

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Магомедбеков Э.П., Чижевская С.В., Давыдов А.В. и др. Твердофазное взаимодействие механоактивированного кремнезема с тетрафторидом урана в условиях отсутствия перемешивания компонентов. — Огнеупоры и техническая керамика, 2012, № 10, с. 3—9.
2. Магомедбеков Э.П., Чижевская С.В., Клименко О.М. и др. Обедненный гексафторид урана — техногенное сырье для получения высокочистых неорганических фторидов. — Атомная энергия, 2011, т. 111, вып. 4, с. 219—223.
3. Чижевская С.В., Магомедбеков Э.П., Жуков А.В. и др. Взаимодействие тетрафторида урана с механоактивированным кварцевым концентратом в воздушной среде в условиях отсутствия принудительного удаления газообразных продуктов реакции. — Огнеупоры и техническая керамика, 2012, № 10, с. 24—31.
4. Магомедбеков Э.П., Чижевская С.В., Клименко О.М. и др. Влияние механоактивации на процесс твердофазного взаимодействия UF_4 с кварцем. — Там же, 2011, № 11—12, с. 18—22.
5. Магомедбеков Э.П., Чижевская С.В., Давыдов А.В. и др. Взаимодействие обедненного тетрафторида урана с кремнеземом. — Атомная энергия, 2012, т. 112, вып. 3, с. 186—188.
6. Bulko J., Schlier D. Recovery of high value fluorine products from uranium hexafluoride conversion. — In: WM'99 Conf., 1999, CD-ROM № 23_2.
7. Шаталов В.В., Щербаков В.И., Серегин М.Б. и др. Способ конверсии гексафторида урана в тетрафторид и безводный фтористый водород и устройство для его осуществления. Патент РФ № 2188795. — Бюл. «Изобретения. Полезные модели», 2002, № 25.

Поступила в Редакцию 13.01.15

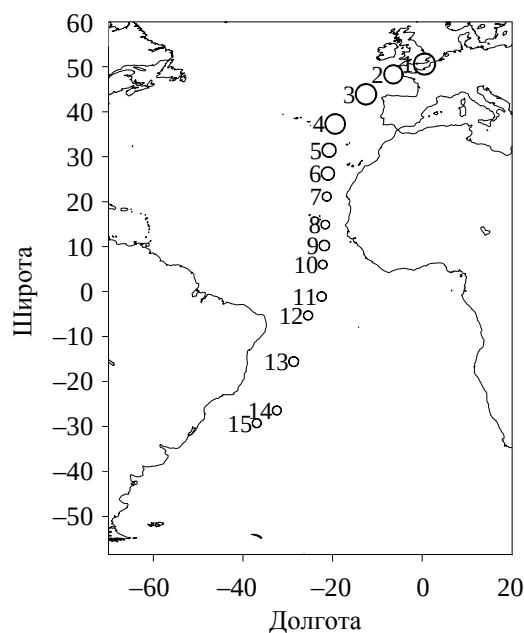
УДК 551.464.6.02

РАСПРЕДЕЛЕНИЕ И ДИНАМИКА СНИЖЕНИЯ КОНЦЕНТРАЦИИ ^{137}Cs В ПОВЕРХНОСТНЫХ ВОДАХ АТЛАНТИЧЕСКОГО ОКЕАНА

Доманов М.М. (Ин-т океанологии им. П.П. Ширшова РАН, г. Москва)

Исследования [1] показали, что главным источником антропогенных радионуклидов в морской среде являются глобальные выпадения. Значительная часть продуктов деления ядерных материалов, поступивших в атмосферу в результате испытания ядерного оружия, по-прежнему находится в верхних слоях атмосферы и продолжает поступать на поверхность Земли в виде глобальных атмосферных выпадений. Распределение антропогенных радионуклидов, в частности, ^{137}Cs в Атлантическом океане интенсивно исследовалось в рамках программ [2—4]. Пространственные и временные вариации концентрации ^{137}Cs в водах Мирового океана с 1957 по 2005 г. обобщены в работе [5]. В настоящей работе для выявления региональных особенностей самоочищения вод Атлантического океана исследовано распределение концентрации ^{137}Cs в поверхностных водах северной (45—15° с.ш., блок 28) и центральной широтных зон (15° с.ш. — 30° ю.ш., блок 29) на разрезе от Северного моря до Монтевидео. Полученные данные сопоставлены с исследованиями распределения концентрации ^{137}Cs на близких по положению трансатлантических разрезах в 1992 и 2002 гг. [3, 4].

Концентрацию ^{137}Cs в поверхностном слое воды Атлантического океана измеряли с 19 сентября по 27 октября 2013 г. во время 37-го рейса НИС «Академик Сергей Вавилов». Пробы воды в количестве 120 л отбирали ведром с глубины до 1 м по ходу судна и на станциях. Точки отбора проб и концентрация ^{137}Cs приведены на рис. 1, в табл. 1.



Р и с. 1. Положение станций отбора проб и концентрация ^{137}Cs в поверхностном слое 0,5 (○) и 1,2 Бк/м³ (○)

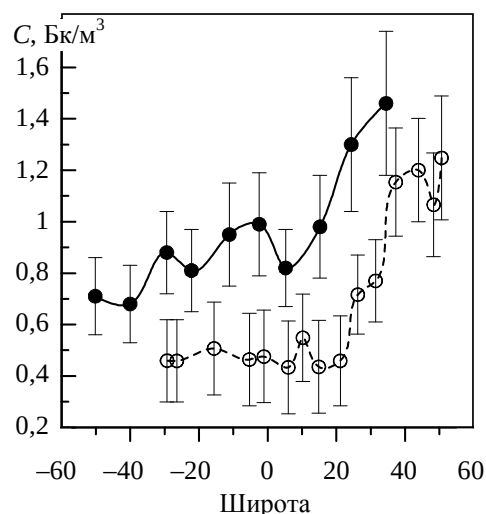
Таблица 1. Координаты станций и точек отбора проб воды на разрезе в сентябре—октябре 2013 г.

Точка отбора	Дата	Координаты		Температура, °С	Концентрация, Бк/м ³
		широта	долгота		
	Сентябрь:				
1	20	50°36.00 с.ш.	0°29.75 в.д.	16	1,24 ± 0,24
2	21	48°18.44 с.ш.	6°28.0 з.д.	16,1	1,06 ± 0,2
3	22	43°52.48 с.ш.	12°03.40 з.д.	19	1,20 ± 0,24
4	24	37°16.60 с.ш.	19°25.74 з.д.	21	1,15 ± 0,23
Станция 2501*:					
5	27	31°25.74 с.ш.	20°48.48 з.д.	23,5	0,77 ± 0,16
6	28	26°14.56 с.ш.	21°03.50 з.д.	24,8	0,72 ± 0,15
7	30	21°07.23 с.ш.	21°18.90 з.д.	25,5	0,46 ± 0,18
	Октябрь:				
8	2	14°53.00 с.ш.	21°38.12 з.д.	27	0,44 ± 0,18
9	3	10°14.34 с.ш.	21°51.15 з.д.	29	0,55 ± 0,18
10	4	6°00.03 с.ш.	22°01.18 з.д.	27,8	0,43±0,18
11	6	1°06.01 ю.ш.	22°27.38 з.д.	25,8	0,48 ± 0,18
Станция 2509*:					
12	11	5°19.11 ю.ш.	25°29.23 з.д.	26	0,46 ± 0,18
13	14	15°35.42 ю.ш.	28°41.75 з.д.	24,2	0,51 ± 0,18
14	18	26°18.44 ю.ш.	32°26.99 з.д.	20,4	0,46 ± 0,16
Станция 2521*, 15	21	29°16.71 ю.ш.	36°56.33 з.д.	20,4	0,46 ± 0,16
*Соленость 36,5, 36,2, 36,4 ‰ соответственно.					

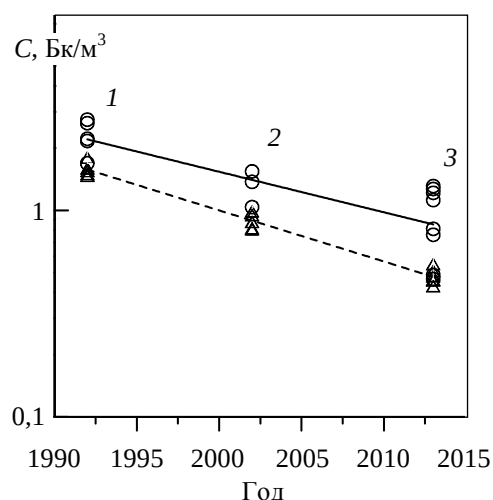
Для радиохимического концентрирования ^{137}Cs из проб применяли сорбционную методику с последовательной фильтрацией морской воды через две капсулы, заполненные селективным сорбентом ферроцианидом кобальта [6]. Эффективность сорбции рассчитывали по активности первой и второй капсулы с сорбентом. Средняя эффективность сорбции составила $71 \pm 16\%$. Коэффициент распределения ферроцианида кобальта составляет 10^4 , что позволяет эффективно извлекать ^{137}Cs из морской воды и концентрировать на сорбенте до уровня, необходимого для последующих гамма-спектрометрических измерений. Измерения выполняли в МГУ им. М.В. Ломоносова с помощью гамма-спектрометра с детектором из сверхчистого германия GC-3020 с относительной эффективностью по линии ^{60}Co (1,332 МэВ), равной 30%, и разрешением по этой линии 1,8 кэВ по программе GENIE-400 PC (США). Погрешность измерения представлена как $\pm 2\sigma$.

Для оценки изменения радиоактивности поверхностного слоя Атлантического океана полученные данные были сопоставлены с аналогичными в трансатлантическом разрезе в 2002 г.

[4]. Результаты сопоставления показали уменьшение концентрации ^{137}Cs в поверхностном слое в разных широтных диапазонах в 1,4—2,2 раза с сохранением общего характера распределения по широте. Наиболее сильное снижение концентрации ^{137}Cs отмечено в широтном диапазоне $0\text{--}20^\circ$ с.ш. (рис. 2).



Р и с. 2. Концентрация ^{137}Cs в поверхностном слое Атлантического океана на аналогичном трансатлантическом квазимеридиональном разрезе в 2002 (●) и 2013 г. (○)



Р и с. 3. Временное изменение средней концентрации ^{137}Cs в поверхностных водах Атлантического океана для блока 28 в северной (—), 29 в центральной части Атлантики (---) в 1992 [3] (1), 2002 [4] (2), 2013 г. (3)

Сопоставление измеренной концентрации и данных [3, 4] показывает, что концентрация ^{137}Cs в 28-м и 29-м блоках Атлантики в 1992—2013 гг. снижается по экспоненциальному закону (рис. 3, 4).

На основе стандартного приложения программы Grapher 3 (США) были получены также аппроксимированные экспоненциальные выражения, описывающие динамику концентрации ^{137}Cs в блоках 28 и 29, а также в общем блоке (блок 28+29):

$$\ln(C_{\text{cp}}) = -0,04518X + 90,73750; N = 16;$$

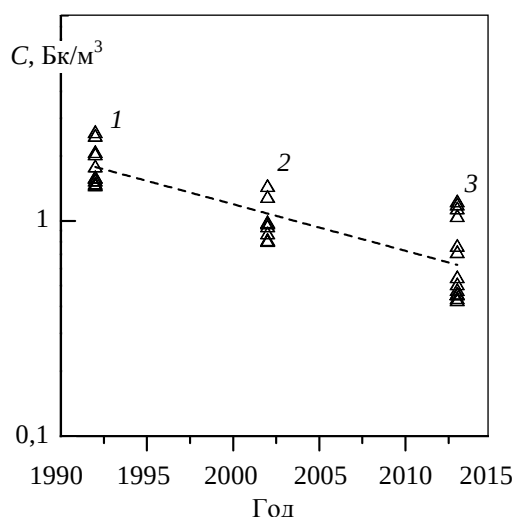
$$R^2 = 0,65; \hat{\sigma} = 0,106;$$

$$\ln(C_{\text{cp}}) = -0,05696X + 113,93071; N = 17;$$

$$R^2 = 0,98; \hat{\sigma} = 0,006;$$

$$\ln(C_{\text{cp}}) = -0,04989X + 99,96359; N = 33;$$

$$R^2 = 0,68; \hat{\sigma} = 0,101,$$



Р и с. 4. Временное изменение средней концентрации ^{137}Cs в поверхностных водах Атлантического океана для общего блока в широтном диапазоне 45° с.ш. — 30° ю.ш.

где C_{cp} — средняя концентрация ^{137}Cs , Бк/м³; X — время, год; N — число точек; R^2 — коэффициент детерминации; $\hat{\sigma}$ — остаточный квадрат.

Экспоненциальные выражения позволяют определить константы эффективного времени полупребывания ^{137}Cs в поверхностных водах ($\lambda_{\text{Cs,эф}}$), которые являются суммой двух констант:

$$\lambda_{\text{Cs,эф}} = \lambda_{\text{Cs,ок}} + \lambda_{\text{Cs,расп}},$$

где $\lambda_{\text{Cs,ок}}$ — постоянная времени, обусловленная океанологическими параметрами (физическими и биогеохимическими процессами); $\lambda_{\text{Cs,расп}} = 0,02305 \text{ год}^{-1}$ — постоянная радиоактивного распада ^{137}Cs .

В табл. 2 приведены константы эффективного времени полупребывания ^{137}Cs , а также

Таблица 2. Средняя концентрация (Бк/м³), константы эффективного времени полупребывания и период полувыведения ^{137}Cs в блоках 28 и 29

Параметр	Дата	Блок 28	Блок 29	Блок 28+29	Источник
Средняя концентрация	1992 г.	$2,17 \pm 0,40$ (5)*	$1,58 \pm 0,13$ (5)	$1,87 \pm 0,42$ (10)	[3]
	2002 г.	$1,25 \pm 0,24$ (3)	$0,89 \pm 0,08$ (5)	$1,02 \pm 0,25$ (8)	[4]
	2013 г.	$0,94 \pm 0,29$ (8)	$0,48 \pm 0,04$ (7)	$0,69 \pm 0,31$ (15)	Настоящая работа
$\lambda_{\text{Cs,эф}}$	1992—2013 гг.	0,0452	0,0569	0,0499	То же
$T_{1/2 \text{ эф}}$	1992—2013 гг.	$15,3 \pm 4,9$ года	$12,2 \pm 1,6$ года	$13,9 \pm 4,2$ года	»
$T_{1/2 \text{ ок}}$	1992—2013 гг.	$31,4 \pm 10$ лет	$20,5 \pm 2,7$ года	$25,9 \pm 7,8$ года	»

*Число точек отбора проб.

эффективное ($T_{1/2 \text{ эф}}$) и океанологическое время ($T_{1/2 \text{ ок}}$) полувыведения из поверхностного слоя, рассчитанное по константам ($T_{1/2 \text{ год}} = \ln 2 / \lambda$). Эффективное время полувыведения ^{137}Cs для блока 28 ($15,3 \pm 4,9$ года), определенное за период 21 год (1992—2013 гг.), согласуется с данными для этого блока $14,9 \pm 1,6$ года в 1972—1988 гг. [1]. Для широтной зоны 50° с.ш. — 30° ю.ш. (блок 28 + 29) среднее время полувыведения ^{137}Cs $13,9 \pm 4,2$ года сопоставимо с $12,5 \pm 2,1$ года [4] и ~ 14 лет [3]. Время полувыведения ^{137}Cs из поверхностного слоя, обусловленное океанологическими параметрами (физическими и биогеохимическими процессами, в том числе и обменом с атмосферой), составляет 20—30 лет.

Заключение. Исследования динамики концентрации ^{137}Cs в Атлантическом океане за период с 1992 по 2013 г. указывают на продолжающийся экспоненциальный характер ее снижения в поверхностных водах Атлантического океана. Эффективное время полувыведения из поверхностных вод в северной (45° с.ш. — 15° с.ш., блок 28) и центральной (15° с.ш. — 30° ю.ш., блок 29) широтной зоне равно $15,3 \pm 4,9$ и $12,2 \pm 1,6$ года соответственно. На основе анализа данных о концентрации ^{137}Cs в

поверхностных водах Атлантического океана предложены аппроксимированные экспоненциальные выражения для прогноза многолетних изменений концентрации ^{137}Cs в северной и центральной зонах.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Worldwide** Marine Radioactivity Studies (WOMARS) Radionuclide Levels in Oceans and Seas. Vienna: IAEA, 2005. 188 p.
2. **Holm E., Roos P., Josefsson D., Persson B.** Radioactivity from the North Pole to the Antarctic. — In: Radionuclides in the Oceans: Inputs and Inventories. IPSN, France, 1996, p. 59—74.
3. **Bourlat Y., Milliès-Lacroix J.-C., Le Petit G., Bourguignon J.** ^{90}Sr , ^{137}Cs and ^{239}Pu , ^{240}Pu in world ocean water samples collected from 1992 to 1994. — Ibid., p. 75—93.
4. **Gulin S.B., Stokozov N.A.** ^{137}Cs concentrations in Atlantic and western Antarctic surface waters: results of the 7th Ukrainian Antarctic Expedition 2002. — J. Environ. Radioact., 2005, v. 83, p. 1—7.
5. **Inomata Y., Aoyama M., Hirose K.** Analysis of 50-y record of surface ^{137}Cs concentrations in the global ocean using the HAM-global database. — J. Environ. Monit., 2009, v. 11, p. 116—125.
6. **Man D., Casso S.** In situ chemisorption of radiocesium from seawater. — Mar. Chem., 1984, v. 14, p. 307—318.

Поступила в Редакцию 11.11.14

УДК 621.039.58

МОДЕЛИРОВАНИЕ ДИНАМИКИ АЭРОЗОЛЕЙ ПРОДУКТОВ ДЕЛЕНИЯ В ПЕРВОМ КОНТУРЕ

Сорокин А.А. (ИБРАЭ РАН, г. Москва)

При тяжелой аварии из-за недостаточного теплосъема происходит перегрев теплоносителя (воды под давлением в ВВЭР) и его переход из жидкого состояния в пар [1]. В результате нуклеации паров летучих продуктов деления, материалов конструкций реактора и оксидов топлива образуются аэрозоли [2, 3]. Центрами гетерогенной конденсации могут быть также частицы нелетучих продуктов деления, образовавшиеся в газовом зазоре твэла. Размер и концентрация частиц нелетучих продуктов деления в интегральных кодах задаются произвольно вследствие недостаточности экспериментальных и теоретических исследований. Например, в коде ASTEC размер частиц нелетучих продуктов де-

ления полагается равным 1 нм [4], в коде MELCOR (США) 300 нм [5].

В разрабатываемой модели аэрозольные процессы рассматриваются в отдельной пространственной ячейке, соответствующей нодализационной схеме первого контура. Структура ячеек является общей для модулей теплогидравлики, неравновесной химии и динамики аэрозолей продуктов деления. Предполагается, что в ячейке выполняется условие гомогенного смешения в среднем для всех газовых и аэрозольных компонентов среды. На данном этапе реализации модуля рассматриваются три возможных фазовых состояния для продуктов деления: газ или пар в объеме ячейки (многокомпонентная смесь), взвешенные полидисперсные много-