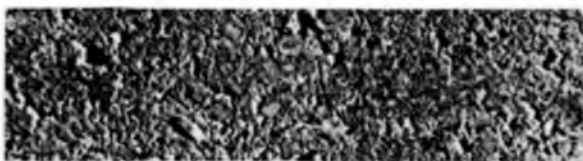


К другой группе моделей относятся межфазные реакции с образованием на поверхности твердого тела сплошных (защитных) пленок, при этом ионы твердой фазы, промигрировавшие наружу через оксидный слой, вступают во взаимодействие с газом-реактантом, т.е. реакция протекает на поверхности твердой фазы. Рост сплошных пленок сопровождается самоторможением процесса, т.е. уменьшением скорости окисления по мере утолщения пленки [6]: $d = A + B \ln t$ при d до 500 нм, $d^3 = A + Bt$ — до 10^4 нм, $d^2 = A + Bt$ — свыше 10^4 нм. Логарифмическая закономерность характеризует в основном рост тонких пленок (для $d \leq 500$ нм). В случае окисления брикетов из нитрида алюминия образующийся оксидный слой имеет толщину 0,3—1,5 мм. Согласно теории Эванса [6] рост толстых оксидных пленок может протекать не только по параболическому, но и по логарифмическому закону в тех случаях, когда в оксидной пленке присутствуют микропузырьки и пустоты, которые препятствуют диффузии ионов металла и тормозят процесс окисления, контролируемый этой диффузией.

На рис. 4 представлен снимок среза брикета нитрида алюминия, на котором отчетливо видны внутренние пустоты, образующиеся, вероятно, при прессовании. Следовательно, для описания механизма процесса термического окисления нитрида алюминия наиболее применима модель Эванса, которая обосновывает логарифмический закон роста толстых пленок.



Р и с. 4. Срез брикета нитрида алюминия после азотирования ($\times 5$)

На основании анализа, проведенного при изучении механизма термического окисления нитрида алюминия в кислороде, можно сделать вывод, что скорость извлечения углерода определяется диффузией, которая в свою очередь может тормозиться из-за наличия внутренних микропустот в брикете. При этом уменьшается эффективное поперечное сечение для диффузии ионов из твердой фазы на поверхность оксидного слоя.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Левин В.И. Получение радиоактивных изотопов. М.: Атомиздат, 1972, с. 110—112.
2. Nair V., Murthy T., Biswas C. e.a. Production of carbon-14 from pile irradiated aluminium nitride. — In: Proc. Chemistry Symp., Aligarh, 1972, v. 1, p. 251—256.
3. Патент Франция № 1511663, кл. МКИ G21g, 1966. Procédé de Preparation de Composés Marqués au Carbone-14.
4. Barakat M., Farag A. On the preparation of carbon-14 from neutron-irradiated aluminium nitride. — Atompraxis, 1968, № 11/12, p. 489—491.
5. Hata K., Shikata E., Amano H. Release of carbon-14 from neutron-irradiated aluminium nitride in the dry procedure. — J. Nucl. Sci. Techn., 1973, v. 10, № 2, p. 89—94.
6. Жук Н.П. Курс теории коррозии и защиты металлов. М.: Металлургия, 1976, с. 45—83.

Поступила в Редакцию 25.11.96

УДК 621.039.763

ОЦЕНКА ВТОРИЧНОГО ЗАГРЯЗНЕНИЯ ВОДЫ ЕНИСЕЯ

Носов А.В. (ГИПЭ), Мартынова А.М. (КНЦ СО РАН)

При длительных промышленных сбросах, а также в случае ядерных аварий донные отложения рек и водоемов, подвергшихся радиоактивному загрязнению, накапливают большое количество радиоактивных веществ. После снижения сбросов или их полного прекращения накопленные в донных и русловых отложениях нуклиды в течение длительного времени могут служить источником вторичного радиоактивного загрязнения воды. Прогноз уровней вторичного загрязнения рек и водоемов является важной задачей охраны окружающей среды.

В настоящей статье рассматривается модель переноса радиоактивных веществ в Енисее, которую можно использовать для оценки вторичного загрязнения воды. В качестве примера приводится расчетная оценка максимальной концентрации ^{137}Cs в воде Енисея на участке от Красноярского горно-химического комбината до пос. Стрелка.

За время деятельности комбината в течение более чем 30 лет в Енисей поступали радиоактивные вещества, в результате чего вода, дно, гидробионты и пойменные участки оказались загрязненными на значительном расстоянии. Основным источником поступления радиоактивных веществ в Енисей являлась вода охлаждения двух прямоточных реакторов, которую сбрасывали через придонный рассеивающий водовыпуск у правого берега примерно в 6 км выше пос. Атаманово. В 1992 г. реакторы были сняты с эксплуатации, в результате чего количество сбрасываемых в реку радионуклидов снизилось более чем в 15 раз. Основным источником радиоактивного загрязнения Енисея в настоящее время являются вода охлаждения системы управления защитой энергетического реактора, эксплуатировать который предполагается до 2000 г., а также трапная вода реакторного и радиохимического производств. Снижение сброса радиоактивных веществ привело к резкому (в 100—1000 раз) уменьшению концентрации нуклидов в воде реки, но в значительно меньшей степени повлияло на радиоактивное загрязнение русловых и пойменных наносов. Уменьшение радиоактивного загрязнения русловых отложений происходило в основном за счет распада более короткоживущих нуклидов (^{54}Mn , ^{58}Co , ^{65}Zn). Изменения концентрации долгоживущих радионуклидов, таких, как ^{60}Co , ^{137}Cs , ^{152}Eu , в донных отложениях и почве поймы не обнаружено [1]. Загрязненное радиоактивными веществами дно Енисея и его пойма могут продолжить время служить источником вторичного загрязнения (см. таблицу).

Концентрация долгоживущих γ -излучающих нуклидов в 30-сантиметровом слое песчано-илистых донных отложений Енисея на участке от комбината до пос. Стрелка по результатам исследований 1993—1994 гг., Бк/кг сухой массы

Место отбора проб	Расстояние от сброса, км	^{60}Co	^{137}Cs	^{152}Eu
Протока Барабановская	15, выше	—	5—15	—
Ухвостье о-ва Атамановского	6, ниже	1500—2500	700—1200	900—4000
Протока Балчуговская, левый берег	16 »	500—1500	150—800	350—600
Протока Канская, правый берег	25 »	100—200	50—600	50—400
Ухвостье о-ва Предивинский осередок	100 »	20—200	50—400	50—200
Ухвостье о-ва Казачинского	180 »	20—240	20—250	40—180
Протока о-ва Лопатина	250 »	40—260	50—300	20—150

Модель вторичного загрязнения воды. Для описания переноса радиоактивной примеси речными водами целесообразно взять за основу метод расчета, предложенный в работе [2]. В этом методе предполагается, что основной поток воды в реке можно условно разделить по глубине на два слоя с разными характеристиками: основную часть глубиной H (м) и придонный слой толщиной δ , при этом $\delta \ll H$. Основная часть потока характеризуется средней скоростью течения v , придонный слой — скоростью v_d . Соотношение между скоростями подчиняется зависимости $v_d = \eta v$, где $\eta = \sqrt{(0,53C_{\text{ш}} - 4,1)/(C_{\text{ш}} - 2)}$. Здесь $C_{\text{ш}}$ — коэффициент Шези, $\sqrt{\text{м/с}}$.

Для определения толщины придонного слоя можно воспользоваться гипотезой о пропорциональности толщины пограничного слоя размеру слагающих дно реки частиц [3].

В пренебрежении продольной диффузией радиоактивных веществ по сравнению с конвективным переносом, а также в предположении отсутствия переноса радионук-

лидов из воды в воздух система дифференциальных уравнений, описывающая баланс радиоактивности для придонного слоя и основного потока реки, имеет вид [2]

$$\begin{cases} \frac{\partial C_d}{\partial t} = -v_d \frac{\partial C_d}{\partial x} + \frac{1}{\delta} (q_d - q_{гр}) - \lambda C_d; \\ \frac{\partial C}{\partial t} = -v \frac{\partial C}{\partial x} + \frac{1}{H} q_{гр} - \lambda C, \end{cases} \quad (1)$$

где C_d , C — средняя концентрация i -го нуклида в воде для донного слоя и основного потока с учетом растворенной и взвешенной фракций соответственно, Бк/м³; q_d — удельный поток i -го радионуклида с единицы поверхности дна в воду, Бк/(м²·с); $q_{гр}$ — удельный поток нуклида через границу между основным и придонным слоем, Бк/(м²·с).

Значение $q_{гр}$ определяется по формуле

$$q_{гр} = 2K (C_d - C)/H, \quad (2)$$

где K — коэффициент вертикальной турбулентной диффузии основного потока, м²/с, рассчитываемый по формуле [4]:

$$K = gH\nu/M C_{III}. \quad (3)$$

Здесь M — параметр, зависящий от коэффициента Шези (произведение $M C_{III}$ имеет размерность м/с²), при $10 < C_{III} < 60$ определяется по формуле

$$M = 0,7 C_{III} + 6; \quad (4)$$

при $C_{III} > 60$ $M = 48 = \text{const}$; g — ускорение свободного падения, м/с²; λ — постоянная распада i -го нуклида, 1/с.

Величина q_d в системе уравнений (1) является наиболее важным параметром, так как определяет источник поступления радионуклидов в воду. Для его определения можно воспользоваться данными натурных исследований [1, 5]. В результате проведенных работ было установлено, что наиболее сильно загрязнены песчано-илистые отложения Енисея в местах разгрузки взвешенных наносов. Радионуклиды в верхнем слое толщиной в 30—50 см распределены, как правило, неравномерно и часто наблюдается их повышенная концентрация по профилю отложений. При таком характере загрязнения дна, когда имеется тенденция к перекрытию загрязненных наносов относительно более чистыми отложениями, основным механизмом вторичного загрязнения воды следует считать диффузионный массообмен.

Определим удельный поток по формуле

$$q_d = \beta(t)(C_0 - C_d), \quad (5)$$

где $\beta(t)$ — коэффициент массообмена между водой придонного слоя и донными отложениями, м/год; C_0 — концентрация i -го нуклида в поровой воде загрязненных донных отложений, отнесенная к объему пористой среды, Бк/м³.

Для определения коэффициента массообмена $\beta(t)$ предположим, что диффузия радионуклидов в придонный слой воды, а также в глубь отложений происходит из слоя донных отложений толщиной l . Не учитывая распад, а также предполагая, что сорбция-десорбция нуклидов на частицах донных отложений равновесна и подчиняется линейной изотерме сорбции с коэффициентом распределения k_d , вертикальный профиль концентрации i -го нуклида в жидкой фазе загрязненного слоя отложений описывается уравнением

$$\frac{\partial C_{\text{ж}}}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C_{\text{ж}}(z, t)}{\partial z^2}, \quad (6)$$

где D — эффективный коэффициент диффузии радионуклида из донных отложений в воду, $\text{м}^2/\text{год}$; $C_{\text{ж}}$ — концентрация нуклида в жидкой фазе донных отложений, отнесенная к объему пористой среды, $\text{Бк}/\text{м}^3$.

Если начало координаты z поместить в центр слоя донных отложений, то краевые условия к уравнению (6) будут иметь вид

$$\begin{cases} C_{\text{ж}}(z, 0) = C_0; \\ C_{\text{ж}}(0, t) = C_{\text{ж}}(l, t) = C_d. \end{cases} \quad (7)$$

Из уравнения (6) с учетом системы уравнений (7) можно определить диффузионный поток на границе раздела вода—донные отложения по формуле

$$q(z, t)|_{z=0} = -D \frac{\partial C_{\text{ж}}}{\partial z} |_{z=0} = (C_0 - C_d) \sqrt{\frac{D}{\pi t}} \left\{ 1 - 2 \sum_{n=1}^{\infty} (-1)^{n+1} \exp\left(-\frac{n^2 l^2}{4Dt}\right) \right\}. \quad (8)$$

Учитывая, что на границе раздела вода—дно диффундирующие радиоактивные вещества не накапливаются, выражения для потока (5) и (8) можно приравнять. Коэффициент $\beta(t)$ в этом случае определяется из выражения

$$\beta(t) = \sqrt{\frac{D}{\pi t}} \left\{ 1 - 2 \sum_{n=1}^{\infty} (-1)^{n+1} \exp\left(-\frac{n^2 l^2}{4Dt}\right) \right\}. \quad (9)$$

При соблюдении условия $\sqrt{Dt} \ll l$ выражение (9) можно упростить и привести к виду [6]

$$\beta(t) = \sqrt{\frac{D}{\pi t}}. \quad (10)$$

Средний коэффициент массообмена за время τ определяется по формуле

$$\bar{\beta} = \frac{1}{\tau} \int_0^{\tau} \beta(t) dt = 2 \sqrt{\frac{D}{\pi \tau}}. \quad (11)$$

Для принятой диффузионной модели формула (11) позволяет расчетным путем получить средний за время τ коэффициент массообмена между водной массой реки и загрязненными донными отложениями. Следует отметить, что экспериментальных данных по определению коэффициента массообмена для радиоактивных и загрязняющих химических веществ мало. В работе [7] на основании измерений поступления растворенных веществ из донных отложений в озерную воду приводятся числовые значения коэффициента массообмена. Для пяти присутствующих в донных отложениях химических веществ коэффициент находился в пределах 0,18—1,42 $\text{м}/\text{год}$ со средним значением 0,4 $\text{м}/\text{год}$.

Для определения концентрации радиоактивных веществ в поровой воде донных отложений можно воспользоваться формулой

$$C_0 = \frac{\sigma \alpha}{l(1 + k_d m)}, \quad (12)$$

где σ — плотность радионуклидов в донных отложениях, $\text{Бк}/\text{м}^2$; α — доля обменных форм радионуклидов [8]; l — толщина слоя загрязненных донных отложений, м ; k_d — коэффициент распределения обменных форм радионуклидов между донными отложениями и поровой водой, $\text{м}^3/\text{кг}$; m — масса донных отложений, $\text{кг}/\text{м}^3$.

Подставляя в уравнение (1) значения потоков, вычисленных по формулам (2)–(5), а также учитывая выражения (10)–(12), получим систему из двух дифференциальных уравнений:

$$\begin{cases} \frac{\partial C_d}{\partial t} = -v_d \frac{\partial C_d}{\partial x} + \frac{\beta(t)}{\delta} (C_0 - C_d) - \frac{2K}{\delta H} (C_d - C) - \lambda C_d; \\ \frac{\partial C}{\partial t} = -v \frac{\partial C}{\partial x} + \frac{2K}{H^2} (C_d - C) - \lambda C. \end{cases}$$

Рассмотрим установившийся процесс загрязнения реки, т.е. стационарную задачу:

$$\begin{cases} \frac{dC_d}{dx} = \frac{\beta}{\delta v_d} (C_0 - C_d) - \frac{2K}{\delta H v_d} (C_d - C) - \frac{\lambda}{v_d} C_d; \\ \frac{dC}{dx} = \frac{2K}{H^2 v} (C_d - C) - \frac{\lambda}{v} C. \end{cases} \quad (13)$$

Численное решение системы дифференциальных уравнений (13) с учетом начальных условий позволяет определить продольное распределение концентрации радиоактивной примеси в воде реки, обусловленное диффузионным переходом радионуклидов из загрязненного дна в граничный придонный слой и далее в основной поток.

Отличие расчетной концентрации нуклидов в придонном слое от концентрации в основном потоке в предлагаемой модели в наибольшей степени зависит от интенсивности турбулентного перемешивания в водном потоке, определяемого коэффициентом Шези, длины рассматриваемого участка реки и в значительно меньшей степени от δ . В работе [2] показано, что изменение δ в пределах 0,01–0,03 Н не оказывает существенного влияния на распределение концентрации. В реках с интенсивным турбулентным перемешиванием ($C_{III} = 20$ –40) на загрязненных участках дна протяженностью свыше 10 км вертикальная неоднородность становится малой, а отличие C от C_d не превышает нескольких процентов. В этом случае для практических целей расчетную схему можно существенно упростить и рассматривать однослойную модель течения, условно предполагая, что поступающие из донных отложений нуклиды мгновенно и равномерно перемешиваются в водной массе основного потока. Дифференциальное уравнение, описывающее стационарное распределение концентрации нуклидов по длине реки, для этого случая имеет вид

$$\frac{dC}{dx} = \frac{\beta}{Hv} (C_0 - C) - \frac{\lambda}{v} C. \quad (14)$$

В общем случае решение этого уравнения можно представить в виде

$$C(x) = C_n \exp(-\varphi x) + \exp(-\varphi x) \int_0^x \exp(\varphi u) \mu du,$$

где C_n — начальная концентрация на рассматриваемом участке; $\varphi = \frac{1}{v} \left(\frac{\beta}{H} + \lambda \right)$;
 $\mu = \frac{\beta C_0}{Hv}$.

Если предположить, что плотность радиоактивного загрязнения дна реки на рассматриваемом участке постоянна и параметры φ , μ не зависят от x , уравнение (14), описывающее распределение средней концентрации нуклида по длине реки, решается так:

$$C(x) = C_n \exp(-\varphi x) + \frac{\mu}{\varphi} (1 - \exp(-\varphi x)). \quad (15)$$

Оценка максимального вторичного загрязнения воды Енисея ^{137}Cs . Используем рассмотренную модель для прогноза вторичного загрязнения на наиболее загрязненном

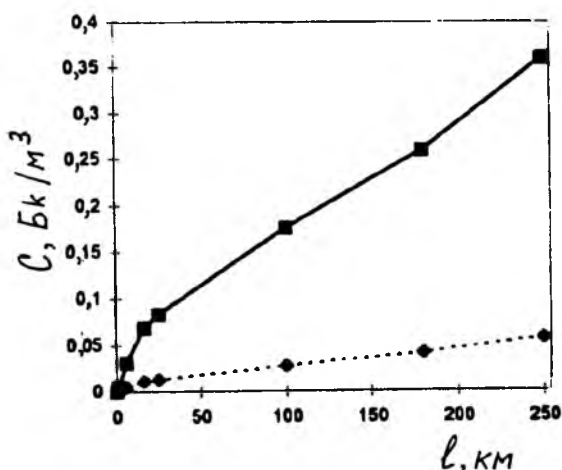
участке. Радиоактивное загрязнение дна Енисея носит пятнистый характер. Как было отмечено, наиболее интенсивно загрязнены песчано-илистые отложения. Это, как правило, ухвостья островов, небольшие затоны и лагуны по берегам реки [5]. Плотность загрязнения основного русла Енисея, сложенного грубообломочным материалом с преобладанием гальки, значительно ниже, чем песчаных отложений, и для ^{137}Cs не превышает 2—3 кБк/м².

Оценим максимальное вторичное загрязнение воды в реке на участке от места сброса комбината до пос. Стрелка (место впадения р. Ангара), протяженность которого составляет 250 км. Для этого отрезок реки условно разобьем на шесть участков протяженностью 6, 10, 10, 74, 80, 70 км от места сброса, в каждом из которых плотность загрязнения дна, в том числе и каменисто-галечного, будем считать постоянной и равной максимальной плотности загрязнения ^{137}Cs песчано-илистых отложений, кБк/м²: дер. Атаманово (сброс) 260, дер. Атаманово—дер. Б. Балчуг 185, дер. Б. Балчуг—дер. Кононово 74, дер. Кононово—дер. Предивинск 60, дер. Предивинск—дер. Казачинское 50, дер. Казачинское—дер. Стрелка 70.

В расчете приняты следующие параметры модели:

Коэффициент Шеши, м/с	40
Толщина придонного слоя течения, м	0,1
Средняя скорость течения, м/с	1,9
Средняя глубина на рассматриваемом участке, м	2,5
Толщина загрязненного слоя донных отложений, м	0,3
Эффективный коэффициент диффузии из загрязненных донных отложений в основной поток, м ² /с	$0,5 \cdot 10^{-11}$
Коэффициент распределения при десорбции, м ³ /кг	1,0
Объемная масса «мягких» донных отложений, кг/м ³	1500
Постоянная распада ^{137}Cs , с ⁻¹	$7,4 \cdot 10^{-10}$

На участке реки от сброса до пос. Предивинск использовалось численное решение системы дифференциальных уравнений (13) с учетом нулевых начальных условий на первом участке. Для более удаленных участков применялась формула (15). Расчет проводился для двух вариантов коэффициента массообмена. Расчетная концентрация ^{137}Cs в воде Енисея представлена на рисунке. Видно, что максимальная расчетная концентрация ^{137}Cs в воде на рассматриваемом участке Енисея при выбранных параметрах не превысит 0,4 Бк/м³. Необходимо еще раз отметить, что полученную в результате расчета концентрацию ^{137}Cs в воде следует рассматривать в качестве максимальной оценки вторичного радиоактивного загрязнения реки, так как реальная плотность загрязнения каменисто-галечного русла Енисея значительно меньше принятой в расчете, а площадь, занимаемая загрязненными песчано-илистыми отложениями, составляет малую долю площади всего дна. Кроме того, из-за отсутствия специальных исследований в расчете упрощенно принималось, что доля обменных форм ^{137}Cs в донных отложениях составляет 100%, что также сильно завышает конечный результат.



Зависимость концентрации ^{137}Cs в воде Енисея при коэффициенте массообмена 0,2 м/год (—), рассчитанном по формуле (13) при $\tau = 40$ ч, и 1,4 м/год [8] (---)

Из расчета следует, что вторичное радиоактивное загрязнение воды Енисея невелико и для ^{137}Cs существенно меньше фоновой концентрации, наблюдаемой выше сброса комбината — $1\text{--}3\text{ Бк/м}^3$.

Единичные измерения, выполненные в 1994 г. в створах пос. Предивинск и Стрелка, не выявили существенного отличия концентрации ^{137}Cs в воде от фоновых, наблюдаемых выше сброса комбината. Это не противоречит результатам расчета. Точнее определить масштаб вторичного радиоактивного загрязнения Енисея инструментальным путем сложно, так как в настоящее время окончательно не прекращен радиоактивный сброс в реку, и кроме того измерение малой концентрации радионуклидов в воде сопряжено с большими погрешностями.

В заключение следует отметить, что предлагаемую модель можно использовать для оценки вторичного загрязнения воды в реках не только радиоактивными веществами, но и химическими, к которым относятся тяжелые металлы, фенолы и др.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Носов А.В., Мартынова А.М. Анализ радиационной обстановки на р. Енисее после снятия с эксплуатации прямоточных реакторов Красноярского ГХК. — Атомная энергия, 1996, т. 81, вып. 3, с. 226—232.
2. Караушев А.В., Меерович Л.Н. Метод расчета диффузионного растворения вещества на дне потока. — Труды ГГИ, 1983, вып. 237, с. 110—115.
3. Маккавеев В.Н., Коновалов И.М. Гидравлика. Л.: Речиздат, 1940. 643 с.
4. Методические основы оценки антропогенного влияния на качество поверхностных вод. Под ред. А.В. Караушева. Л.: Гидрометеоздат, 1981. 175 с.
5. Носов А.В., Ашанин М.В., Иванов А.Б., Мартынова А.М. Радиоактивное загрязнение р. Енисея, обусловленное сбросами Красноярского горно-химического комбината. — Атомная энергия, 1993, т. 74, вып. 2, с. 144—149.
6. Франк-Каменецкий Д.А. Диффузия и теплопередача в химической кинетике. Изд. 2-е. М.: Наука, 1967. 491 с.
7. Lerman A., Brunskill G. Migration of major constituents from lake sediments into lake water and its bearing on lake water composition. — Limnol. Oceanogr. 1971, v. 16(6), p. 880—890.
8. Бурков А.И., Возжеников О.И., Морозько Е.Н. Моделирование десорбции ^{90}Sr и ^{137}Cs с затопленной поймы. — В сб.: Экология регионов атомных станций. Под ред. Ю.А. Егорова. 1995, вып. 3, с. 98—103 (Атомэнергопроект).

Поступила в Редакцию 20.02.97

УДК 539.125.42

МОДЕЛИРОВАНИЕ ПРОХОЖДЕНИЯ ПРОТОНОВ В СРЕДЕ С НЕОДНОРОДНЫМ РАСПРЕДЕЛЕНИЕМ ВЕЩЕСТВА

Ефремов Е.В., Иванов Н.А. (ЦФТИ МО РФ), Москалев О.Б. (ИПМ РАН)

Под действием протонов в аппаратуре космических аппаратов накапливаются радиационные повреждения, что отрицательно сказывается на ее работоспособности и сроке службы. Степень такого негативного воздействия определяется флюенсом протонов и вторичных частиц, а также создаваемой ими дозой и мощностью дозы в конструкционных материалах аппаратуры. Поэтому такие характеристики представляют значительный интерес, а экспериментальные и расчетные методы их исследования постоянно развиваются.

В настоящей работе описан комплекс программ для расчета указанных характеристик в объектах сложной геометрии с учетом неоднородности распределения конструкционных материалов в блоках и приведены результаты расчетно-экспериментального исследования профиля энергосвечения протонов энергией 100 МэВ в модельной преграде. Под неоднородностью здесь понимается наличие множества элементов разной конфигурации с размерами, намного меньшими размера блока. Эти