

ИССЛЕДОВАНИЕ ИЗОТОПНЫХ ОТНОШЕНИЙ В ПОЧВЕННЫХ РАЗРЕЗАХ 5-КИЛОМЕТРОВОЙ ЗОНЫ ЧАЭС

М. В. Желтоножская

Институт ядерных исследований НАН Украины, Киев

Измерены изотопные соотношения $^{134,137}\text{Cs}$ и $^{154,155}\text{Eu}$ в серии вертикальных разрезов почв ближней 5-километровой зоны ЧАЭС и проб топливосодержащих материалов, отобранных внутри 4-го энергоблока ЧАЭС. В некоторых разрезах обнаружено увеличение ^{134}Cs в изотопных отношениях $^{134,137}\text{Cs}$ в первом слое (20 - 25 %). Показано что это, вероятно, обусловлено присутствием компонентов топлива с различным выгоранием. Обсуждается, что этот фактор приводит к значительной переоценке периодов полураспада верхних корнеобитаемых слоев почв.

Ключевые слова: радионуклиды, изотопные соотношения, почвы, топливо, выгорание.

Введение

Одной из актуальных задач по преодолению последствий Чернобыльской аварии является оценка выгорания топлива в «горячих» частицах, обнаруженных на загрязненных территориях и в топливосодержащих материалах (ТСМ) внутри 4-го энергоблока ЧАЭС. Эти данные позволяют оценить, в частности, количество топлива на изучаемой территории. В абсолютном большинстве случаев выгорание рассчитывалось по изотопным отношениям $^{134,137}\text{Cs}$. Полученные величины использовались при оценке достоверности разных сценариев по образованию зон с высоким содержанием урана [1, 2]. Однако во многих случаях выпадение «горячих» частиц было растянуто во времени. Это может привести к появлению в одной пробе частиц с разным выгоранием топлива. Различное выгорание приводит к разному тепловыделению, что в свою очередь приводит к образованию ТСМ разных модификаций. Разрушение таких «горячих» частиц может происходить с разной скоростью. Для изучения этих процессов было исследовано соотношение активностей $^{134,137}\text{Cs}$ и $^{154,155}\text{Eu}$ в пробах, отобранных в ближней 5-километровой зоне ЧАЭС. Если возможно существование различных форм в одной и той же пробе, то тогда скорость деструкции частиц, а значит, и скорость миграции будут изменяться в зависимости от преобладания в почве той или иной топливной компоненты, что может проявиться в изотопных отношениях.

Методика эксперимента и результаты

Для исследования были отобраны пробы в районе «Рыжего леса». Отбирались пробы грунта слоями по 2 см (верхние четыре слоя, а затем по 5 см следующие четыре слоя) до глубины 30 см. Измерения проводились на германиевом спектрометре с Ge-детектором с входным бериллиевым окном с эффективностью регистрации 40 %

по сравнению с NaI (Тl)-детектором размерами $3' \times 3'$ и энергетическим разрешением 2 кэВ на гамма-линии ^{60}Co . Были измерены изотопные отношения в 12 разрезах. Во всех разрезах точность измерений изотопных отношений $^{134,137}\text{Cs}$ в первых двух слоях, как правило, не превышала 2 %. В более глубоких слоях погрешность изменялась от 2 до 5 %, в зависимости от удельной концентрации ^{137}Cs . Погрешность при измерении активностей $^{154,155}\text{Eu}$ не превышала 5 %.

На рис. 1 приведено несколько фрагментов спектров измерений. Здесь необходимо остановиться на методике обработки гамма-спектров несколько подробнее. Требование высокой точности определения изотопных отношений $^{134,137}\text{Cs}$ и $^{154,155}\text{Eu}$ обусловило необходимость обработки гамма-спектров с использованием специализированного программного обеспечения. Для этого была адаптирована программа для обработки сложных мультиплетных спектров [3]. Однако в данном случае основное внимание было уделено выбору формы линий ввиду того, что многие измерения, особенно для первых слоев, выполнялись при значительных перегрузках спектрометра. Это приводило к значительному изменению формы гамма-линий при переходе от верхних слоев к нижним (см. рис. 1). Из проведенных измерений в четырех разрезах в первом слое было обнаружено повышенное выгорание как по соотношению $^{154,155}\text{Eu}$, так и по изотопам $^{134,137}\text{Cs}$. Необходимо отметить, что измерения были выполнены в течение месяца, поэтому учитывалась поправка на различную скорость распада $^{134,137}\text{Cs}$, хотя она не превышала 2 - 3 %. Во всех четырех случаях расхождение между первым и вторым слоями достигало 20 - 25 %. В остальных разрезах соотношение изотопов $^{134,137}\text{Cs}$ в пределах 5 % согласуются между собой.

Полученные данные, на наш взгляд, однозначно указывают на то, что в верхнем слое этих проб присутствует смесь двух компонент топ-

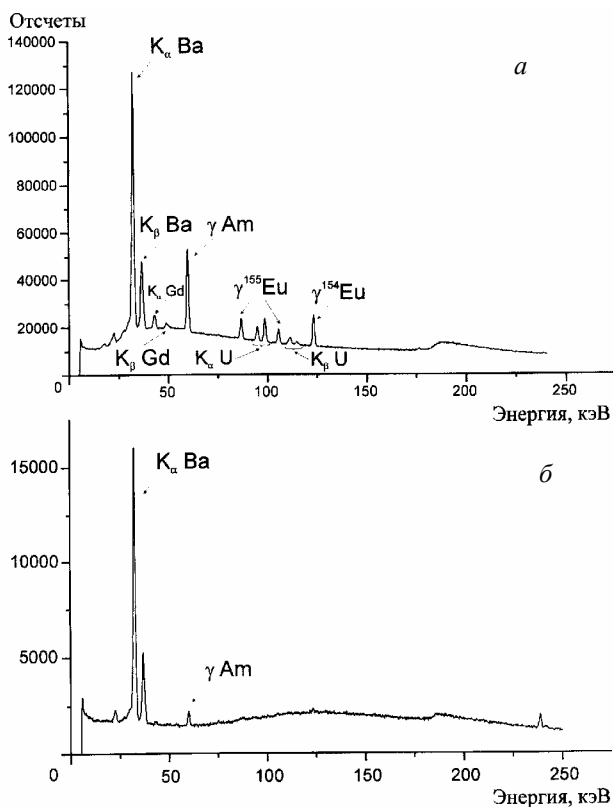


Рис. 1. Фрагменты низкоэнергетических спектров проб почвы из «Рыжего леса»: а – первый слой, б – второй слой.

ливных выпадений. Анализ гамма-спектров показал, что во всех разрезах, где наблюдались значительные изменения соотношения $^{134,137}\text{Cs}$ в первом слое, была повышенная концентрация изотопов урана, которые идентифицировались по K_{α} -излучению урана (см. рис. 1). В то же время уже во втором и более глубоких слоях K_{α} -излучение урана не наблюдалось ни в одном разрезе. Отметим также, что во всех этих случаях соотношение $^{134,137}\text{Cs}$ было больше в первом слое, т.е. в первом слое были компоненты с большим выгоранием, чем в более глубоких слоях. Это указывает на то, что «горячие» частицы с большим выгоранием имеют структуру, на которую слабо воздействует внешняя среда. На наш взгляд, в таких пробах уран должен находиться в металлическом виде, т.е. в процессе образования ТСМ происходит восстановление урана из окиси. Это означает, что температура в местах образования этих «горячих» частиц превышала температуру плавления UO_2 , находящегося в твэлах ($t = 2805\text{ }^\circ\text{C}$). Это расширяет диапазон температур, которые, как предполагается, были в зоне плавления ректора на 4-м энергоблоке ЧАЭС во время аварии (свыше $3000\text{ }^\circ\text{C}$) [2].

Из наших измерений следует, что, начиная со второго слоя, соотношения изотопов $^{134,137}\text{Cs}$ в пределах 5 % совпадали между собой. Это говорит о том, что деструкция «горячих» частиц про-

исходит, в основном, в 2-сантиметровом слое, а далее идут обычные процессы диффузии и конвективного переноса. Учет фактора «двухкомпонентности» в первом 2-сантиметровом слое может существенно (в два-три раза) изменить периоды полуочищения корнеобитаемых горизонтов почв. В частности, на участках «Рыжего леса», представленных автоморфными почвами, а именно там, главным образом, и наблюдались аномалии в изотопных отношениях, периоды полуочищения снижаются до 40 - 50 лет (ранее эта величина была 100 ± 40 лет) [4]. Полученная величина периода полуочищения для этих почв становится значительно ближе к данным для автоморфных почв на увлажненных территориях 58 ± 31 год. Физически это более согласованные результаты. Точно такие же соотношения получаются и для периодов полуочищения для $^{154,155}\text{Eu}$ на вышеуказанных почвах.

Для сравнительного анализа было отобрано несколько проб в зоне образования лавообразных ТСМ непосредственно в 4-м энергоблоке ЧАЭС. Измерения гамма-спектров этих проб показали значения выгорания топлива, определенного по соотношению $^{134,137}\text{Cs}$, близкими к данным для исследуемых почвенных разрезов. Однако удельная активность K_{α} -излучения урана была в 20 - 30 раз меньше по сравнению с почвами, где наблюдались аномальные изотопные отношения $^{134,137}\text{Cs}$. Это говорит о том, что в этих ТСМ уран, вероятно, находится в виде UO_2 . Этот вывод подтверждается и исследованиями, которые проводились с этими материалами [1, 2].

Характерный спектр этих образцов приведен на рис. 2. Хотелось бы отметить, что исследования гамма-спектров образцов из 4-го энергоблока ЧАЭС в настоящее время позволяют измерять активность ^{243}Am (см. рис. 2), а это открывает новые возможности по оценке выгорания топлива.

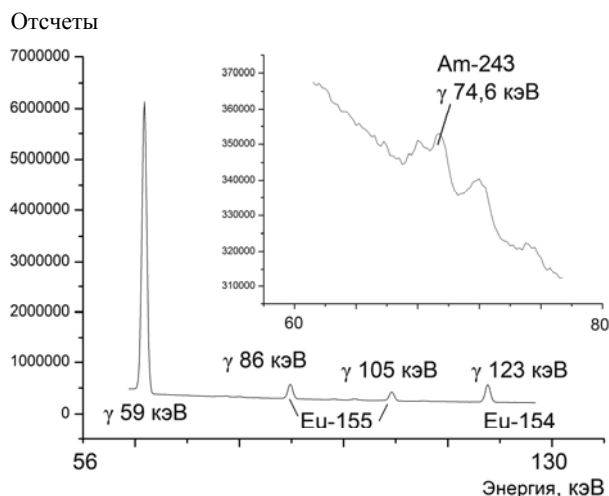


Рис. 2. Фрагменты низкоэнергетических спектров пробы ТСМ из 4-го энергоблока ЧАЭС.

Ввиду простоты измерения активностей $^{134,137}\text{Cs}$ полученные данные указывают на перспективность использования изотопных отношений $^{134,137}\text{Cs}$ для понимания процессов, протекавших при разрушении реактора 4-го энергоблока ЧАЭС. Здесь необходимо отметить, что в настоящее время вклад ^{134}Cs не превышает десятые доли процента по сравнению с ^{137}Cs . Однако эта трудность легко преодолевается с использованием простой установки гамма-гамма-совпадений на базе NaI (Тl)-детектора большого размера и германиевого детектора. Распад ^{134}Cs идет в

основном каскадом двух гамма-переходов с энергиями 604 и 796 кэВ, поэтому в такой установке в интегральных совпадениях интенсивность гамма-линии 661 кэВ будет подавлена в сотни раз, а гамма-интенсивность 604 кэВ – не более чем в два-три раза в зависимости от размеров NaI (Тl)-детектора. Для иллюстрации такой методики мы провели измерения активностей $^{134,137}\text{Cs}$ в настоящее время. На рис. 3 представлены полученные спектры. Как видно, в спектре совпадений легко выделяется активность ^{134}Cs .

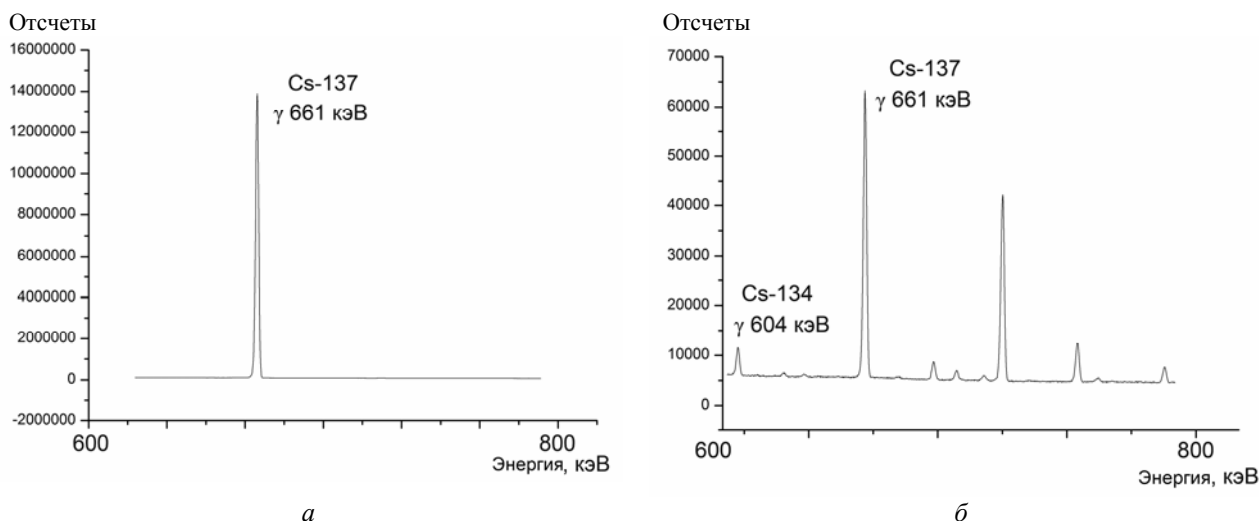


Рис. 3. Фрагменты гамма-спектров проб почвы из «Рыжего леса»: а – одиночный спектр; б – спектр совпадений.

Выгорание топлива, рассчитанное из изотопных отношений

№ пробы	Европий	Цезий	№ пробы	Европий	Цезий
«г. ч.» 1*	12,6(05)	10,3(2)	2-18-1	12,9(5)	10,2(3)
«г. ч.» 2*	13,6(05)	9,7(3)	2-18-2	10,2(5)	7,7(3)
2-145-1	9,2(5)	8,4(3)	2-24-1	12,1(5)	10,2(3)
2-145-2	10,5(5)	8,6(3)	2-24-2	12,5(5)	10,4(3)

* Образцы, отобранные внутри 4-го энергоблока ЧАЭС.

И наконец, хотелось бы отметить, что выгорание топлива, определенное по изотопным отношениям $^{134,137}\text{Cs}$ систематически занижено на две-три единицы по сравнению с данными из изотопных отношений $^{154,155}\text{Eu}$. Причем это присуще и образцам проб почвы, и образцам из 4-го энергоблока ЧАЭС. Например, для двух образцов из 4-го энергоблока было получено выгорание по изотомам европия 12,6 и 13,6 МВт · сут/кг урана, а для изотопов цезия – 10,3 и 9,7. Для выгорания в пробах почвы расхождение такое же (таблица). Учитывая, что свыше 70 % твэлов имеют выгорание 12-13 МВт · сут/кг урана и данные по изотомам европия близки к этим цифрам, можно предположить, что коэффициенты для формулы, которая определяет выгорание по изотомам $^{134,137}\text{Cs}$, полученные в работе [5], за-

нижены и требуется дальнейший анализ экспериментальных данных.

Заключение

В представленной работе по соотношению изотопов $^{154,155}\text{Eu}$ и $^{134,137}\text{Cs}$ в различных слоях почвенных разрезов выделено существование двух форм выпадений.

Показано большое (до 20 %) расхождение в значениях выгорания топлива, определенное по соотношению изотопов $^{154,155}\text{Eu}$ и $^{134,137}\text{Cs}$ для одних и тех же проб, отобранных как в почвах вблизи 4-го энергоблока ЧАЭС, так и внутри него.

Предлагается методика, позволяющая исследовать изотопные отношения $^{134,137}\text{Cs}$ с помощью спектрометра гамма-гамма-совпадений.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Пазухин Э. М. Лавообразные топливосодержащие массы 4-го блока ЧАЭС: Автореф. дис. ... д-ра техн. наук. - Чернобыль, 1999.
2. Лагуненко А. С. Поиск и исследование скрытых скоплений топливосодержащих материалов 4-го блока ЧАЭС: Автореф. дис. ... канд. техн. наук. - Киев, 2008.
3. Вишневский И. Н., Желтоножский В. А., Зелинский А. М. и др. Атомно-ядерные эффекты в процессах внутренней конверсии гамма-лучей // Зб. наук. праць Ін-ту ядерних досл. - 1999. - С. 60 - 64.
4. Бондарьков М. Д., Гащак С. П., Желтоножская М. В. и др. Вертикальный перенос $^{134,137}\text{Cs}$, $^{154,155}\text{Eu}$, $^{239-240}\text{Pu}$, ^{241}Am в почвах ближней зоны ЧАЭС // Проблеми безпеки атомних електростанцій і Чорнобиля. - 2006. - Вип. 6. - С. 155 - 163.
5. Боровой А. А., Пазухин Э. М. Соотношения изотопов плутония в зависимости от степени выгорания ядерного топлива // Радиохимия. - 2003. - Т. 45, № 2. - С. 191 - 192.

**ДОСЛІДЖЕННЯ ІЗОТОПНИХ СПІВВІДНОШЕНЬ
У ҐРУНТОВИХ РОЗРІЗАХ 5-КІЛОМЕТРОВОЇ ЗОНИ ЧАЕС**

М. В. Желтоножська

Виміряно ізотопні співвідношення $^{134,137}\text{Cs}$ та $^{154,155}\text{Eu}$ в серії вертикальних розрізів ґрунтів ближньої 5-кілометрової зони ЧАЕС та зразків паливовмісних матеріалів, що були відібрані з 4-го енергоблока ЧАЕС. У деяких розрізах виявлено збільшений вміст ^{134}Cs в першому прошарку (20 - 25 %). Продемонстровано, що це, імовірно, зумовлено присутністю компонентів палива з різним вигоранням. Обговорюється, що цей фактор призводить до значної переоцінки періодів напівочищення верхніх прошарків ґрунтів, де знаходиться коріння.

Ключові слова: радіонукліди, ізотопні співвідношення, ґрунти, паливо, вигорання.

**ISOTOPES RATIO INVESTIGATION IN SOIL SAMPLES
FROM 5-km CHNPP ZONE**

M. V. Zheltonozhskaya

Isotope ratios of $^{134,137}\text{Cs}$ and $^{154,155}\text{Eu}$ were measured in the vertical profiles of the soils of 5-km nearest ChNPP zone and in the FCM samples from 4-th unit of the ChNPP. The increasing of the ^{134}Cs (20 - 25%) in the first layers was detected in some vertical soil profiles. Possible existence of fuel component with different burnout can explain this fact. This factor changes the ecological periods of semidepuration of upper layers of soils.

Keywords: radionuclides, isotopes ratio, soils, fuel, burnout.

Поступила в редакцію 02.10.09,
после доработки - 10.12.09.