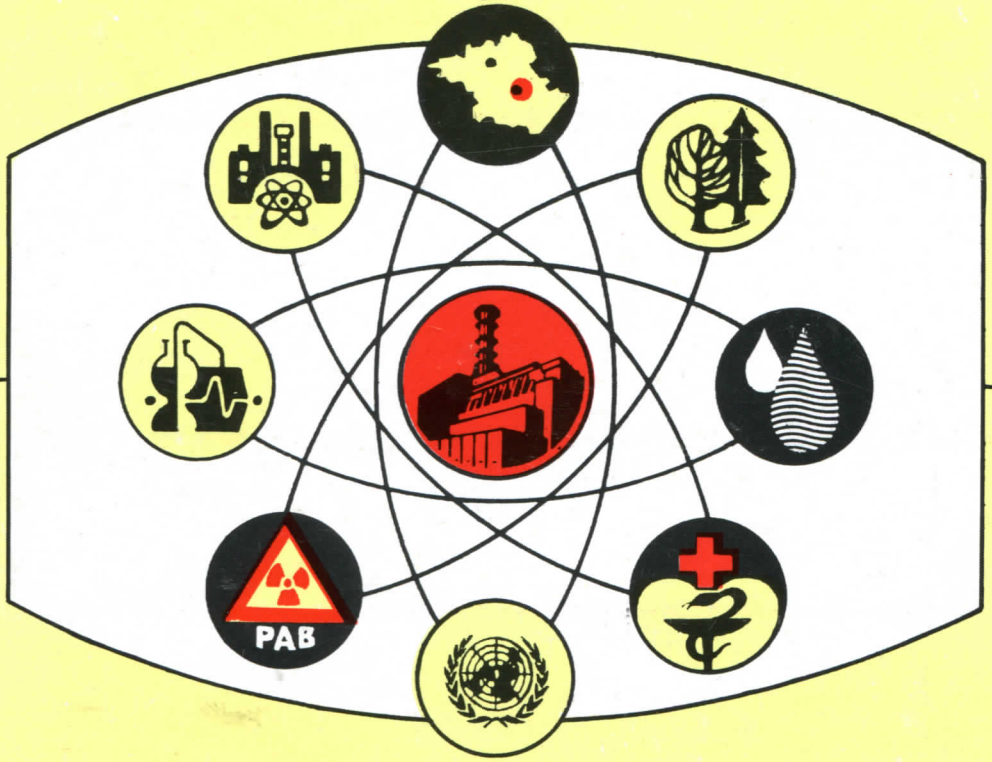
МІНІСТЕРСТВО УКРАЇНИ З ПИТАНЬ НАДЗВИЧАЙНИХ СИТУАЦІЙ ТА У СПРАВАХ ЗАХИСТУ НАСЕЛЕННЯ ВІД НАСЛІДКІВ ЧОРНОБИЛЬСЬКОЇ КАТАСТРОФИ

АДМІНІСТРАЦІЯ ЗОНИ ВІДЧУЖЕННЯ І ЗОНИ БЕЗУМОВНОГО (ОБОВ'ЯЗКОВОГО) ВІДСЕЛЕННЯ

THE MINISTRY OF UKRAINE OF EMERGENCIES AND AFFAIRS OF POPULATION PROTECTION FROM THE CONSEQUENCES OF CHERNOBYL CATASTROPHE

THE ADMINISTRATION OF THE EXCLUSION ZONE AND THE ZONE OF ABSOLUTE RESETTLEMENT



ПРОБЛЕМИ ЧОРНОБИЛЬСЬКОЇ ЗОНИ ВІДЧУЖЕННЯ

PROBLEMS OF CHERNOBYL EXCLUSION ZONE

5

МІНІСТЕРСТВО УКРАЇНИ З ПИТАНЬ НАДЗВИЧАЙНИХ СИТУАЦІЙ ТА У СПРАВАХ ЗАХИСТУ НАСЕЛЕННЯ ВІД НАСЛІДКІВ ЧОРНОБИЛЬСЬКОЇ КАТАСТРОФИ

АДМІНІСТРАЦІЯ ЗОНИ ВІДЧУЖЕННЯ І ЗОНИ БЕЗУМОВНОГО (ОБОВ'ЯЗКОВОГО) ВІДСЕЛЕННЯ

ПРОБЛЕМИ ЧОРНОБИЛЬСЬКОЇ ЗОНИ ВІДЧУЖЕННЯ

PROBLEMS OF CHERNOBYL EXCLUSION ZONE

НАУКОВО-ТЕХНІЧНИЙ ЗБІРНИК

ЗАСНОВАНО У 1994 Р.

Випуск 5

ЗМІСТ

Холоша В. І. Огляд сучасного стану робіт по ліквідації наслідків аварії на території Зони відчуження та першочергових заходів щодо вдосконалення управління і оптимізації бюджетного фінансування робіт на забруднених територіях 3

Бондаренко Г. Н. , Кононенко Л. В. Кинетические константы трансформации форм ^{90}Sr и ^{137}Cs в дерново-подзолистых почвах Зоны отчуждения 18

Кашпаров В. А., Иванов Ю. А., Зварич С. И., Процак В. П., Хомутинин Ю. В. Кинетика растворения чернобыльских топливных частиц и выщелачивания из них радионуклидов в почвах Зоны отчуждения 24

Кашпаров В. А. , Иванов Ю. А. , Процак В. П., Хомутинин Ю. В., Йощенко В. И., Пазухин Э. М. Оценка условий высокотемпературного отжига топливных частиц, выброшенных из чернобыльского реактора во время взрыва 33

Демчук В. В., Лутковский В. В., Проскура Н. И. Особенности механизмов миграции радиоактивных загрязнений Чернобыльской аварии в почвах Зоны отчуждения ЧАЭС 44

С. Г. Пичурин, Н. Ф. Моисеенко, Г. П. Сафро, И. П. Борисенко, Л. И. Бондаренко, В. А. Кожанов, Н. Л. Гнидак Извлечение долгоживущих радионуклидов из водных сред неорганическими сополимерами на основе оксидов сурьмы 50

радионуклида, и для каждого радионуклида в основном зависит от физико-химических свойств почвы.

По мере исчерпания радионуклидов в исходной форме возрастает роль равновесного распределения радионуклидов между фиксированными и мобильными формами, которое определяется отношением констант скорости иммобилизации и ремобилизации. В начальный период после аварии, когда доля мобильных форм радионуклидов, образующихся из фиксированных форм в процессе ремобилизации, незначительна по сравнению с их долей, образующихся вследствие мобилизации из твердофазных выпадений, кинетическая модель трансформации в изложенном виде может удовлетворительно описывать динамику протекающих в почвах Зоны отчуждения процессов.

1. *Долин В. В., Бондаренко Г. Н., Соботович Э. В.* Диффузионный механизм миграции Cs-137 и Cr-90 топливных выпадений ЧАЭС // Докл. АН УССР. Сер. Б. — 1990. — № 12. — С. 6—10.
2. *Жданова Н. Н., Василевская А. И., Лашко Т. Н. и др.* Взаимодействие почвенных микромицетов с горячими частицами в модельной системе // Микробиологический журнал. — 1991. — 53. — № 4. — С. 9—17.
3. *Иванов Ю. А., Лощилов Н. А., Орешич Л. А. и др.* Динамика мобильных форм цезия-137 выпадений аварийного выброса ЧАЭС в почвах // Проблемы сельскохозяйственной радиологии. — УкрИНТЭИ. — Киев. — 1992. — Вып. 2. — С. 43—56.
4. *Коноплев А. В., Борзилов В. А., Бобовникова И. И. и др.* Распределение радионуклидов, выпавших в результате аварии на Чернобыльской атомной электростанции, в системе почва-вода // Метеорология и гидрология. — 1988. — № 12. — С. 63—74.
5. *Кривохатский А. С., Смирнова Е. А., Авдеев В. А. и др.* Формы нахождения радионуклидов в пробах почвы, отобранных в 1986—1990 гг. в 30-км зоне Чернобыльской АЭС. РИ-232. — Москва. — ЦНИИатоминформ. — 1991. — 29 с.
6. *Ольховик Ю. А., Чебаненко С. И., Костюченко Н. Г.* Радиолиз воды — вероятный механизм выхода радионуклидов из "горячих" частиц топливного генезиса: Тез. докл. конф. "Геохимические пути миграции искусственных радионуклидов в биосфере" (Гомель, июнь, 1990). — С.74.
7. *Попов В. Е., Кутняков И. В., Жирнов В. Г. и др.* Вертикальное распределение ^{90}Sr и ^{137}Cs в аллювиальных дерновых почвах ближней зоны Чернобыльской АЭС // Почвоведение. — 1994. — № 1. — С. 41—45.

Государственный научный центр
радиогеохимии окружающей среды
НАН Украины и Минчернобыля
Украины, г. Киев

Поступила 05.05.97

УДК 546.295+621.039.542

В. А. Кашпаров, Ю. А. Иванов,
С. И. Зварич, В. П. Процак, Ю. В. Хомутинин

КИНЕТИКА РАСТВОРЕНИЯ ЧЕРНОБЫЛЬСКИХ ТОПЛИВНЫХ ЧАСТИЦ И ВЫЩЕЛАЧИВАНИЯ ИЗ НИХ РАДИОНУКЛИДОВ В ПОЧВАХ ЗОНЫ ОТЧУЖДЕНИЯ

На основании экспериментальных данных о формах нахождения ^{90}Sr в различных естественных почвенно-климатических условиях на топливных следах чернобыльского выброса рассчитана доля растворившихся к 1995 г. топливных частиц. Показано, что в реальных условиях на скорость растворения частиц влияют в большей степени физико-химические характеристики самих частиц, чем свойства окружающей среды. Получены математические зависимости скорости растворения топливных частиц для западного и других направлений выброса от кислотности почвы. Сделан прогноз динамики выщелачивания радиоактивных веществ из матрицы чернобыльских топливных частиц для разных типов почв Зоны отчуждения при их кислотности (pH) от 4 до 6.

© В. А. Кашпаров, Ю. А. Иванов, С. И. Зварич, В. П. Процак, Ю. В. Хомутинин, 1998

В результате аварии на ЧАЭС произошло диспергирование ядерного топлива и выброс топливных частиц. При первоначальном взрыве 26.04.86 г. были выброшены крупные топливные частицы размером в десятки и сотни микрон, которые из-за высокой скорости осаждения выпали в основном в непосредственной близости от реактора [1—6]. Радиологическая значимость данных частиц за пределами 2—5 км Зоны вокруг реактора мала, так как их долевой вклад в радиоактивное загрязнение территории крайне незначителен [1, 2, 5]. В связи с этим изучение свойств отдельных крупных частиц представляет интерес только с точки зрения реконструкции условий их образования во время аварии [5, 6].

В последующем в процессе горения реактора с 26.04.86 по 06.05.86 г. происходило окисление ядерного топлива и образование топливных частиц с медианным радиусом около 3 мкм, равным размеру зерен (кристаллитов) диоксида урана [5]. Исходный дисперсный состав данных частиц (r — радиус частиц, мкм) хорошо описывается логнормальным законом распределения [5]:

$$f(r) = \frac{1}{sr \cdot \sqrt[2]{2\pi}} \exp\left[-0{,}5\left[\frac{\ln(r) - m}{s}\right]^2\right], \qquad (1)$$

где $m = 1{,}1$ и $s = 0{,}4$. Так как для мелких частиц (менее 5 мкм) гравитационное осаждение не является основным механизмом выпадений, и скорость их осаждения не зависит от размера [7], то не наблюдается существенных различий в дисперсном составе топливных выпадений на различных удаленьях от ЧАЭС (рис. 1, табл. 1). Такие радиологически значимые радионуклиды как ^{90}Sr, $^{238-241}Pu$ и ^{241}Am были выброшены из реактора во время аварии в основном в составе мелких топливных частиц (более 90 % активности), что привело к загрязнению обширных территорий. В пределах 30-километровой Зоны значительная доля ^{137}Cs так же первоначально находилась в топливных частицах [1, 2]. Радионуклиды, капсулированные в первоначальных выпадениях в матрице топливных частиц, отличались низкой миграционной подвижностью по сравнению с конденсационной компонентой их выпадений и глобальными выпадениями. Поэтому применение в первое время после аварии на ЧАЭС полученных ранее закономерностей для глобальных выпадений радионуклидов (наиболее сильно это проявляется для ^{90}Sr) приводило к сильному завышению результатов прогноза миграции радиоактивных веществ (РВ) в Зоне отчуждения по биологическим цепям. Со временем происходило растворение топливных частиц и выщелачивание из них радионуклидов, о чем свидетельствует изменение дисперсного состава топливных частиц (рис. 1, табл. 1), а также увеличение доли обменного стронция в почве [8—11] и, как следствие этого, загрязнения растительности [8]. Наиболее мелкие частицы (< 2 мкм), видимо, имели наибольшую скорость растворения (рис. 1, табл. 1).

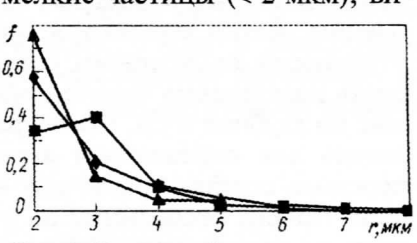


Рис. 1. Дисперсный составы топливных горячих частиц, выброшенных на юг (180°) в почве:

◆ — 5 — 1987; ■ — 5 — 1989; ▲ — 100 км — 1987

В связи с этим получение математических зависимостей скорости растворения топливных частиц и выщелачивания из них радионуклидов в естественных разных почвенно-климатических условиях является крайне актуальной задачей для долговременного прогнозирования поведения РВ в Зоне отчуждения ЧАЭС и при других аварийных ситуациях, связанных с выбросом

Таблица 1. **Медианный радиус топливных горячих частиц в почве, измеренный с помощью метода авторадиографии, в разное время на различных удалениях и направлениях от ЧАЭС**

Год измерения	Угол относительно ЧАЭС, градус	Расстояние от ЧАЭС, км	Медианный радиус, мкм
1987	40	8,3	1,7
	70	8,3	1,4
	100	8,3	1,4
	130	8,3	1,9
	170	8,3	2,0
	200	8,3	1,7
	300	8,3	1,8
	330	8,3	2,4
1989	140	5	2,5
	150	5	2,7
	160	5	2,3
	170	5	2,3
	180	5	2,2
	250	5	3,3
	260	5	2,2
	340	5	2,3
	180	10	3,2
	270	10	2,4
	340	10	2,3
	170	14	3,2
	180	14	3,5
	190	14	2,4
	270	14	2,6
	340	14	2,3
	270	30	2,3
	340	30	3,0
1995	20	1,5	2,3
	290	2	2,1
	10	3	2,0
	50	4	1,9
	270	5	1,8—2,4*

* Измерения проводились в 7 точках с разными почвенными условиями

частиц облученного ядерного топлива.

Полученные в настоящее время из доли обменного ^{90}Sr разными авторами конкретные значения постоянных трансформации топливных частиц (k, c^{-1}) на отдельных экспериментальных площадках изменяются в широких пределах от 10^{-9} до 10^{-8} c^{-1} [9—11] и не могут быть использованы даже для грубых расчетов в других почвенно-климатических условиях. Так как пока только на качественном уровне выявлены лишь некоторые факторы, влияющие на скорость растворения топливных частиц в почвах, такие как физико-химические свойства самих частиц [8, 11, 12], тип почвы [10, 11], кислотность почвы и концентрация в ней кислорода [12].

1. ОБЪЕКТЫ ИССЛЕДОВАНИЯ

Для определения скорости растворения реальных чернобыльских топливных частиц в естественных условиях в августе 1995 г. был произведен отбор проб почвы на топливных следах выброса в 15-километровой зоне ЧАЭС. Пробы почвы отбирались на глубину 5 см кольцом диаметром 14 см и буром диаметра 6 см на глубину 30 см в различных направлениях и удаленьях от ЧАЭС (для учета различий в физико-химических свойствах выпавших топливных частиц). Кроме того, на одних и тех же площадках на расстоянии до 300 м, где свойства выпавших частиц одинаковы, проводился отбор проб в разных точках с отличными почвенными разностями для оценки их влияния на скорость растворения частиц (табл. 2, точки 2—4, 5—11). Пробы, отобранные на глубине 5 см, где сосредоточены топливные частицы, использовались для определения агрохимических характеристик почв и дисперсного состава топливных частиц с помощью метода авторадиографии. Пробы, отобранные на глубине 30 см, использовались для оценки доли не разрушенных частиц по количеству обменного ^{90}Sr. Описание точек пробоотбора и загрязнения почвы приведены в табл. 2. Результаты полного агрохимического анализа почв в точках пробоотбора (определение проводилось в двух повторностях) приведены в табл. 3.

Таблица 2. **Описание точек пробоотбора и плотность загрязнения почвы в них на момент аварии**

Номер точки	Описание точек пробоотбора	Координаты точки пробоотбора	Плотность загрязнения почвы, МБк/м^3	
			^{137}Cs	^{90}Sr
1	Слабая дернина — мох	12 км, 270°	3,8±0,2	2,4±1,0
2	Слабая дернина — мох	с. Красное,	3,4±0,2	2,1±0,1
3	Средняя дернина — трава	4 км, 360°	2,8±0,1	1,7±0,1
4	Дернина отсутствует — песок		9,0±0,5	1,8±0,1
5	Слабая дернина — мох	с. Чистогаловка,	24±1	7
6	Слабая дернина — мох	5 км, 270°	34±2	14±4
7	Мощная дернина — пырей		32±2	21±2
8	Дно высохшего озерца		24±1	16±5
9	Мощная дернина — осока		28±1	22±13
10	Мощная дернина — осока		69±3	49±12
11	Дернина отсутствует — песок		23±1	5,4±0,6
12	Мощная дернина — осока	с. Зимовище, 6 км, 45°	0,66±0,03	0,7±0,2
13	Средняя дернина — трава	с. Копачи, 5 км, 180°	0,83±0,04	0,83±0,07
14	Средняя дернина — трава	с. Заполье, 14 км, 180°	0,67±0,03	0,53±0,05
15	Дернина отсутствует — песок	р. Припять, берег-пляж, 4 км, 50°	22±1	4,7±0,6
16	Слабая дернина — мох	Опушка "рыжего" леса, 2 км, 290°	11±0,5	9,4±0,5
17	Слабая дернина — мох	г. Припять, новое кладбище, 3 км, 10°	34±2	29±2
18	Мощная дернина — пырей	г. Припять, старое кладбище, 1,5 км, 20°	110±5	42±2

2. МЕТОДЫ ИССЛЕДОВАНИЯ

Образцы почвы, отобранные на глубине 30 см, высушивались, просеивались через сито 1 мм и тщательно перемешивались. От каждого образца было отобрано три параллельные пробы (определение проводилось в трех повторностях) объемом 100 см^3 и в них добавлено по 5 см^3 образцового раствора ^{85}Sr (активность 112 ± 4 Бк) и 25 см^3 H_2O (30 см^3 вносимого раствора имели pH = 2,5). После этого с помощью гамма-спектрометрии была определена удельная активность почвы в каждой пробе. Полученные средние значения и их стандартное отклонение приведены в табл. 4. Время инкубации ^{85}Sr в почвенных пробах составляло 33—48 дней. После инкубации определялось солевое выщелачивание радиостронция в 2М NH_4Ac. Каждая проба с раствором (1:10) интенсивно перемешивалась в течение 1 часа и отстаивалась 1 сутки. Далее по стандартной методике определялась активность радиостронция в растворе (A′) и осадке (A″), доля активности выщелоченного из почвы ^{85}Sr и ^{90}Sr составляла

$$\Delta^{85}Sr = [A'(^{85}Sr)/(A'(^{85}Sr) + A''(^{85}Sr))]*100\ \%;$$

$$\Delta^{90}Sr = [A'(^{90}Sr)/A'(^{90}Sr) + A''(^{90}Sr))]*100\ \%;$$

а также доля активности не растворившихся частиц $\Delta FP = [1 - \Delta^{90}Sr/\Delta^{85}Sr]$ приведены в табл. 4.

Таблица 3. **Агрохимические характеристики почвы в точках пробоотбора**

Номер точки	Тип почвы*	pH_{H_2O}	pH_{HCl}	Hг** мг-экв/100 г почвы	S** мг-экв/100 г почвы	T** мг-экв/100 г почвы	Гумус, %	Nг** мг/100 г почвы	P_2O_5 мг/100 г почвы	K_2O мг/100 г почвы	Ca мг-экв/100 г почвы	Mg мг-экв/100 г почвы	Ca+Mg мг-экв/100 г почвы
1	2	5,6	4,70	5,20	—	—	3,85	—	—	1,80	4,0	0,36	4,4
2	3	5,0	3,80	4,06	1,34	5,40	2,05	6,86	1,00	3,56	2,0	0,8	2,8
3	3	4,5	3,45	5,84	1,25	7,09	5,06	9,52	1,19	4,06	1,2	1,2	2,4
4	2	4,8	3,65	1,75	0,28	2,03	0,46	3,50	4,22	2,69	0,96	1,04	2,0
5	2	4,7	3,64	6,13	1,78	7,91	5,86	11,4	2,81	4,53	1,6	3,2	4,8
6	2	4,65	3,65	3,02	0,10	3,12	1,55	4,20	2,44	3,12	1,2	2,0	3,2
7	2	4,5	3,50	5,73	1,78	7,31	2,56	12,32	13,37	5,19	2,0	1,2	3,2
8	5	5,2	4,60	12,74	29,6	42,4	21,50	38,22	5,62	11,0	31,9	5,3	37,2
9	5	5,2	4,10	19,74	19,20	38,9	23,00	33,18	6,75	13,75	16,8	4,8	21,6
10	5	5,5	4,87	12,42	33,90	46,3	23,50	38,60	3,62	13,75	—	—	—
11	2	4,5	3,75	1,91	0,10	2,01	0,62	4,62	11,00	1,06	0,96	1,44	2,4
12	4	5,5	4,48	3,02	8,02	11,0	2,21	8,96	6,78	4,37	8,80	3,2	12,0
13	2	5,55	4,20	1,83	1,78	3,61	1,19	6,58	11,62	11,25	1,84	2,96	4,8
14	2	5,1	4,00	2,1	—	—	—	—	—	3,00	1,00	0,26	1,26
15	1	5,2	4,00	0,64	0,46	1,10	0,22	3,50	6,03	3,56	1,04	1,36	2,4
16	1	5,8	4,8	2,10	4,24	6,34	2,36	9,94	11,62	8,12	3,20	1,6	4,8
17	2	5,3	4,05	1,75	1,07	2,82	1,79	5,88	6,53	2,69	1,52	1,28	2,8
18	2	4,45	3,60	1,51	2,39	3,90	4,46	11,76	12,31	5,50	2,24	2,56	4,8

*1 — дерново-подзолистая песчаная; 2 — дерново-подзолистая супесчаная; 3 — дерново-подзолистая суглинистая; 4 — дерново-оглеенная; 5 — торфяная
**Hг — гидролитическая кислотность; S — сумма поглощенных оснований; T — емкость поглощения; Nг — гидролизуемый азот.

Таблица 4. **Относительная активность почвы на момент измерения (09.1995), доля перехода радиостронция в раствор, относительная активность не разрушенных топливных частиц в почве и параметры растворения частиц**

Номер точки	Удельная активность почвы, kBq/kg			Отношение активности $^{90}Sr/^{154}Eu$	Доля перехода радиостронция в раствор ,%		Доля активности не растворившихся частиц — ΔFP, %	Постоянная выщелачивания ^{90}Sr из частиц, *k*, 1/год	Скорость растворения частиц, *V* мкм/год
	^{137}Cs	^{154}Eu	^{90}Sr		$\Delta^{85}Sr$	$\Delta^{90}Sr$			
1	8,7±2,6	0,11±0,05	5,0±2,1	44±5	82±3	26±9	68±11	0,04±0,02	0,06±0,02
2	7,0±0,2	0,13±0,01	5,6±0,3	44±5	83±3	77±5	7±5	0,29±0,08	0,35±0,10
3	5,7±0,5	0,10±0,02	3,7±0,1	36±4	85±3	84±3	2±5	0,42±0,27	0,51±0,15
4	20,5±0,8	0,24±0,03	4,1±0,2	17±1	86±8	69±5	19±5 (6±5)	0,30±0,09	0,39±0,15
5	43±11	0,5±0,2	23±11	47±3	85±2	44±17	48±19	0,08±0,04	0,11±0,06
6	57±6	0,6±0,2	32±9	51±3	81±4	46±11	44±11	0,09±0,03	0,12±0,05
7	71±2	0,73±0,05	45±3	62±3	84±2	60±4	28±4	0,14±0,02	0,19±0,02
8	125±15	1,4±0,3	81±26	55±7	69±3	36±10	47±16	0,08±0,04	0,11±0,05
9	71±14	1,1±0,4	59±36	60±12	85±7	30±15	64±18	0,05±0,03	0,07±0,05
10	391±78	4,3±1,3	251±64	59±4	58±2	17±5	70±10	0,04±0,02	0,06±0,03
11	51±2	0,50±0,02	12±1	24±2	84±4	37±5	57±4 (27±4)	0,14±0,02	0,19±0,02
12	1,7±0,3	0,025±0,008	1,8±0,6	73±22	79±2	56±7	28±10	0,14±0,04	0,18±0,05
13	1,2±0,1	0,022±0,007	1,2±0,1	57±16	85±5	76±5	8±6	0,08	0,34±0,10
14	1,3±0,3	0,021±0,007	1,0±0,1	49±14	91±2	77±8	16±9	0,20±0,06	0,26±0,08
15	35,4±0,7	0,8±0,3	7,8±1,0	10±2	94±2	66±6	30±7 (6±7)	0,30±0,13	0,38±0,10
16	17±1	0,19±0,03	15,0±0,8	80±10	90±2	60±3	34±4	0,12±0,01	0,16±0,02
17	61±5	0,91±0,05	51±3	56±4	79±3	65±3	18±6	0,18±0,04	0,24±0,05
18	294±8	3,5±0,1	113±4	32±1	89±3	70±3	21±4 (13±4)	0,22±0,03	0,28±0,04

3. РЕЗУЛЬТАТЫ ИССЛЕДОВАНИЙ

Из приведенных результатов видно, что для песчаных проб почвы (4, 11, 15), отобранных на участках без дернины (табл. 2) с очень низким содержанием гумуса 0,22—0,62 % (табл. 3) наблюдаются низкие значения $^{90}Sr/^{154}Eu$ (табл. 4). Это видимо указывает на то, что значительная часть ^{90}Sr, выщелоченного из топливных частиц, промигрировала в песке на глубину более 30 см. Поэтому в этих пробах, для учета промигрировавшего ^{90}Sr был оценен общий запас ^{90}Sr из активности ^{154}Eu, и с учетом этого оценена доля не растворившихся топливных частиц (табл. 4, результаты приведены в скобках).

Анализ полученных данных по скорости растворения топливных частиц в почве в естественных условиях (табл. 4) показывает, что наиболее значимыми являются не почвенно-климатические условия, а физико-химические свойства самих частиц. Так, частицы первого выброса (табл. 2, точки 1, 5—11) с наименьшей степенью окисления UO_2, выброшенные из реактора в западном направлении (270°, узкий топливный западный след), химически наиболее устойчивы не зависимо от почвенных характеристик. До настоящего времени от 27 до 70 % активности ^{90}Sr находится в матрице топливных частиц. Частицы, длительное время отжигавшиеся в период аварии, выброшенные в других направлениях после 26.04.86 г., растворились в большей степени при аналогичных почвенных условиях. Скорость растворения одинаковых частиц (табл. 2, точки 5—11) в наибольшей степени зависит от pH почвы (табл. 3). В наибольшей степени частицы сохранились в слабокислых почвах (pH > 5,2) на западном следе, в частности, в торфяных почвах с pH = 5,2—5,5 (табл. 2—4, точки 9, 10) и дерново-подзолистой супесчаной почве с pH = 5,6 (табл. 2—4, точка 1).

4. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Некоторые авторы считают [9], что радионуклиды могут продиффундировать из матрицы топливных частиц в почву, однако это маловероятно, так как коэффициенты диффузии даже ^{90}Sr в UO_2 при температуре 300 K пренебрежимо малы [6], и если бы процессы диффузии были значимы, то не наблюдалось бы различий в выходе РВ из матрицы частиц в зависимости от почвенно-климатических условий, что противоречит действительности (табл. 2—4).

Процесс растворения топливных горячих частиц ряд авторов описывает уравнением кинетики первого порядка [9—11]:

$$dA/dt = -kA,\ \Delta FP = A(t)/A_0 = \exp(-kt), \qquad (2)$$

где $A(t)$ и A_0 — активность частиц в момент времени t после выпадений и в начальный момент, соответственно. Полученные из ΔFP (2) значения постоянных трансформации топливных частиц (k, год$^{-1}$) в различных почвенных условиях (табл. 2) хорошо согласуются с литературными данными [9—11] и приведены в табл. 4. Зависимость постоянных трансформации топливных частиц (k, год$^{-1}$) от кислотности почвы $-pH_{H_2O}$ приведена на рис. 2:

для сильно окисленных частиц на севере и юге от ЧАЭС:

$$k = 4{,}57 \cdot 10^{-0{,}25pH}\ 1/\text{год};$$

для слабо окисленных топливных частиц на западе:

$$k = 13{,}8 \cdot 10^{-0{,}46pH}\ 1/\text{год},$$

где коэффициент корреляции 0,67 и 0,93, соответственно.

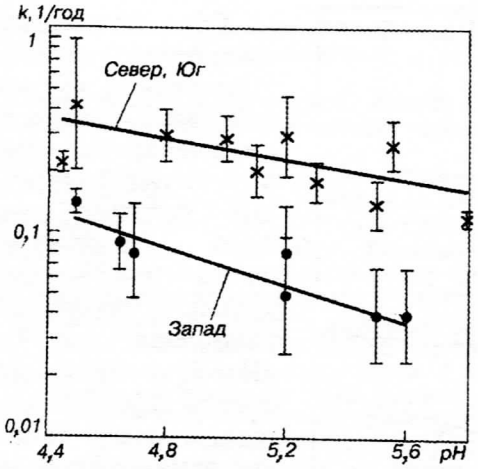


Рис. 2. Зависимость постоянных трансформации топливных частиц (k, 1/год) от кислотности почвы $-pH_{H_2O}$:

× — для сильно окисленных топливных частиц: О — для слабо окисленных

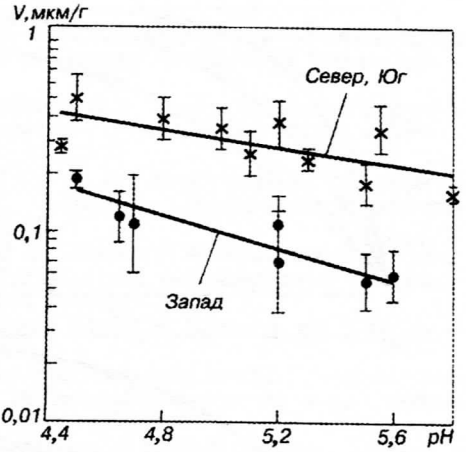


Рис. 3. Зависимость линейной скорости растворения топливных частиц от кислотности почвы $-pH_{H_2O}$:

× — для сильно окисленных частиц; О — для слабо окисленных

Однако на наш взгляд не совсем корректно использовать уравнение (2) для описания растворения частиц в почве. Так как при этом не учитывается реальный дисперсный состав частиц (1) и, следовательно, изменение их общей поверхности во времени, определяющей процесс растворения. Поэтому исходя из реального дисперсного состава выпавших чернобыльских топливных частиц (1), а также оцененной доли нерастворенных частиц ΔFP (табл. 4) за 9 лет, была рассчитана линейная скорость растворения (V, мкм/год) матрицы частиц в каждой экспериментальной точке (предполагалось, что она постоянна во времени):

$$\Delta FP = \int_{vt}^{\infty} (r - Vt)^3 f(r)dr \Big/ \int_0^{\infty} r^3 f(r)dr, \qquad (3)$$

где t — время растворения частиц в почве после аварии (лет). Полученные значения линейной скорости растворения топливных частиц и их погрешности в каждой экспериментальной точке при реальных различных почвенно-климатических условиях приведены в табл. 4. Наблюдается хорошая корреляция между линейной скоростью растворения топливных частиц, выброшенных в западном направлении (270°) при первом взрыве (слабо окисленных), и сильно окисленных частиц (северное и южное направление выброса при горении реактора) от кислотности почвы —pH (рис. 2). Получены следующие зависимости скорости растворения топливных частиц от кислотности почвы:

для сильно окисленных частиц на юге и севере от ЧАЭС:

$$v = 4{,}59 \cdot 10^{-0{,}234pH} \text{ мкм/год};$$

для слабо окисленных топливных частиц на западе:

$$v = 14{,}45 \cdot 10^{-0{,}431pH} \text{ мкм/год};$$

коэффициент корреляции 0,67 и 0,91, соответственно.

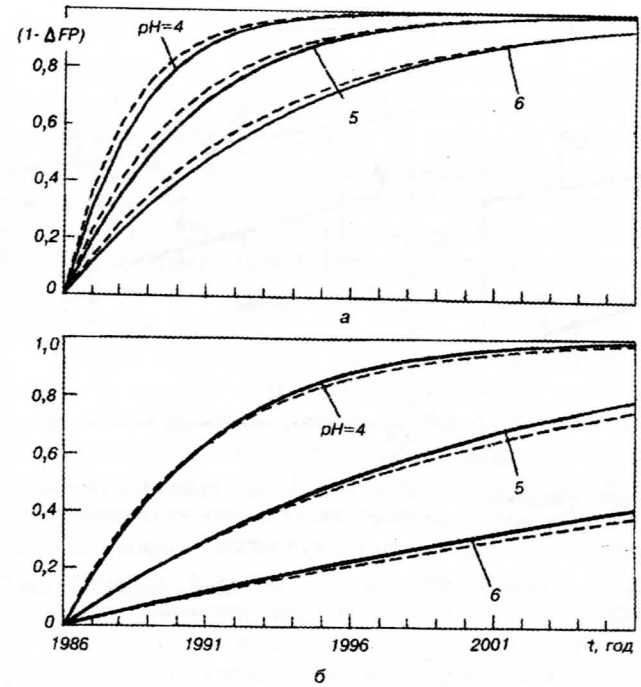


Рис. 4. Динамика выщелачивания радионуклидов из топливных частиц (1 − ΔFP) при различной кислотности почвы для разных направлений выброса (*а* − север и юг; *b* − запад), расчитанная с помощью зависимостей (*2*) и (*3*) для постоянных трансформации (k, год$^{-1}$) и линейной скорости растворения (V, мкм/год) топливных частиц в почве, соответственно

Обе полученные зависимости (рис. 2, 3) достаточно хорошо описывают скорость растворения топливных частиц в различных типичных для Зоны отчуждения почвах (рис. 3) при разной степени их увлажнения при 4 < pH < 6, что позволяет сделать прогноз динамики выщелачивания радионуклидов из топливных частиц (1—ΔFP) в различных почвенных условиях для разных направлений выброса (рис. 4). Аналогичным образом будет изменяться доля обменного стронция в почве и динамика загрязнения растительности (рис. 5). Полученные прогнозные

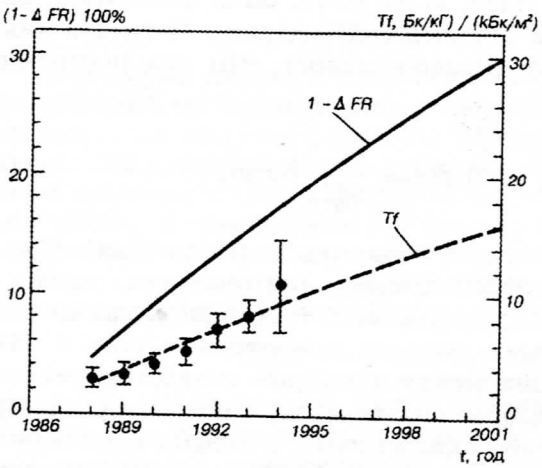


Рис. 5. Рассчитанные зависимости доли ^{90}Sr (рис. 4, б), выщелаченного в почву при pH6 из топливных частиц западного следа (сплошная кривая (1—ΔFP)*100 % и его эффективных коэффициентов перехода в луговую растительность (штриховая Tf = = 53*(1—ΔFP)) без учета перераспределения в корнеобитаемом слое, а так же соответствующие этому экспериментальные значения [8]

оценки хорошо согласуются с литературными данными о формах нахождения ^{90}Sr в почве на топливных следах чернобыльского выброса [8—11]. Таким образом, на западном узком топливном следе выброса значительная доля РВ (до 70 % при pH = 6) и в 2000 г. будет еще в составе частиц (рис. 4), в то же время в других точках основная доля топливных частиц к этому времени уже растворится.

1. *Loshchilov N. A., Kashparov V. A., Yudin Ye. B. et al.* Experimental assessment of radioactive fallout from the Chernobyl accident // Sicurezza e Protezione. — 1991. — N 25—26. — P. 46.
2. *Kuriny V. D., Ivanov Yu. A., Kashparov V. A. et al.* Particle associated Chernobyl fall-out in the local and intermediate zones // Annals of Nuclear Energy. — 1993. — V. 20. — N 6. — P. 415.

3. *Лощилов Н. А., Кашпаров В. А., Поляков В. Д. и др.* Ядерно-физические характеристики горячих частиц, образовавшихся в результате аварии на ЧАЭС // Радиохимия. — 1992. — № 4. — С. 113.
4. *Лощилов Н. А., Кашпаров В. А., Юдин Е. Б., Процак В. П.* Фракционирование радионуклидов в чернобыльских топливных горячих частицах // Радиохимия. — 1992. — № 5. — С. 125.
5. *Кашпаров В. А., Иванов Ю. А., Пристер Б. С. и др.* Моделирование образования "горячих" частиц во время аварии на ЧАЭС // Проблемы Чернобыльской зоны отчуждения. — Киев. — 1995. — Вып. 2. — С. 120.
6. *Кашпаров В. А., Иванов Ю. А., Хомутинин Ю. В., Пазухин Э. М.* Реконструкция эффективной температуры и времени отжига топливных частиц, выброшенных из чернобыльского реактора во время аварии // Радиохимия. — 1996. — № 1.
7. *Contamination* of surfaces by resuspended material / Editors W. Hollander and E. Garger. — Final report EUR 16527EN: Luxembourg, 1996.
8. *Ivanov Yu. A., Kashparov V. A., Sandalls J. et al.* Fuel component of ChNPP release fallout: properties and behaviourin the environment. // The radiological cosequences of the Chernobyl accident. — EUR 16544EN: Luxembourg, 1996. — P. 173.
9. *Чернобыльская* катастрофа / Под ред. В. Г. Барьяхтара. — Киев: Наук. думка, 1995.
10. *Петряев Е. П., Овсяникова С. В., Рубинчик С. Я. и др.* Состояние радионуклидов чернобыльских выпадений в почвах Белоруссии // Изв. АН БССР, Сер. физ.-энерг. наук. — 1991. — № 4. — С. 48.
11. *Konoplev A. V., Bulgakov A. A., Popov V. E., Bobovnikova Ts. I.* Behaviour of long-lived radionuclides in a soli-water system // Analyst. — 1992. — **117.** — P. 1041.
12. *Иванов Ю. А., Кашпаров В. А., Зварич С. И.* Экспериментальное моделирование поведения топливных частиц выброса ЧАЭС в различных средах. 1. Роль "генезиса" частиц, кислотности и окислительно-восстановительного потенциала Среды и некоторых процессов комплексообразования // Радиохимия. — 1994. — 36. — Вып. 1. — С. 82.

Украинский научно-исследовательский
институт сельскохозяйственной
радиологии, Киев

Получено 10.06.97

УДК 546.295+621.039.542

**В. А. Кашпаров, Ю. А. Иванов, В. П. Процак,
Ю. В. Хомутинин, В. И. Йощенко, Э. М. Пазухин**

ОЦЕНКА УСЛОВИЙ ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНОГО ОТЖИГА ТОПЛИВНЫХ ЧАСТИЦ, ВЫБРОШЕННЫХ ИЗ ЧЕРНОБЫЛЬСКОГО РЕАКТОРА ВО ВРЕМЯ ВЗРЫВА

Приведены экспериментальные данные о динамике относительной утечки ^{137}Cs из топливных частиц чернобыльского происхождения, оценен радиус эквивалентной сферы (зерна, кристаллита UO_2) $L = 2{,}4 \pm 0{,}7$ мкм чернобыльского ядерного топлива, который очень хорошо согласуется с медианными радиусами частиц топливной компоненты выпадений чернобыльского выброса 1,5—3,5 мкм, и зерен, на которые разрушается чернобыльское ядерное топливо при окислении на воздухе — 3 мкм. Для изотермических и неизотермических (взрывных) условий, а также линейного и экспоненциального роста температуры получены близкие значения медианных максимальных температур отжига частиц во время аварии ($T = 2400$ K, $T = 2630$ K и $T = 2540$ K, соответственно) и медианные времена отжига ($t = 3{,}5$ с, $t = 17$ с и $t = 27$ с). На основании данных о глубине выгорания топливных частиц, выброшенных из реактора во время взрыва, сделана попытка оценки области активной зоны, из которой произошел их выброс.

1. ВВЕДЕНИЕ

В результате взрыва 4-го энергоблока Чернобыльской АЭС 26 апреля 1987 г. произошло разрушение ядерного топлива при высокой температуре. Это привело к выбросу из локальной области реактора во время взрыва достаточно крупных топливных частиц (ТЧ) разме-

© В. А. Кашпаров, Ю. А. Иванов, В. П. Процак, Ю. В. Хомутинин, В. И. Йощенко, Э. М. Пазухин, 1998