

М. В. Желтоножская, Н. В. Кулич*, Д. Е. Мызников, В. И. Слисенко

Институт ядерных исследований НАН Украины, Киев, Украина

*Ответственный автор: zhelton@kinr.kiev.ua

**ИССЛЕДОВАНИЕ ЧЕРНОБЫЛЬСКИХ ВЫПАДЕНИЙ В 30-КМ ЗОНЕ ЧАЭС
ПОСЛЕ УСТАНОВКИ КОНФАЙНМЕНТА**

Проведены исследования поведения радионуклидов на сильно загрязненных территориях 30-км зоны ЧАЭС. Были отобраны пробы в двух слоях для определения возможного влияния работ по перекрытию объекта «Укрытие». Проведены методические исследования по учету изменения эффективности регистрации γ -лучей в пробах большого объема. Для этого сравнивалась активность ^{137}Cs , определенная по выходу K_{α} -излучения Ва (36 кэВ) и γ -лучей с энергией 661 кэВ. Получено выражение, учитывающее влияние плотности образцов на эффективность регистрации γ 59 кэВ ^{241}Am . В результате проведенных исследований наблюдается аномальное соотношение $A(^{241}\text{Am})/A(^{137}\text{Cs})$. Величина меняется от 0,004 до 0,30. В ряде проб наблюдалась активность ^{60}Co и ^{94}Nb . Проведены исследования концентрации радионуклидов в конструкционных материалах 2-го блока ЧАЭС. Показано, что активность ^{60}Co и ^{94}Nb связана с поступлением новых выпадений.

Ключевые слова: радионуклиды, миграция, америций, ниобий, кобальт.

1. Введение

Чернобыльская зона является уникальным объектом для исследований в области радиозологии и радиобиологии. В зоне находятся полигоны разной степени загрязненности радионуклидами и тяжелыми элементами. На этих полигонах проводятся систематические исследования процессов миграции радионуклидов [1, 2]. В основном внимание уделяется изучению поведения трансурановых нуклидов америция и плутония. Активность этих нуклидов во многих исследованиях измеряется спектроскопическим методом по L_{α} -излучению урана, нептуния и γ 59 кэВ ^{241}Am .

В ряде этих исследований наблюдалась ускоренная вертикальная миграция ^{241}Am . Это один из радиологически опасных радионуклидов, поэтому исследование поведения ^{241}Am одна из актуальных задач. При изучении миграции радионуклидов предполагается, что они попали в окружающую среду в единичном выбросе и в дальнейшем перемещение активностей происходит в основном за счет диффузии и конвективного переноса. Однако в 2016 - 2017 гг. проводились работы по установке конфайнмента, при этом в окружающую среду попали радионуклиды как из объекта «Укрытие», так и из-за перемещения грунта вблизи объекта «Укрытие». Поэтому при проведении дальнейших исследований на полигоне вблизи него необходимо оценить вклад новых выпадений и учитывать их при исследовании миграции радионуклидов.

2. Методика измерений и результаты

Нами проведены исследования концентрации радионуклидов на полигонах в ближней зоне ЧАЭС. Для этого в 2017 г. после выполнения работ по установке конфайнмента были отобраны пробы в двух слоях (0 - 3 см; 4 - 7 см) для определения возможного влияния работ по перекрытию объекта «Укрытие».

Гамма-спектры радионуклидов изучали с использованием антикомптоновского спектрометра с Ge-детектором, имеющим входное бериллиевое окно и энергетическое разрешение 1,9 кэВ на γ -линиях ^{60}Co . Эффективность спектрометра составляет 15 % по сравнению с NaI(Tl)-детектором размером $3'' \times 3''$. Подавление комптоновского фона в низкоэнергетической области было не меньше, чем в 8 раз. Это позволило нам надежно идентифицировать такие радионуклиды, как ^{241}Am , даже в самых глубоких слоях.

Для калибровки были изготовлены объемные калибровочные источники с радионуклидами ^{137}Cs , ^{154}Eu и ^{241}Am .

При использовании слабоактивных проб из зоны аварии на ЧАЭС возникают проблемы с калибровкой спектрометра по эффективности регистрации γ -квантов в области низких энергий из-за разной плотности изучаемых образцов. Для решения этой задачи были проведены методические исследования по учету изменения эффективности регистрации γ -лучей в пробах большого объема. Для этого было отобрано по 8 проб

до глубины 30 см в разных разрезах. В полученных данных сравнивалась активность ^{137}Cs , определенная по выходу K_{β} -излучения Ва (36 кэВ) и γ -лучей с энергией 661 кэВ. Результаты исследования приведены в табл. 1. Различие в активности связывалось с изменением плотности в исследуемых образцах. Из этих данных были получены выражения для определения поправки при измерении активности ^{241}Am (59 кэВ):

$$A(^{241}\text{Am})^* = A(^{241}\text{Am}) \times (1,6 - 0,6 A(661 \text{ кэВ})/A(K_{\beta}\text{Ва})), \quad (1)$$

где $A(^{241}\text{Am})$ – активность ^{241}Am , измеренная со стандартной калибровкой по эффективности регистрации γ -квантов; $A(K_{\beta}\text{Ва})$ – активность ^{137}Cs , измеренная по выходу K_{β} -излучения Ва (36 кэВ); $A(661 \text{ кэВ})$ – активность ^{137}Cs , измеренная по γ 661 кэВ.

Таблица 1

Глубина отбора, см	Активность, Бк/г		Отношение активностей	
	$A(\text{Am})_{\text{обр}}$	$A(\text{Am})^*$	Am/Am^*	A_{661}/A_{36}
Разрез 1				
0 - 2	209	244	0,86	0,72
2 - 4	583	685	0,85	0,71
4 - 7	286	330	0,87	0,75
7 - 10	24,9	27,4	0,91	0,84
10 - 15	5,61	6,31	0,89	0,79
15 - 20	2,88	3,00	0,96	0,93
20 - 25	5,85	3,64	1,61	1,63
25 - 30	8,27	9,61	0,86	0,73
Разрез 2				
0 - 2	217	248	0,88	0,76
2 - 4	240	289	0,83	0,66
4 - 7	327	363	0,90	0,82
7 - 10	215	217	0,99	0,98
10 - 15	187	196	0,95	0,92
15 - 20	63,0	55,3	1,14	1,20
20 - 25	4,16	4,32	0,96	0,94
25 - 30	0,76	0,71	1,07	1,11
Разрез 3				
0 - 2	384	458	0,84	0,68
2 - 4	465	555	0,84	0,68
4 - 7	374	425	0,88	0,77
7 - 10	83,9	93,5	0,90	0,81
10 - 15	13,3	14,1	0,94	0,90
15 - 20	6,43	6,78	0,95	0,91
20 - 25	3,72	3,90	0,95	0,92
25 - 30	2,12	2,25	0,94	0,90

Статистическая погрешность измерений не превышала 5 %.

Для проверки этого выражения из измеренных образцов были отобраны навески и приготовлены образцы с толщиной, слабо влияющей на выход $K_{\beta}\text{Ва}$. Получено совпадение активностей с точностью $(4 \div 6) \%$.

Измерение концентрации ^{90}Sr проводилось с помощью нерадиохимической методики. Предлагаемый метод основан на измерении энергетического спектра электронов, сопровождающих распад ^{40}K , ^{90}Sr и ^{137}Cs . При распаде ^{90}Sr испускаются две группы электронов с граничной энергией 0,55 и 2,3 МэВ, а при распаде ^{137}Cs испускаются электроны с граничной энергией 0,51 МэВ и конверсионные электроны от γ 661 кэВ.

Технические проблемы при измерении ^{90}Sr обусловлены пробегом электронов в веществе. Чем толще слой регистрации электронов в β -детекторе, тем выше его эффективность (а с ней и оперативность оценки ^{90}Sr). Однако из-за присутствия в образце на порядок большей активности ^{137}Cs , электронов ^{40}K и повышенного внешнего радиационного фона увеличивается вероятность регистрации γ -квантов (γ 661 кэВ), комптоновских γ -квантов и особенно рентгеновского излучения $K_{\alpha}\text{Ва}$, что затрудняет анализ β -спектров. Кроме ^{137}Cs , в образцах, отобранных в зонах с плотностью загрязнения 1 - 5 Ки/км², значительный вклад в полный β -спектр начинают

вносить электроны ^{40}K ($E_{\text{гр}} = 1,3 \text{ МэВ}$). В таких условиях следует использовать более тонкий детектор, толщина слоя регистрации в котором равнялась бы пробегу β -электронов ^{90}Y . Нами проводились исследования с использованием сцинтиляционного детектора толщиной около 1 мм и диаметром 76 мм. Для калибровки по эффективности экспериментальных β -спектров были изготовлены стандартные источники ^{40}K , ^{90}Sr и ^{137}Cs с характеристиками по объему и плотности, близкими к экспериментальным образцам.

Обработка экспериментальных спектров проводилась методом их сравнения с калибровочными спектрами, т.е. в данном случае со спектрами, полученными на этом же спектрометре с использованием стандартных источников ^{40}K , ^{137}Cs и $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$ (фантомов). Фантомы были поставлены ГП ОНВЦЕБ (Одесса) и прошли поверку на ГП «Киевоблстандартметрология». На рис. 1 представлены β -спектры исследуемых образцов и фантомов.

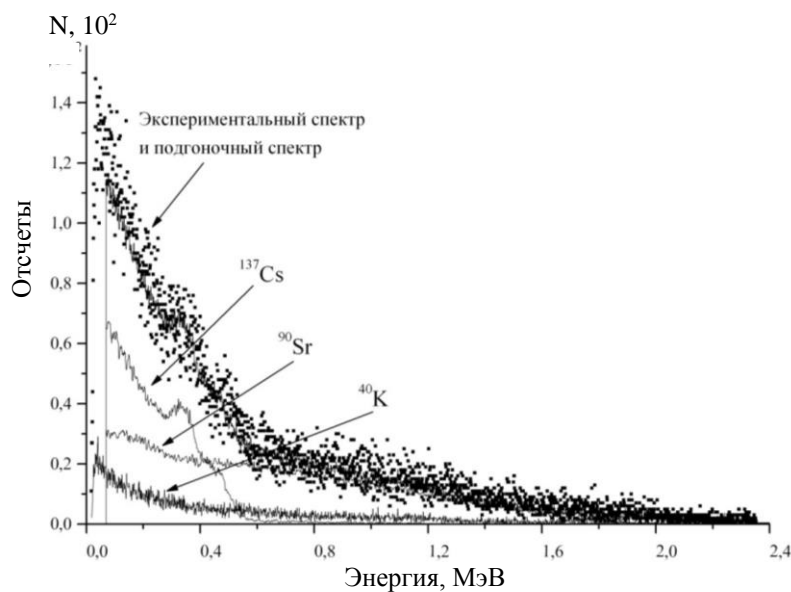


Рис. 1. Бета-спектры грунта и фантомов.

Спектры калибровочных источников и фона описывались кубическими сплайнами и в дальнейшем использовались для описания экспериментальных спектров. Реализация этого метода осуществлена в программе Betafit [3].

Как и для ^{241}Am , существует задача корректного учета самопоглощения β -электронов в зависимости от массы и плотности образца. В лабораторных условиях эта задача решается измерением γ - и K_x -спектров образца на γ -спектрометре с детектором из сверхчистого германия с бериллиевым окном. Благодаря спектрам, полученным на таком детекторе, процесс самопоглощения электронов можно контролировать по самопоглощению характеристического излучения $^{137\text{m}}\text{Ba}$. Однако не во всех лабораториях есть такие спектрометры, тем более невозможно это делать в полевых условиях. Поэтому при работе в полевых условиях для оценки самопоглощения электронов нами разработан метод, основанный на измерении смещения пика конверсионных электронов γ 661 кэВ. Средняя энергия этих электронов $E = 630 \text{ кэВ}$. В зависимости от потерь на ионизацию происходит смещение этого пика по формуле [4]

$$d / \rho = 0,407E^{1,38}, \quad (2)$$

где d – пробег электронов, $\text{г}/\text{см}^2$; ρ – плотность, $\text{г}/\text{см}^3$; E – энергия электронов, МэВ. Измерив энергию этих электронов в фантоме цезия и сравнив ее с реальным положением в изучаемом образце, определяется поправка на самопоглощение в реальном образце. Естественно, что эта поправка будет различной для разных типов детекторов и материала фантома. Поэтому желательно, чтобы плотность (ρ) фантома и реальных образцов не сильно отличались, т.е. для образцов растений и животных необходимо использовать фантом с плотностью, близкой 1, а для проб почвы с плотностью, близкой к плотности изучаемого типа почв. Проведенные исследования показали, что поправка на самопоглощение определяется формулой

$$\Delta A = 0,16(E_{\phi} - E) \cdot A, \quad (3)$$

где A – активность ^{137}Cs ; E_{ϕ} – энергия конверсионного пика в фантоме, кэВ; E – энергия конверсионного пика в реальном спектре, кэВ.

Сравнение результатов измерений ^{90}Sr в образцах почвы показало полное совпадение в

пределах 10 - 15 % при изменении активности в образцах на четыре порядка (рис. 2).

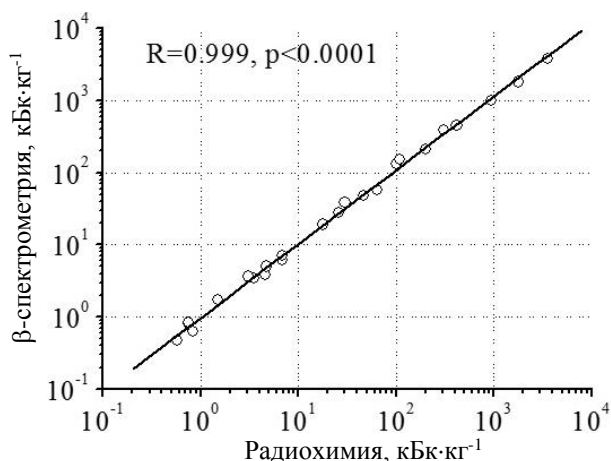


Рис. 2. Сравнение результатов определения активности ⁹⁰Sr в образцах почвы методами β-спектрометрии и радиохимии.

Отметим, что улучшение погрешностей по сравнению с ранее проведенными исследованиями произошло в значительной мере за счет учета активностей ⁴⁰K. Без учета активности этого изотопа расхождение для слабоактивных образцов увеличивалось в среднем до 30 %, а для образцов почвы, где активности ⁹⁰Sr и ⁴⁰K были соизмеримы, – до 100 % (например, см. [5]).

Этот метод позволяет проводить исследования концентрации ⁹⁰Sr и ¹³⁷Cs в различных объектах при изменении соотношения ¹³⁷Cs / ⁹⁰Sr от 1 до 100 с погрешностью не хуже 20 %.

Результаты измерений отобранных проб по описанным методикам приведены в табл. 2, а характерный γ-спектр на рис. 3 и 4. На рис. 5 приведена карта отбора проб (проба 1 отбиралась на глубине 0 - 3 см, проба 2 – на глубине 3 - 7 см).

Таблица 2

Место отбора	Активность, Бк/образец						
	¹³⁷ Cs	⁹⁰ Sr	²⁴¹ Am	⁹⁴ Nb	⁶⁰ Co	Am/Sr	Am/Cs
ЛЭП1-1	12834	2180	483	4,04	0,82	0,22	0,04
ЛЭП1-2	806	95	29	0	0	0,30	0,04
Лес1-1	643	291	2,64	0	0	0,01	0,004
Лес1-2	185	148	7,19	0	0	0,04	0,039
Ново-Шепеличи1-1	262	13,7	15,2	0	0,70	1,11	0,058
Ново-Шепеличи1-2	39,6	7,8	8,53	0	0	1,10	0,21
Ново-Шепеличи2-1	375	3,4	7,71	0	0	2,29	0,02
Ново-Шепеличи2-2	257	8,3	17,2	0	0	2,08	0,067
Чистогаловка1-1	7623	1760	874	3,71	7,24	0,49	0,115
Чистогаловка1-2	2244	18	73,5			4,08	0,033
Чистогаловка2-1	46253	6429	1148	3,75	8,23	0,17	0,025
Чистогаловка2-2	5936	867	211	0	0	0,24	0,036
Припять1-1	28003	2436	1012	9,8	1,49	0,41	0,036
Припять1-2	10506	200	392	2,4	0,79	1,96	0,037
Припять2-1	15123	2450	670	3,7	1,1	0,27	0,044
Припять2-2	2322	453	190	0,2	0,059	0,42	0,082
Рыжий лес1-1	15587	212	476	1,4	1,0	2,24	0,030
Рыжий лес1-2	1387	427	54	0,10		0,12	0,038
Рыжий лес2-1	5164	961	271	0,94	0,40	0,28	0,052

В результате проведенных исследований наблюдается anomальное соотношение $A(^{241}\text{Am})/A(^{137}\text{Cs})$, величина меняется от 0,004 до 0,215. Отметим, что эта величина из ранее проведенных исследований ожидалась равной 0,025. Соотношение $A(^{241}\text{Am})/A(^{90}\text{Sr})$ тоже выпадает из характерных значений ~ 0,1.

Для понимания источников таких концентраций были измерены активности радионуклидов в конструкционных материалах 2-го блока ЧАЭС. Гамма-спектр такого образца приведен на рис. 6 и 7, а результаты измерений в табл. 3. Как видно,

в таких γ-спектрах наблюдаются γ-кванты из распада ⁶⁰Co ($T_{1/2} = 5,3$ г), ⁹⁴Nb ($T_{1/2} = 2 \cdot 10^4$ лет) и ²⁴¹Am. Отметим, что активность ⁶⁰Co уменьшилась к настоящему времени в 75 раз. В табл. 3 приведены полученные данные. Из этих же данных видно, что наблюдаемые активности ⁶⁰Co и ⁹⁴Nb, вероятнее всего, связаны с попаданием фрагментов конструкционных материалов из объекта «Укрытие». Отметим также отсутствие в конструкционных материалах ⁹⁰Sr, ¹³⁷Cs и наличие ²⁴¹Am.

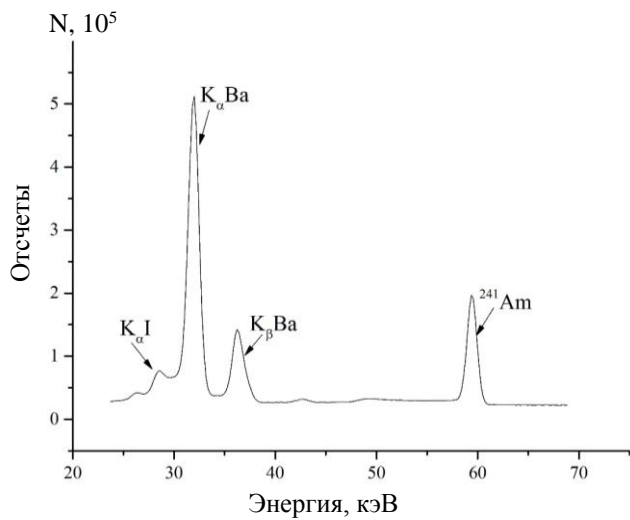


Рис. 3. Гамма-спектр образца грунта в низкоэнергетической области.

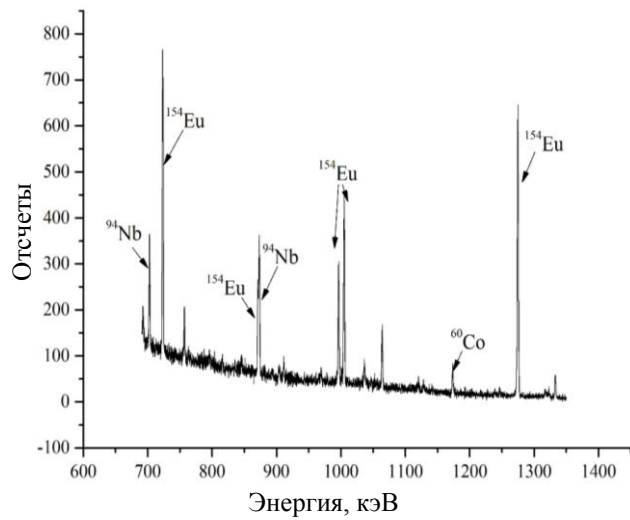


Рис. 4. Гамма-спектр образца грунта в высокоэнергетической области.



Рис. 5. Карта отбора проб.

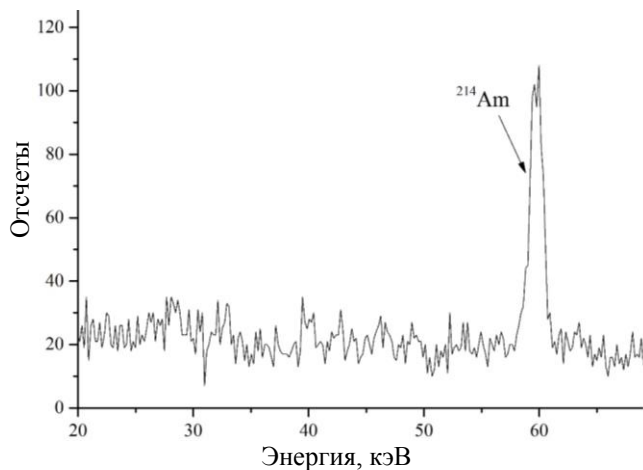


Рис. 6. Гамма-спектр образца конструктивных материалов в низкоэнергетической области.

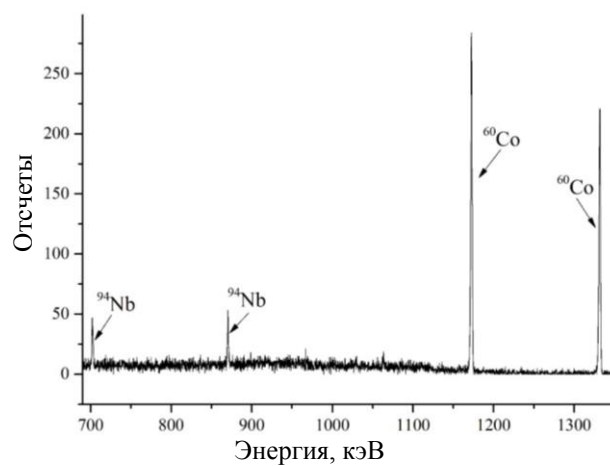


Рис. 7. Гамма-спектр образца конструктивных материалов в высокоэнергетической области, ^{60}Co и ^{94}Nb .

Таблица 3

Нуклид	Активность образцов конструктивных материалов, Бк/г				
^{60}Co	20,45	25,44	52,88	34,00	38,53
^{94}Nb	0,65	0,64	2,63	1,47	1,60
Co/Nb	31,46	39,51	20,12	23,06	24,04

Активность ^{60}Co в конструкционных материалах 2-го блока ЧАЭС в 20 - 40 раз больше, чем активность ^{94}Nb . В наших данных, с учетом поправки на срок работы 4-го блока ЧАЭС, активность ^{60}Co в 2 - 3 раза меньше, чем активность ^{94}Nb . На наш взгляд, это связано с тем, что в аварийном реакторе были высокие температуры (примерно 1800 °С). Это могло привести к более интенсивному испарению ^{60}Co по сравнению с ^{94}Nb , так как температура плавления кобальта 1495 °С, а ниобия 2468 °С.

В целом можно отметить, что на полигоны вблизи объекта «Укрытие» поступили новые выпадения, связанные как с топливосодержащими материалами, так и с конструкционными. Поэтому нужно осторожно проводить сравнения новых данных с ранее полученными.

Представленная работа выполнена за счет средств бюджетной программы «Поддержка развития приоритетных направлений научных исследований» (КПКВК 6541230).

СПИСОК ИСПОЛЬЗОВАННОЙ ЛИТЕРАТУРЫ

1. Ю.А. Иванов. Анализ факторов, определяющих долговременную динамику миграции радионуклидов в почвенно-растительном покрове. *Проблеми чорнобильської зони відчуження* 9 (2009) 23.
2. М.В. Желтоножская и др. Исследование поведения радионуклидов чернобыльского происхождения на территории опытных полигонов в ближней зоне ЧАЭС. *Ядерна фізика та енергетика* 11(3) (2010) 294.
3. М.В. Желтоножская и др. Новые методические подходы к одновременному измерению активности ^{90}Sr и ^{137}Cs в объектах окружающей среды. *Ядерна фізика та енергетика* 13(4) (2012) 403.
4. К. Зигбан. *Альфа-, бета- и гамма-спектроскопия*. Пер. с англ. Под ред. К. Зигбана. Вып. 1. (Москва: Атомиздат, 1968) с. 42.
5. А.И. Липская и др. Поведение радионуклидов в лесных экосистемах, прилегающих к 30-км зоне ЧАЭС. *Наук. праці Чорномор. нац. ун-ту ім. Петра Могили. Сер. «Техногенна безпека»* 185(173) (2012) 59.

М. В. Желтоножська, Н. В. Куліч*, Д. Є. Мизніков, В. І. Слісенко

Інститут ядерних досліджень НАН України, Київ, Україна

*Відповідальний автор: zhelton@kinr.kiev.ua

ДОСЛІДЖЕННЯ ЧОРНОБІЛЬСЬКИХ ВИПАДАНЬ У 30-КМ ЗОНІ ЧАЭС ПІСЛЯ ВСТАНОВЛЕННЯ КОНФАЙМЕНТА

Проведено дослідження поведінки радіонуклідів на сильно забруднених територіях 30-км зони ЧАЭС. Були відібрані проби у двох шарах для визначення можливого впливу робіт по перекриттю об'єкта «Укриття». Проведено методичні дослідження з обліку зміни ефективності реєстрації γ -променів у пробах великого об'єму. Для цього порівнювалася активність ^{137}Cs , визначена за виходом K_β -випромінювання Ba (36 кеВ) і γ -променів з енергією 661 кеВ. Отримано вираз, який враховує вплив щільності зразків на ефективність реєстрації γ 59 кеВ ^{241}Am . У результаті проведених досліджень спостерігається аномальне співвідношення $\text{A}(^{241}\text{Am})/\text{A}(^{137}\text{Cs})$. Величина змінюється від 0,004 до 0,30. У ряді проб спостерігалася активність ^{60}Co і ^{94}Nb . Проведено дослідження концентрації радіонуклідів у конструкційних матеріалах 2-го блока ЧАЭС. Показано, що активність ^{60}Co та ^{94}Nb пов'язана з надходженням нових випадань.

Ключові слова: радіонукліди, міграція, америцій, ніобій, кобальт.

M. V. Zheltonozhka, N. V. Kulich*, D. E. Myznikov, V. I. Slisenko

Institute for Nuclear Research, National Academy of Sciences of Ukraine, Kyiv, Ukraine

*Corresponding author: zhelton@kinr.kiev.ua

STUDY OF THE CHERNOBYL FALLOUT IN 30-KM ZONE AFTER CONSTRUCTION OF THE CONFINEMENT

Radionuclides behavior on strongly contaminated territories of 30-km Chernobyl zone was studied. Samples in two layers for determination of the possible impact of the works on construction of the "Shelter" object were collected. As a result, abnormal $\text{A}(^{241}\text{Am})/\text{A}(^{137}\text{Cs})$ ratio was observed on a number of samples. The value varies between 0.004 to 0.30. Activity of ^{94}Nb and ^{60}Co was observed on the number of samples. Problems with spectrometer calibration appeared, when samples from Chernobyl zone with low activity were used. Calibration on efficiency of γ -rays registration become complicated in low energy interval because of different density of the investigated samples. To solve this problem methodological researches were performed, taking into account efficiency variation of γ -rays registration in samples with big volume. For this purpose, activities of ^{137}Cs and γ -rays with 661 keV energy were compared. ^{137}Cs activity was defined from appearance of K_β -emission of Ba (36 keV).

Keywords: radionuclides, migration, americium, niobium, cobalt.

REFERENCES

1. Yu.A. Ivanov. Analysis of factors determining the long-term dynamics of radionuclide migration in the soil and vegetation cover. *Problemy Chornobylskoi Zony Vidchuzhennya* 9 (2009) 23. (Rus)
2. M.V. Zheltonozhska et al. Investigation of Chernobyl radionuclides behavior in researched ground at the nearest ChNPP zone. *Yaderna Fizyka ta Energetyka (Nucl. Phys. At. Energy)* 11(3) (2010) 294. (Rus)
3. M.V. Zheltonozhska et al. New methodological approaches to the simultaneous measurement of the ^{90}Sr and ^{137}Cs activity in environmental samples. *Yaderna Fizyka ta Energetyka (Nucl. Phys. At. Energy)* 13(4) (2012) 403. (Rus)
4. K. Zigban. *Alpha-, Beta- and Gamma-Spectrometry*. Translation from English. Ed. K. Zigban. Issue 1. (Moskva: Atomizdat, 1968) p. 42. (Rus)
5. A.I. Lipskaya et al. Behavior of radionuclides in forest ecosystems adjacent to the 30-km Chernobyl zone. *Naukovi Pratsi Chornomors'koho natsional'noho universytetu imeni Petra Mohyly. Ser. «Tekhnohenna bezpeka»* 185(173) (2012) 59. (Rus)

Надійшла 14.02.2019

Received 14.02.2019