” частицы с общей активностью по  $\gamma$ - и  $\beta$ -излучению порядка  $10^6$  Бк. Таких высокоактивных частиц не очень много даже в 5-километровой зоне (это практически микрокусочки твэлов), поэтому, чтобы проверить наблюдаемые расхождения, было проведено исследование соотношения выхода изотопов  $^{154}\text{Eu}$  и  $^{155}\text{Eu}$ .

Эти изотопы нарабатываются в топливе только как продукт деления, и их соотношение не изменяется под внешним воздействием ни температуры, ни химических процессов окружающей среды. Соотношение  $^{154,155}\text{Eu}$  для урановых “горячих” частиц приведено в табл. 2.

Таблица 2. Соотношения  $^{154}\text{Eu} / ^{155}\text{Eu}$  для выборки “горячих” частиц с обнаруженным  $K_{\alpha}\text{U}$  (Отбор 1989 - 2002 гг. Данные приведены к 26.04.86)

№	Код частицы	$^{154}\text{Eu}/^{155}\text{Eu}$	Погрешность, %
1	hot-01	0,40	4,6
2	hot-02	0,22	6,3
3	hot-03	0,05	2,7
4	hot-04	0,62	3,6
5	hot-05	0,60	3,3
6	P-132	0,67	4,4
7	P-1-102-1	0,65	3,2
8	P-1-104	0,80	4,1
9	P-1-121	0,62	5,0
10	P-1-122	0,76	3,0
11	P-1-124	0,56	6,3
12	P-1-128	0,71	2,8
13	P-2-144	1,01	4,6
14	P-2-136	0,64	4,8
15	P-2-052	0,07	3,0
16	hot-15sL	0,38	4,1
17	P-3-144	0,41	3,2
18	P-3-145	0,71	2,7
19	P-3-010	0,55	6,6
20	P-3-133	0,65	5,3
21	P-3-134	0,70	5,1
22	hot-1-133	1,08	3,8

Среднее значение, с учетом распада во времени, равно

$$P = A(^{154}\text{Eu})/A(^{155}\text{Eu}) = (0,6 \pm 0,1).$$

В то же время расчетные значения из [6]  $P_{\text{расч}} = (1,3 \pm 0,9)$ , т.е. расхождение в  $(2,2 \pm 0,4)$  раза. Как видно, наблюдается почти такое же расхождение, как и для масс плутония. Отметим, что "горячие" частицы (см. табл. 2) отбирались с 1989 по 2002 г. в разных местах 5-километровой зоны ЧАЭС.

На наш взгляд, столь большое расхождение может быть связано с неадекватным воспроизведением спектра нейтронов деления в тепловой области. Как известно, сечение деления и захвата для тепловых нейтронов составляет сотни барн, а эти же сечения при энергии нейтронов больше 1 МэВ – сотни мбарн, поэтому даже небольшое смещение энергии потока быстрых нейтронов в тепловую область может кардинально изменить вероятность деления, резко увеличив ее за счет увеличения вероятности захвата нейтронов. Это смещение в процессе деления ядер урана очень хорошо видно на соотношении наработанных активностей изотопов  $^{154}\text{Eu}$  и  $^{155}\text{Eu}$ . На рис. 2 приведены цепочки образования  $^{154}\text{Eu}$  и  $^{155}\text{Eu}$  согласно работе [8]. Как видно из схемы *a*, изотоп  $^{154}\text{Eu}$  является "обойденным ядром" и изменение энергии нейтронов в низкоэнергетическую область приводит к значительному изменению выхода  $^{154}\text{Eu}$  при увеличении наработки стабильного  $^{154}\text{Sm}$ . В то же время (согласно схеме *б*) образование  $^{155}\text{Eu}$  по  $\beta^-$ -цепочке происходит независимо от смещения энергии потока нейтронов в тепловую область. Поскольку при изменении энергии нейтронов происходит перераспределение вероятности распада между членами этой цепочки, но так как все они распадаются на  $^{155}\text{Eu}$ , суммарная вероятность образования  $^{155}\text{Eu}$  будет слабо меняться в зависимости от энергии нейтронов [9].

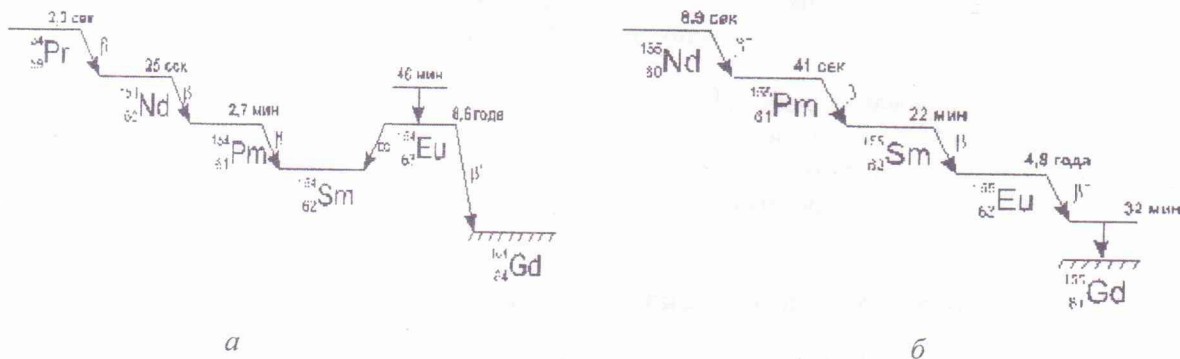


Рис. 2.  $\beta^-$ -распад ядер с  $A = 154$  (*a*) и  $A = 155$  (*б*).

Нами также проведены прямые измерения отношения  $^{240}\text{Pu}/^{241}\text{Pu}$  и приведенные к моменту аварии. Измерения были выполнены по отношению  $\gamma$  45,3 кэВ  $^{240}\text{Pu}$  и  $\gamma$  59 кэВ  $^{241}\text{Am}$  (см. рис. 1).

В распаде  $^{155}\text{Eu}$  также присутствует  $\gamma$  45,3 кэВ, однако учет вклада этого перехода легко сделать по  $K_\alpha$  и  $K_\beta$  Gd и соотношению активностей  $^{154,155}\text{Eu}$ , которые с высокой точностью ( $\leq 3\%$ ) определялось по соотношению  $\gamma$  105 кэВ и  $\gamma$  123 кэВ. Активность  $^{241}\text{Pu}$  была пересчитана с помощью генетических уравнений с учетом данных об  $^{241}\text{Am}$ , наработанного к 1986 г. Отметим, что вклад  $^{241}\text{Am}$ , наработанного в  $(n, \gamma)$ -реакциях, составляет к настоящему времени не более 10 % вклада  $^{241}\text{Am}$ , образовавшегося в  $\beta^-$ -распаде  $^{241}\text{Pu}$ , поэтому ошибка в определении соотношения  $^{240}\text{Pu}$  и  $^{241}\text{Pu}$  не превышает 10 %. В свете вышеизложенного нами было получено, что  $A(^{240}\text{Pu})/A(^{241}\text{Pu}) = 0,60 \pm 0,06$ , а расчетное значение из [6] – 0,56. Как видно в этом случае согласие хорошее, а из этого следует, что длительность кампании для нашей "горячей" частицы P-132 совпадает с той, что используется в расчетах работ [6, 7].



Все это указывает на то, что требуется тщательное изучение относительных вероятностей образования различных радионуклидов в процессе деления и захвата нейтронов для более ясного понимания причин аварии на ЧАЭС.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Hot particles from the Chernobyl Fallout* / Ed. by H. von Philipsborn, F. Steinhäusler // Proc. of Intern. Workshop. (Theuern, 28 - 29 Oct., 1987).
2. *Zheltonozhsky V., Mück K., Bondarkov M.* // Journ. Environ. Radioactivity. - 2001. - Vol. 57. - P. 151 - 166.
3. *Жданова Н.М., Редчиць Т.І, Лашко Т.Н. та ін.* // Мікробіологічний журнал. - 2002. - Т. 64. - С. 47 - 56.
4. *Бондарьков М.Д., Донец Н.П., Желтоножский В.А. и др.* // ПТЭ. - 1999. - № 3. - С. 132 - 135.
5. *Вишневський І.М., Желтоножський В.О., Зелінський А.П. та ін.* // Збірник наук. праць Ін-ту ядерних досл. - 1999. - С. 60 - 64.
6. *Боровой А.А., Довбенко А.А., Маркушев В.М. и др.* Радиационно-физические характеристики топлива 4-го энергоблока ЧАЭС и оценка их погрешности: Справочник КЭ при ИАЭ им. И. В. Курчатова. - Инв. № 11.07-06\172. - Чернобыль, 1989.
7. *Пазухін Е.М.* Лавоподібні паливовміщуючі маси 4-го блока Чорнобильської АЕС: фізико-хімічні властивості, сценарій утворення, вплив на навколишнє середовище: Автореф. дис. ... докт. техн. наук / МНТЦ "Укриття" НАН України. - Чернобыль, 1999. - 7 с.
8. *Table of radioactive isotopes* / Ed. By V. S. Shirley. - New York, 1986.
9. *The nuclear fission process* / Ed. C. Wagemans. - Boca Raton: Ell US CRC Press Inc. - 1991.

#### ДОСЛІДЖЕННЯ "ГАРЯЧИХ" ЧАСТИНОК З 5-КІЛОМЕТРОВОЇ ЗОНИ ЧАЕС

**М. Д. Бондарьков, В. О. Желтоножський, М. В. Желтоножська,  
Л. В. Садовніков, В. В. Токаревський**

Проведено вимірювання радіонуклідів у "гарячих" частинках, відібраних у 1989 - 2002 рр. у 5-кілометровій зоні ЧАЕС. Виявлено  $K_{\alpha}$ -випромінювання плутонію та урану. Виміряно співвідношення ізотопів  $^{154,155}\text{Eu}$  в "гарячих" частинках з ближньої зони ЧАЕС. Порівняння з розрахунковими довідковими даними показало розбіжності у 2 - 2,5 рази. Проводиться обговорення отриманих результатів.

#### INVESTIGATIONS OF "HOT" PARTICLES SELECTED IN 5-KM ChNPP ZONE

**M. D. Bondarkov, V. A. Zheltonozhsky, M. V. Zheltonozhakaya,  
L. V. Sadovnikov, V. V. Tokarevsky**

The measurements of radionuclides from "hot" particles, selected in 1989 - 2000 inside ChNPP 5 km zone have been conducted. The  $K_{\alpha}$ -emanation of Pu and U has been revealed. The ratio of isotopes  $^{154,155}\text{Eu}$  in the "hot" particles, selected inside ChNPP 5 km zone has been measured. The comparison with theoretical data from handbook has shown the difference in 2 - 2,5 times. The discussions of obtained results is carried out.

Поступила в редакцію 09.04.03,  
после доработки – 16.12.03.