

3. Гофман Дж. Рак, вызываемый облучением в малых дозах: неформальный анализ проблемы. Пер. с англ. под ред. Е.Б. Бурлаковой и В.Н. Лысцова. М.: 1994.
4. Direct estimates of cancer mortality due to low doses of ionising radiation: an international study. — *The Lancet*, 1994, v. 344, p. 1039—1043.
5. Ярмоненко С.П. Радиобиология человека и животных. М.: Высшая школа, 1977.
6. Fremlin J. Is A little Radiation Good for You? Open Lecture Delivered in the School of Physics and Space Researches. Univ. Birmingham, Preprint, 1989.
7. Проблема очень малых доз облучения. Пер. с англ. Н.Л. Власовой, № 156. М.: 1990.
8. Korogodin V.I., Kutlahkmedov Yu.A. Problems of vast radionuclide—polluted areas. — *J. Radioecology*, 1993, v. 1, p. 39—47.
9. Корогодин В.И. Проблема допустимых доз облучения биоты. — *Экология*, 1995, с. 39—47.
10. Кузин А.М. Идеи радиационного гормезиса в атомном веке. М.: Наука, 1995.
11. Кеирим-Маркус И.Б. Новые сведения о действии на людей малой дозы ионизирующего излучения — кризис господствующей концепции регламентации облучения? — *Атомная энергия*, 1995, т. 79, вып. 4, с. 279—285.

Поступила в Редакцию 30.09.96

УДК 621.039

ЯДЕРНОЕ ТОПЛИВО И ОСОБЕННОСТИ ФОРМИРОВАНИЯ АЭРОЗОЛЕЙ В ОБЪЕКТЕ «УКРЫТИЕ»

Кузьмина И.Е. (МНТЦ «Укрытие» НАНУ),

Лобач Ю.Н. (НЦ «Институт ядерных исследований» НАНУ)

Известно, что в настоящее время внутри объекта «Укрытие», возведенного над аварийным энергоблоком Чернобыльской АЭС, облученное ядерное топливо и продукты его изменения находятся в виде пяти основных модификаций: фрагментов активной зоны, мелкодиспергированного топлива — горячих топливных частиц, лавообразной топливосодержащей массы [1], водных растворов и вторичных урановых минералов [2].

Принято считать, что аварийный выброс имел два компонента — один содержал радиоактивные вещества с низкой (I, Cs), другой — с относительно высокой температурой кипения (Sr, Ce, Pu и др.) в составе урановой матрицы [3]. Температура в активной зоне достигала ~ 1700 °С, при этом топливо частично диспергировалось [4], а соотношение количества ^{144}Ce , U и трансурановых элементов осталось неизменным и близким к усредненному для всего топлива [5]. Поэтому многие исследователи придерживаются мнения об усредненном составе топлива 4-го энергоблока.

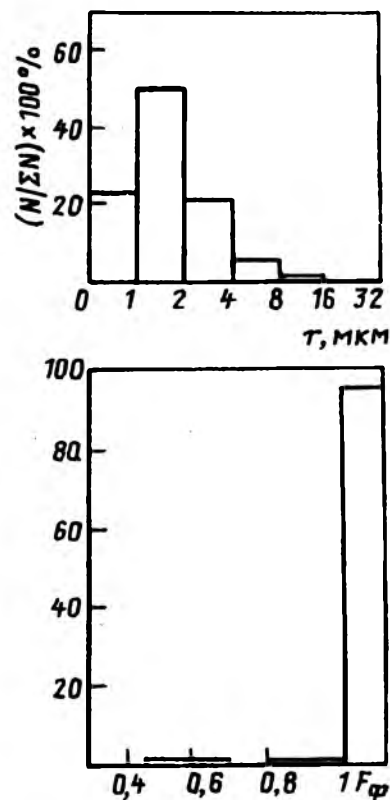
К моменту аварии активная зона реактора содержала 1659 ТВС с массой урана в каждой ~ 0,1147 т, всего ~ 190,2 т [6]. Большая часть загрузки имела выгорание от 11 до 15 МВт·сут/кг, в активной зоне было также некоторое количество свежего топлива. Накопление продуктов деления и трансурановых элементов, а также удельная активность радионуклидов в зависимости от выгорания рассчитаны в работе [7] с учетом неравномерности поля энерговыделения РБМК-1000. В соответствии с картограммой загрузки определено выгорание и рассчитана масса наработанных нуклидов в каждой ТВС и суммированием по всем ТВС определена полная масса каждого нуклида, накопленного в активной зоне (табл. 1). При этом количество ^{235}U соответствовало эффективному обогащению 1,1 %. Именно такой состав топлива и принят нами в качестве среднего.

В настоящей работе представлены результаты экспериментальных исследований дисперсной фазы аэрозолей и вторичных урановых минералов, не объяснимые принятой на сегодня версией развития аварии.

Т а б л и ц а 1. Рассчитанные значения активности и массы основных долгоживущих нуклидов, накопленных в ядерном топливе 4-го энергоблока Чернобыльской АЭС на 26.04.86 г. [7]

Нуклид	Период полураспада	A, Бк	M, кг
⁹⁰ Sr	29,12 года	$0,23 \cdot 10^{18}$	15
¹⁰⁶ Ru	368,2 сут	$0,86 \cdot 10^{18}$	6,9
¹³⁴ Cs	2,06 года	$0,17 \cdot 10^{18}$	3,6
¹³⁷ Cs	30,17 года	$0,26 \cdot 10^{18}$	80
¹⁴⁴ Ce	284,3 сут	$0,39 \cdot 10^{19}$	32
²³⁷ Np	2 140 000 лет	$0,26 \cdot 10^{12}$	10
²³⁹ Np	2,355 сут	$0,58 \cdot 10^{20}$	6,7
²³⁸ Pu	87,74 года	$0,13 \cdot 10^{16}$	2
²³⁹ Pu	24 110 лет	$0,95 \cdot 10^{15}$	410
²⁴⁰ Pu	6553 года	$0,15 \cdot 10^{16}$	180
²⁴¹ Pu	14,4 года	$0,18 \cdot 10^{18}$	49
²⁴² Pu	376 000 лет	$0,29 \cdot 10^{13}$	20
²⁴¹ Am	443 года	$0,16 \cdot 10^{15}$	1,3
²⁴³ Am	7380 лет	$0,97 \cdot 10^{13}$	1,3
²⁴² Cm	168,2 сут	$0,43 \cdot 10^{17}$	0,35
²⁴⁴ Cm	18,11 года	$0,43 \cdot 10^{15}$	0,14

Исследование дисперсной фазы аэрозолей. Морфологию частиц дисперсной фазы исследовали на растровом электронном микроскопе Tesla BS-340. Для исследованных частиц аспирационной дисперсной фазы фактор формы F_{ϕ} ($F_{\phi} = \pi S / p^2$, где S , p — площадь и периметр частицы соответственно) не ниже 0,85 (рис. 1), около 80—90% таких частиц имеют форму, близкую к сферической, и могли образоваться только при высокотемпературном распылении материалов и последующей конденсации паров, т.е. в активной стадии аварии. Известно, что конденсационные аэрозоли образуются в процессе объемной конденсации паров или при конденсации паров на первичных аэрозольных частицах. Последний процесс происходит в результате пересыщения паров при адиабатическом расширении и охлаждении газов, в том числе при смешении газовых потоков с разной температурой [8]. Сферические частицы с неравномерным распределением нуклидов в различных слоях при содержании во внешнем слое наиболее летучих компонентов могут образовываться при ядерном взрыве [8—10].



Р и с. 1. Результаты морфологического анализа аспирационной дисперсной фазы аэрозолей из помещения 284/5 объекта «Укрытие»

Элементный состав частиц определяли методом локального электронно-зондового анализа [11]. Для каждого проанализированного образца элементный состав является специфичным, что свидетельствует о разных механизмах образования и формирования аэрозолей в различных помещениях объекта «Укрытие». Например, для парораспределительного коридора характерно наличие большого числа частиц из графита, среди которых встречаются очень круп-

ные с аномальными для аспирационной дисперсной фазы размерами (до 15 мкм), а также сферические частицы, в состав которых входит Fe и Mn и (или) Na, Al, Si, Mg, Ca. В помещении 269, находящемся на той же высотной отметке, присутствуют частицы, содержащие большое количество серы (до 10% по массе).

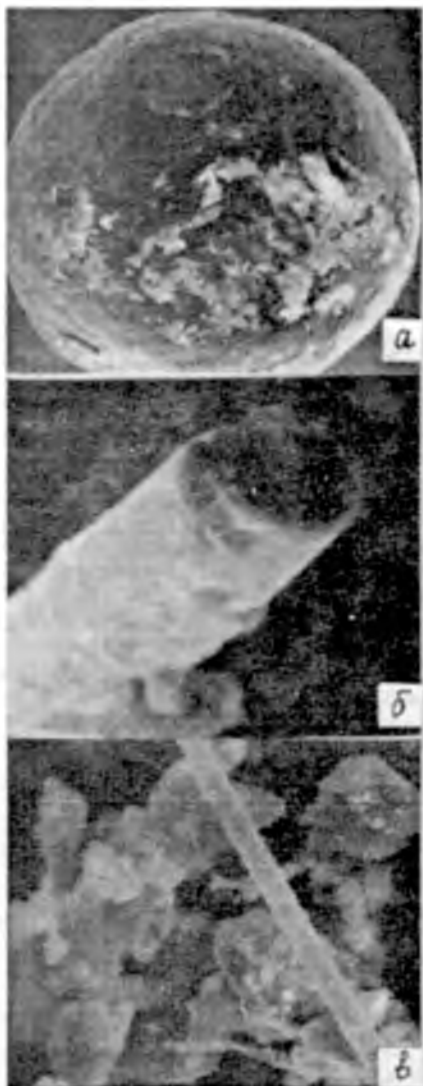
Основными элементами частиц аспирационной дисперсной фазы являются Si (определен примерно в 60% частиц), Fe (50%), Al (45%), Ca (40%), Na (35%), S (30%), K (30%), обнаружены также Mg (20%) и Mn (15%). Около 20% частиц состоит полностью из графита.

Уран определен только в составе аксессуаров, находящихся на поверхности приблизительно 10% исследованных частиц, преимущественно в частицах из фильтров, отобранных на нижних высотных отметках объекта «Укрытие». Размер этих аксессуаров менее 0,1 мкм.

В частицах, присутствующих на поверхностях объекта «Укрытие», выделяются сферические, нитевидные и конгломераты неопределенного габитуса (рис. 2).

Возможность образования нитевидных частиц отмечена в работе [8]. Элементный состав их внутренней и приповерхностной области различен. Например, приповерхностный слой нитевидных частиц содержит алюминия меньше, а железа больше, чем их центральная часть. Из рис. 2 видно также, что приповерхностный слой нитевидных частиц отличается от их центральной части по контрасту. Отсюда можно заключить, что нитевидные частицы, как и сферические, образовывались из газовой фазы в активной стадии аварии. Не исключено, что высокотемпературные процессы, в которых образовались сферические и нитевидные частицы дисперсной фазы, были аналогичны тем, которые происходят при промышленном обогащении урана (высокоскоростное газовое центрифугирование).

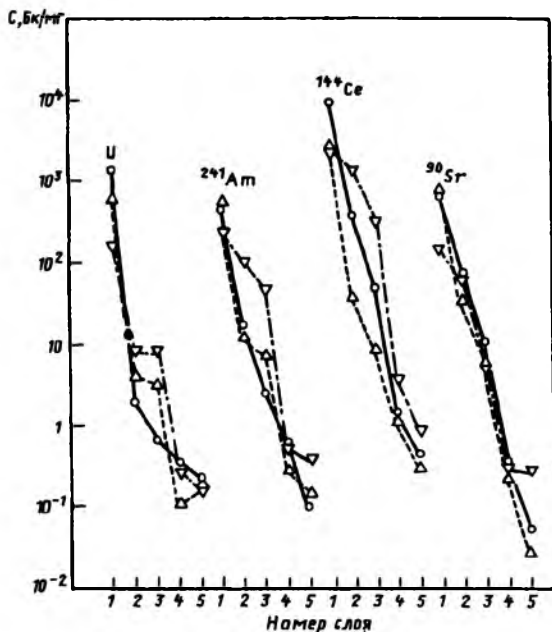
Распределение радионуклидов по глубине крупных сферических частиц определяли последовательным стравливанием поверхностных слоев. Для измерения плутония применяли α -спектрометрию радиохимически обработанных препаратов, ^{241}Am — γ -спектрометрию, ^{90}Sr — радиохимию, урана — люминесцентный анализ параллельной аликвоты. Из табл. 2 видно, что измеренное отношение Pu/U в различных слоях отличается в 1000 раз. На рис. 3 показаны результаты расчета удельной активности плутония в различных слоях крупных сферических частиц, выполненного с использованием корреляционных соотношений измеренной активности ^{90}Sr , ^{144}Ce , ^{241}Am и урана для среднего топлива. Видно, что рассчитанная таким образом концентрация плутония отличается в несколько раз в ту и другую сторону.



Р и с. 2. Морфологические типы частиц осажженной дисперсной фазы: а — сферические; б — нитевидные; в — конгломераты неопределенного габитуса

Т а б л и ц а 2. Результаты измерения количества плутония и урана в различных слоях сферических частиц

Номер слоя	Активность, Бк		Масса слоя, г	Удельная активность Pu, Бк/г	Содержание урана в слое, % по массе	Pu/U, Бк/г
	^{238}Pu	$^{239+240}\text{Pu}$				
1	$86,0 \pm 1,5$	$172,0 \pm 2,6$	$2,3 \cdot 10^{-3}$	$(1,12 \pm 0,02)10^5$	$0,43 \pm 0,07$	$(2,6 \pm 0,4)10^7$
2	$42,0 \pm 0,7$	$98,0 \pm 1,9$	$1,3 \cdot 10^{-3}$	$(1,08 \pm 0,03)10^5$	$7,2 \pm 1,2$	$(1,5 \pm 0,3)10^6$
3	$21,0 \pm 0,4$	$44,0 \pm 0,8$	$2,5 \cdot 10^{-3}$	$(2,60 \pm 0,06)10^4$	$0,8 \pm 0,13$	$(3,3 \pm 0,6)10^6$
4	$4,5 \pm 0,1$	$6,6 \pm 0,2$	$1,5 \cdot 10^{-2}$	$(7,4 \pm 0,3)10^2$	$4,0 \pm 0,7$	$(1,9 \pm 0,3)10^4$
5	$4,3 \pm 0,1$	$6,3 \pm 0,2$	$1,1 \cdot 10^{-2}$	$(9,7 \pm 0,4)10^2$	$3,8 \pm 0,6$	$(2,6 \pm 0,4)10^4$



Р и с. 3. Концентрация плутония в различных слоях сферических частиц, рассчитанная по корреляционным отношениям измеренной концентрации ^{144}Ce , ^{241}Am , ^{90}Sr , U для среднего ядерного топлива (О, V, Δ соответствуют разным сферическим частицам)

Существенной отличительной особенностью элементного состава частиц-конгломератов является наличие на их поверхности аксессуариев с аномально высоким содержанием стронция. Так, имеются локальные участки, в которых его содержание превышает 10% по массе.

В осажденной дисперсной фазе частицы, содержащие уран, встречаются редко. Так же, как и в аспирационных аэрозолях, уран находится в виде аксессуариев на поверхности частиц, размер которых не превышает 0,1 мкм.

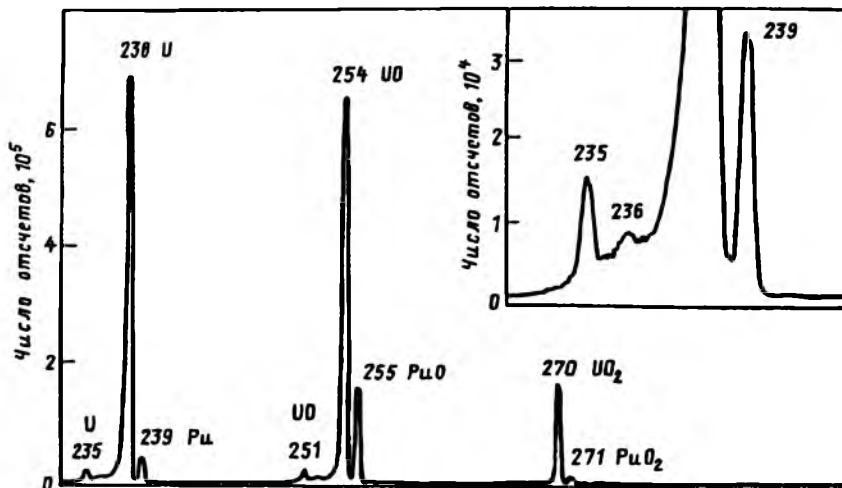
Рентгенофазовый анализ показал, что по минеральному составу аэрозоли можно разделить на три группы: существенно кремнеземные, алюмосиликатные и карбонатные.

Следовательно, исследованные нами частицы дисперсной фазы не являются частицами ядерного топлива.

Исследование состава вторичных урановых минералов. К сожалению, масс-спектрометрические исследования топливосодержащей массы в течение

10 лет после аварии не проводились. Глубину выгорания содержащегося в ней топлива определяли по цезиевому отношению (что, по нашему мнению, для случая аварийного топлива недопустимо), по которому и рассчитывали реальное обогащение с учетом начального 2%-ного обогащения ^{235}U в свежем топливе.

В настоящей работе выполнены масс-спектрометрические исследования препаратов вторичных урановых минералов, взятых с поверхности лавообразной топливосодержащей массы в помещениях парораспределительного коридора. Измерения выполнены с помощью прибора «Balcers», фрагмент одного спектра приведен на рис. 4. Видно, что соотношение пиков ^{235}U и ^{238}U соответствует обогащению ~ 2%. Можно было бы предположить, что исследованные минералы выросли из свежего топлива. Вместе с тем пик ^{239}Pu примерно в 2,5 раза больше, чем ^{235}U , хотя для случая среднего топлива отношение Pu/U должно было бы быть в 5 раз меньше. Такое несоответствие велико и не может быть объяснено методическими погрешностями. Также маловероятно, что отношение Pu/U вследствие каких-либо геохимических факторов становится



Р и с. 4. Фрагмент масс-спектра препарата вторичных урановых минералов объекта «Укрытие»

больше, чем в исходном топливе. Действительно, в водных растворах зоны гипергенеза уран находится только в валентном состоянии 6^+ , плутоний может находиться в состояниях 3^+ , 4^+ , 5^+ , 6^+ , но преимущественно мигрирует только Pu^{6+} , который является химическим аналогом U^{6+} [12—15]. Таким образом, вопрос об изотопном отношении Pu/U в продуктах изменения облученного ядерного топлива остается открытым и требует детальных исследований.

Заключение. В активной стадии аварии по крайней мере в локальной точке реактора происходили процессы высокотемпературного распыления материалов, перехода элементов в газовую фазу, их конденсации, которые привели в некоторых случаях к существенному отличию отношения Pu/U в крупных сферических частицах дисперсной фазы от характерного для среднего ядерного топлива 4-го энергоблока Чернобыльской АЭС. Таким образом, термин «среднее ядерное топливо» по отношению к материалам, содержащим ядерное топливо в объекте «Укрытие», неадекватен.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Богатов С.А., Боровой А.А., Евстрятенко А.С. и др. Динамика поведения топливных масс в объекте «Укрытие»: Препринт Ин-та кибернетики им. В.М. Глушкова АН Украины № 92-29, 1992. 20 с.
2. Вишневский А.С., Кузьмина И.Е., Ткач В.Н., Токаревский В.В. Экспериментальные исследования радиоактивных новообразований объекта «Укрытие». — В сб.: Проблемы Чернобыльской зоны відчуження. Київ: Наукова думка, 1995, 3-й вип., с. 24.
3. USSR State Committee on the Utilization of Atomic Energy «The Accident at the Chernobyl NPP and its Consequences». IAEA Post Accident Review Meeting, Vienna, 25—29 August 1986.
4. Богатов С.А., Воровой А.А. О некоторых свойствах топливосодержащих частиц, образовавшихся при аварии на Чернобыльской АЭС, и особенностях формирования топливного выброса: Препринт ИАЭ-5344/3, 1991. 31 с.
5. Андерсон Е.Б., Богатов С.А., Боровой А.А. и др. Лавообразные топливосодержащие массы объекта «Укрытие»: Препринт Ин-та кибернетики им. В.М. Глушкова АН Украины № 93-17, 1993. 44 с.
6. Бегичев С.Н., Боровой А.А., Бурлаков Е.В. и др. Топливо реактора 4-го блока ЧАЭС: Препринт ИАЭ-5268/3, 1990. 21 с.
7. Боровой А.А., Довбенко А.А., Смолянкина М.В., Строганов А.А. Определение ядерно-физических характеристик топлива 4-го энергоблока ЧАЭС. Отчет ИБРАЭ АН СССР 52/11-20, 1991.
8. Васманов П.И., Петрянов-Соколов И.В. Легкие респираторы. М.: Мир, 1974. 213 с.
9. Израэль Ю.А. Изотопный состав радиоактивных выпадений. Л.: Гидрометеоназд, 1973. 108 с.
10. Радиоактивные частицы в атмосфере. Сб. ст. Пер. с нем. под ред. А.В. Быховского и др. М.: Госатомиздат, 1963. 220 с.
11. Растровая электронная микроскопия и рентгеновский микроанализ. В 2-х кн. Кн. 2. Пер. с англ. М.: Мир, 1984. 348 с.

12. Щербина В.В., Наумов Г.Б. Основные особенности урана, определяющие его геохимию. — В кн.: Основные черты геохимии урана. М.: Изд-во АН СССР, 1963. 352 с.
13. Вдовенко В.М. Химия урана и трансураниевых элементов. М.: Изд-во АН СССР, 1960. 700 с.
14. Трансураниевые элементы в окружающей среде. Пер. с англ. М.: Энергоатомиздат, 1985. 344 с.
15. Нефедов В.Д., Текстер Е.Н., Торопова М.А. Радиохимия. М.: Высшая школа, 1987. 272 с.

Поступила в Редакцию 18.09.96

УДК 621.039.586

ВЕРТИКАЛЬНАЯ МИГРАЦИЯ РАДИОНУКЛИДОВ В ПОЧВЕ ВОСТОЧНО-УРАЛЬСКОГО СЛЕДА И ЕЕ ВЛИЯНИЕ НА ИНТЕНСИВНОСТЬ ИСХОДЯЩЕГО ИЗЛУЧЕНИЯ

Батурин В.А.

(Уральский научно-практический центр радиационной медицины)

Исследование распределения радионуклидов по профилю почвы является актуальным, так как позволяет:

оценивать запас радионуклидов в различных горизонтах почвы на загрязненных территориях;

разрабатывать и корректировать модели миграции радионуклидов и давать на их основе прогноз или ретроспективные оценки радиационно-гигиенической обстановки для различных ситуаций;

определять глубину проникновения радионуклидов и скорость естественной дезактивации почвы.

В свою очередь эта информация позволяет решать вопросы, связанные с возможностью безопасного проживания населения, ведения сельского хозяйства и другой производственной деятельности, с необходимостью и целесообразностью проведения или уже проведенных защитных или реабилитационных мероприятий на загрязненных территориях.

Вертикальная миграция радионуклидов является одним из основных механизмов естественной дезактивации почвы. Проникновение радионуклидов в более глубокие слои почвенного покрова влияет не только на уменьшение их корневого поступления в растения, но и существенно снижает интенсивность исходящего из почвы излучения.

Вертикальная миграция радионуклидов в почве. Вертикальное распределение ^{90}Sr + ^{90}Y и ^{137}Cs в почве исследовали на территории восточно-уральского следа, образовавшегося в 1957 г. [1].

Начиная с 1962 г., пятого года после выпадения радионуклидов, на реперных площадках следа периодически отбирали пробы почвы глубиной не менее 30 см на трех типичных почвах уральской зоны: дерново-подзолистой, серой лесной и черноземе выщелоченном. Площадки располагались вблизи оси следа на расстоянии от 12 до 60 км от эпицентра аварии. Плотность загрязнения почвы на них составляла по ^{90}Sr от 10 до 500 Ки/км², ^{137}Cs — от 1 до 25 Ки/км².

Удельную концентрацию ^{90}Sr в односантиметровом слое почвы определяли радиохимическим методом, ^{137}Cs — γ -спектрометрическим по стандартным методикам [2].

Данные о распределении радионуклидов по вертикальному профилю почвы, полученные за первые 10 лет после аварии, удалось описать следующим полуэмпирическим выражением:

$$C(x, t) = K \frac{A_0}{Vdt} - \exp(H \ln \frac{x}{Vdt} - \frac{x}{VdT} - \lambda t) \quad \text{при } t > 5 \text{ лет}, \quad (1)$$