

звояет оценить максимальную частоту появления дефектов в твэлах с потерей герметичности, равную $(2,3 \pm 0,2) 10^{-2}\%$ блок $^{-1}$ ·год $^{-1}$. Наличие предельного числа всплесков, после которого наступает нелинейность в зависимости на рис. 2, может стать основой новой системы прогнозирования безопасной эксплуатации реактора.

Анализ всплеска удельной активности дает возможность определить характерную утечку продуктов деления из дефектных твэлов и сравнить с используемой в программах расчета активности продуктов деления под оболочкой твэлов и в технологической среде РБМК-1000, в частности, в упомянутой программе FPR_RBMK.03.

По сумме данных пяти энергоблоков для летучих и газообразных продуктов деления получены амплитудные функции распределения всплеска активности, указывающие на существование групп дефектов в твэлах. Совокупность этих данных может содействовать решению актуального для эксплуатации реакторов вопроса об установлении соответствия между пределами повреждения твэлов и активностью теплоносителя по реперным изотопам.

Авторы выражают благодарность сотрудникам Курской и Смоленской АЭС, участвовавшим в измерениях показателей надежности твэлов в 1996 и 1997 гг. Мы признательны также Ф.Ю. Кашеварову за обсуждение работы и высказанные замечания и В.Г. Мережкину за обсуждение результатов и помощь в подготовке иллюстративного материала.

Поступила в Редакцию 10.08.99

УДК 621.311.25

УДЕЛЬНАЯ АКТИВНОСТЬ ^{243}Am и ^{243}Cm В ТОПЛИВЕ 4-го ЭНЕРГОБЛОКА ЧЕРНОБЫЛЬСКОЙ АЭС

*Агеев В.А., Выричек С.Л., Лашко А.П., Лашко Т.Н., Одинцов А.А.
(Научный центр «Институт ядерных исследований» НАН Украины)*

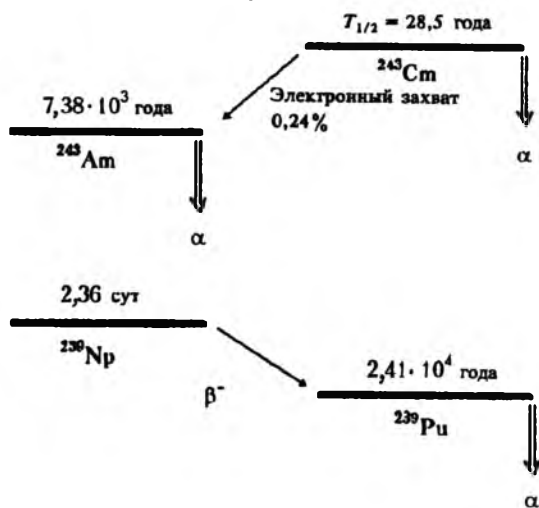
Оценки подкритичности ядерного топлива 4-го энергоблока Чернобыльской АЭС, а также массы радионуклидов, накопленных в активной зоне реактора перед аварией, проводят на основе модельных расчетов. Любое пополнение банка экспериментальных данных, особенно по наработке основных долгоживущих трансплутониевых элементов, позволяет уточнять входные параметры моделей и, следовательно, получать более достоверные результаты.

По прошествии более 10 лет с момента аварии на Чернобыльской АЭС вследствие распада радионуклидов с $T_{1/2} \leq 0,5$ года становится возможным определить содержание изотопов с более низкой концентрацией методами прецизионной ядерной спектроскопии. В настоящей работе впервые измерена удельная активность ^{243}Am и ^{243}Cm в топливе 4-го энергоблока Чернобыльской АЭС и проведено сравнение с теоретическими расчетами.

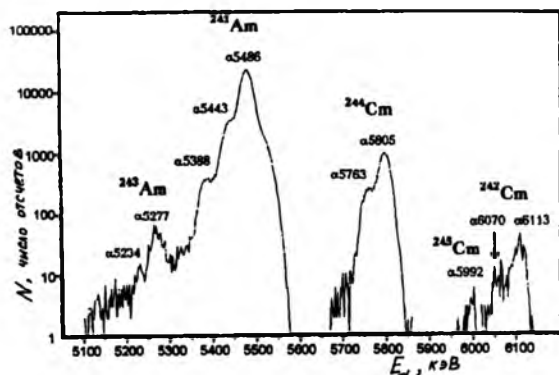
Значительная часть урана первоначальной загрузки реактора и наработанных за время кампании радионуклидов содержится в лавообразной топливосодержащей массе, являющейся продуктом высокотемпературного взаимодействия ядерного топлива с конструкционными материалами. Однако более предпочтительными являются измерения радионуклидного состава выпадений, отношение активности радионуклидов в топливной композиции которых лучше соответствует средним значениям этих отношений в топливе реактора. Этот вывод следует из сравнительного анализа результатов исследований распределения трансурановых элементов в объектах природной среды и данных об их удельной активности в аварийном топливе. Более подробно правомерность экстраполяции радионуклидного состава выпадений на состав топлива предаварийного реактора рассмотрена в работе [1].

Отношения активности $^{243}\text{Am}/^{241}\text{Am}$, $^{243}\text{Cm}/^{244}\text{Cm}$ и $^{242}\text{Cm}/^{244}\text{Cm}$ получены при радиохимическом анализе кернов из скважин, отобранных в 1997 г. на промплощадке объекта «Укрытие». Для определения представительности проб предаварийному топливу (т.е. близости измеренных отношений нелетучих радионуклидов к соответствующим расчетным для доаварийного 4-го блока) были выполнены исследования содержания ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am , ^{244}Cm в отобранных кернах. В качестве примера приведем данные радиохимического анализа керна из скважины 9-1А, расположенной на расстоянии 15 м от северной стороны объекта «Укрытие» [2] на 24 апреля 1998 г. — удельная активность, МБк/кг: ^{90}Sr 26 ± 3 ; ^{137}Cs 86 ± 13 ; ^{238}Pu $0,18 \pm 0,05$; $^{239+240}\text{Pu}$ $0,4 \pm 0,1$; ^{241}Am $0,5 \pm 0,1$; ^{244}Cm $0,027 \pm 0,005$, соотношение активности $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ $0,5 \pm 0,2$, $0,53$ [3]; $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ $1,1 \pm 0,4$, $1,1$ [3]; $^{244}\text{Cm}/^{239+240}\text{Pu}$ $0,07 \pm 0,02$, $0,086$ [3]. Соотношения активности нелетучих радионуклидов указывают на топливный характер загрязнения.

Концентрирование и выделение америция и кюрия без носителей из проб кернов проводили по методике [4], но без добавления радиоактивной метки ^{243}Am . Америцево-кюриевая фракция содержит ^{241}Am , ^{242}Am , ^{242m}Am , ^{243}Am , ^{242}Cm , ^{243}Cm , ^{244}Cm , а также ^{239}Np , активность которого быстро ($T_{1/2} = 2,36$ сут) приходит в рав-



Р и с. 1. Фрагмент схемы распада ^{243}Am и ^{243}Cm



Р и с. 2. Участок α -спектра с линиями ^{243}Am , ^{241}Am , ^{244}Cm , ^{243}Cm и ^{242}Cm , измеренный на расстоянии от детектора 10 мм и при диаметре активного пятна 12 мм

новесие с материнским ^{243}Am (рис. 1).

α -Излучение измеряли на 8-канальном α -спектрометре с полупроводниковыми кремниевыми детекторами. Высокое энергетическое разрешение (меньше 19 кэВ на линиях ^{241}Am) и низкий собственный фон прибора (около 1 имп./сут в областях локализации основных групп α -частиц) при эффективности регистрации около 25% позволяют уверенно детектировать активность до 10^{-14} Ки.

Из анализа рис. 2 следует, что группы α -частиц, относящиеся к разным изотопам америция и кюрия, хорошо разрешены.

Для измерения γ -излучения использовали спектрометр с двумя HPGe-детекторами GMX-30190 и GLP-36360/13 разрешением 750 и 580 эВ на γ -линии 122 кэВ ^{57}Co соответственно.

Спектры обрабатывали методом наименьших квадратов. Получены следующие отношения активности изотопов (на 26.04.1998 г.):

$$^{243}\text{Am}/^{241}\text{Am} = 0,0020 \pm 0,0002; \quad (1)$$

$$^{243}\text{Cm}/^{244}\text{Cm} = 0,029 \pm 0,003; \quad (2)$$

$$^{242}\text{Cm}/^{244}\text{Cm} = 0,038 \pm 0,003.$$

Отношение активности $^{242}\text{Cm}/^{244}\text{Cm}$ согласуется со значением $^{242}\text{Cm}/^{244}\text{Cm} = 0,035 \pm 0,003$ [1], полученным при анализе проб почвы полигона 34-02-03. Этот факт еще раз подтверждает правильность выбранного методического подхода.

Согласно расчетам [3, 5, 6] по накоплению трансурановых элементов в топливе 4-го энергоблока теоретическое значение отношения активности $^{243}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ равно 0,0034, что в 1,7 раза превышает экспериментальное.

Расчеты по наработке ^{243}Cm выполнены для РБМК-1000 только для основных режимов облучения [7, 8]. Удельная активность радионуклидов и, следовательно, их отношения зависят от глубины выгорания топлива. Экспериментальное значение отношения активности $^{243}\text{Cm}/^{244}\text{Cm}$ соответствует теоретическому при глубине выгорания ~ 19 МВт·сут/кг, которое значительно превышает среднее выгорание для 4-го энергоблока, равное 10,9 МВт·сут/кг [5]. Наблюдаемые различия экспериментальных и теоретических значений отношения активности $^{243}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ и $^{243}\text{Cm}/^{244}\text{Cm}$ обусловлены, с одной стороны, снижением точности расчетов по наработке для трансурановых элементов с более высоким массовым числом, с другой, неточностью исходных параметров модели, которые могут быть скорректированы по экспериментальным данным.

Для оценки содержания ^{243}Am и ^{243}Cm в топливе были использованы отношения активности изотопов (1) и (2), а также расчетные данные об исходном количестве ^{244}Cm , ^{241}Am и ^{241}Pu : $1,8 \cdot 10^9$, $8,7 \cdot 10^8$, $9,6 \cdot 10^{11}$ Бк/кг соответственно [3].

На 26 апреля 1998 г. удельная активность ^{243}Am составила $3 \cdot 10^7$ Бк/кг, ^{243}Cm — $3,3 \cdot 10^7$ Бк/кг. Заметим также, что удельная активность ^{239}Np равна активности материнского ^{243}Am .

В заключение укажем, что в работе [9] рассчитаны дозовые нагрузки, обусловленные загрязнением территории долгоживущими продуктами ядерного топливного цикла. Оказалось, что при одинаковой плотности загрязнения аккумулированная эффективная доза, инициированная ^{243}Am , превышает аналогичную от ^{90}Sr , ^{134}Cs , ^{137}Cs и более чем в 100 раз от ^{239}Pu . Учитывая, что отношение активности $^{239}\text{Pu}/^{243}\text{Am}$ в загрязнении, обусловленном аварией на Чернобыльской АЭС, составляет ~ 170 , можно утверждать, что интегральные дозовые нагрузки от ^{243}Am по порядку величины сравнимы с аккумулированной эффективной дозой от ^{239}Pu .

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Агеев В.А., Выричек С.Л., Ключников А.А. и др. Оценка содержания ^{242}mAm в топливе 4-го энергоблока Чернобыльской АЭС. — Атомная энергия, 1998, т. 84, вып. 4, с. 340—344.
2. Боровой А.А. Некоторые вопросы «физической стабилизации» объекта «Укрытие». — В сб.: Объект «Укрытие» — 10 лет. Основные результаты научных исследований. Чернобыль, 1996, с. 183—187.
3. Герасько В.Н., Ключников А.А., Корнеев А.А. и др. Объект «Укрытие». История, состояние и перспективы. Киев: Интерграфик, 1997. 224 с.
4. Агеев В.А., Ключников А.А., Одинцов А.А. и др. Способ определения содержания плутония, продуктов деления и трансурановых элементов в объектах окружающей среды. А.с. № 1701047 SU, 1991.
5. Боровой А.А., Довбенко А.А., Маркушев В.М., Строганов А.А. Радиационно-физические характеристики топлива 4-го энергоблока ЧАЭС и оценка их погрешности. Справочник. Чернобыль, 1989.
6. Бегичев С.Н., Боровой А.А., Бурлаков Е.В. и др. Топливо реактора 4-го блока ЧАЭС (краткий справочник): Препринт ИАЭ-5268/3, 1990. 21 с.
7. Герасимов А.С., Зарицкая Т.С., Рудик А.П. Справочник по образованию нуклидов в ядерных реакторах. М.: Энергоатомиздат, 1989. 575 с.
8. Колобашкин В.М., Рубцов П.М., Ружанский П.А., Сидоренко В.Д. Радиационные характеристики облученного ядерного топлива. Справочник. М.: Энергоатомиздат, 1983.
9. Eissfeld K., Matthies M., Paretzke H.G., Wirth E. An assessment of the relative importance of long-lived radionuclides released in accidents from the back-end of the nuclear fuel cycle. — In: Environmental Migration of Long-Lived Radionuclides. Vienna: IAEA, 1982, p. 701—708.