

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

**ДЕРЖАВНИЙ ДЕПАРТАМЕНТ – АДМІНІСТРАЦІЯ ЗОНИ ВІДЧУЖЕННЯ
І ЗОНИ БЕЗУМОВНОГО (ОБОВ'ЯЗКОВОГО) ВІДСЕЛЕННЯ, 2009**

ПРОБЛЕМИ ЧОРНОБИЛЬСЬКОЇ ЗОНИ ВІДЧУЖЕННЯ

PROBLEMS OF CHERNOBYL EXCLUSION ZONE

НАУКОВО-ТЕХНІЧНИЙ ЗБІРНИК

ЗАСНОВАНО У 1994 Р.

ВИПУСК 9

РАДИОЛОГИЧЕСКАЯ ЗНАЧИМОСТЬ ТОПЛИВНОЙ КОМПОНЕНТЫ ЧЕРНОБЫЛЬСКИХ РАДИОАКТИВНЫХ ВЫПАДЕНИЙ

В. А. Кашпаров

*Украинский НИИ сельскохозяйственной радиологии Национального университета
биоресурсов и природопользования Украины, Киев*

Работа посвящена оценке радиоэкологической значимости топливной компоненты чернобыльских радиоактивных выпадений. Изучены физико-химические свойства чернобыльских горячих частиц (радионуклидный и дисперсный состав, глубина выгорания ядерного топлива и фракционирование радионуклидов, состав матрицы частиц и т.д.), включая топливные частицы, являющиеся специфической формой чернобыльских радиоактивных выпадений. Сделана попытка реконструкции условий образования топливных частиц во время аварии и показано, что окисление ядерного топлива было одним из основных механизмов образования топливных частиц. На основании репрезентативного пробоотбора почвенных проб впервые построены карты загрязнения ближней зоны аварии в масштабе 1 : 200000 радионуклидами, выпавшими в составе топливных частиц. Уточнено общее содержание радионуклидов в 30-сантиметровом почвенном слое 30-километровой зоны ЧАЭС. Оценена величина относительного выброса радионуклидов в составе топливных частиц во время аварии за пределы промплощадки ЧАЭС, составившая $1,5 \pm 0,5\%$ от наработки радионуклидов в реакторе, что в два раза ниже ранее приводимых оценок. Изучена кинетика и получены зависимости скорости растворения топливных частиц как в естественных условиях, так и в модельных средах. Сделан прогноз динамики загрязнения растительности на топливных следах радиоактивных выпадений. Рассмотрена ресуспензия радионуклидов в естественных условиях, при техногенном воздействии на почву и лесных пожарах, а также ингаляционная опасность поступления топливных частиц в организм человека. Получены параметры метаболизма радионуклидов в составе топливных частиц в организме сельскохозяйственных животных.

Ключевые слова: горячие частицы, топливные частицы, ядерное топливо, Чернобыльская авария, радионуклиды, окружающая среда, радиоактивное загрязнение.

Чернобыльские радиоактивные выпадения представлены топливной компонентой — частицами мелкодиспергированного ядерного топлива (топливными частицами) и конденсационной компонентой, образовавшейся в результате конденсации на поверхности различных носителей летучих высокоподвижных продуктов деления (радиоизотопов йода, теллура, цезия и, в значительно меньшей, степени стронция и рутения), утечка которых происходила при высокотемпературном отжиге ядерного топлива [1–6]. Присутствие в радиоактивных выпадениях радионуклидов в составе частиц облученного ядерного топлива топливных частиц является специфической особенностью аварии на ЧАЭС. Ближняя 30-километровая зона аварии (около 2000 км²) преимущественно была загрязнена топливными частицами, содержащими основную часть выброшенных из реактора нелетучих радионуклидов, включая такие биологически значимые, как ⁹⁰Sr, радиоизотопы плутония и америция. Топливные частицы были обнаружены и на значительном удалении от ЧАЭС во многих странах Европы [7]. Цезиевые конденсационные пятна в дальней зоне сформировались за счет выпадений ¹³⁷Cs вместе с осадками.

За последние полвека был проведен ряд фундаментальных исследований, посвященных поведению искусственных радионуклидов в окружающей среде, как после их глобальных выпадений вследствие испытания ядерного оружия, крупных радиационных аварий, так и в модельных экспериментах с использованием водорастворимых форм радионуклидов и различных радиоактивных частиц. Однако уже первые результаты, полученные на топливных следах чернобыльских радиоактивных выпадений, показали ограниченность области применения ранее полученных закономерностей поведения радионуклидов. Так, на топливных следах радиоактивных выпадений радионуклиды отличались существенно меньшей мобильностью и биологической доступностью по сравнению с конденсационной формой выпа-

дений (как глобальных, так и чернобыльских). Поэтому применение в первые годы Чернобыльской аварии ранее полученных закономерностей приводило к завышению результатов прогноза миграции радионуклидов в ближней зоне (наиболее сильно это проявлялось для ^{90}Sr). Со временем происходило (и происходит) растворение топливных частиц, что приводит к увеличению загрязнения растительности ^{90}Sr и его миграции в поверхностные и грунтовые воды. До настоящего времени основной вынос радиоактивности с территории зоны отчуждения обусловлен ^{90}Sr , выщелачиваемым из топливных частиц.

Отсутствие знаний о поведении в окружающей среде радионуклидов, выпавших в составе матрицы частиц облученного ядерного топлива, не позволяло в полной мере корректно оценить радиологическую обстановку в ближней зоне во время аварии на ЧАЭС и спрогнозировать ее изменение в будущем, а также оптимизировать применяемые контрмеры.

С точки зрения формирования радиологической обстановки (воздействие на человека и животных за счет внешнего облучения и внутреннего ингаляционного и перорального поступления радионуклидов в организм) физико-химические формы нахождения радионуклидов, включая топливные частицы, наиболее проявляются:

- при формировании поля радиоактивного загрязнения территории;

- при ингаляционном поступлении радионуклидов во время прохождения радиоактивного облака и при вторичном ветровом подъеме, а также метаболизме радионуклидов в организме и формировании дозовых нагрузок;

- при миграции радионуклидов в почве, определяющей динамику мощности экспозиционной дозы и загрязнение поверхностных и грунтовых вод, а также для изменения во времени биологической доступности радионуклидов, определяющей уровни радиоактивного загрязнения растительности, сельскохозяйственной продукции и внутреннего поступления радионуклидов в организм человека;

- при пероральном поступлении радионуклидов в организм сельскохозяйственных животных, метаболизме радионуклидов и радиоактивном загрязнении животноводческой продукции.

Все это обуславливает актуальность изучения поведения в окружающей среде радионуклидов, находящихся в составе топливной компоненты аварийного выброса ЧАЭС как для ликвидации последствий Чернобыльской аварии, так и использования ее опыта для других аварийных гипотетических ситуаций с выбросом частиц облученного ядерного топлива, а также при его захоронении. Выброс аналогичных чернобыльских топливных частиц может происходить при авариях на предприятиях ядерно-топливного цикла при транспортировке топлива, разрушении ядерных реакторов и хранилищ отработанного ядерного топлива и т.п. Особую актуальность изучение процессов образования топливных частиц и поведения в окружающей среде радионуклидов в их составе приобрело после беспрецедентных террористических актов в США в 2008 г. и угроз использования в террористических актах загрязняющих территорию «грязных» бомб.

Физико-химические свойства топливных частиц и механизмы их образования во время аварии на ЧАЭС

В 1987 – 1989 гг. путем сканирования дозиметром тонкого почвенного слоя было выделено более 1200 сравнительно крупных «горячих частиц» (и около 500 в период с 1989 по 1996 г.) размером > 10 мкм и активностью > 100 Бк, образовавшихся в результате аварии на ЧАЭС. В ближней зоне аварии на ЧАЭС «горячие частицы» размером более 10 мкм представлены в основном (97 %) частицами мелкодиспергированного чернобыльского ядерного топлива – топливными частицами. Удельная активность этих частиц соответствует удельной активности топлива на момент аварии за исключением летучих высокоподвижных радионуклидов – $^{134,137}\text{Cs}$. Наличие делящегося материала в них подтвердил нейтронно-активационный анализ и электронно-зондовый микроанализ, а также лазерная масс-спектрометрия (обогащение по ^{235}U - 1-2 %). Распределение топливных частиц размером более 10 мкм по

глубине выгорания свидетельствует о том, что они были выброшены из локальной области реактора, имеющей меньшее выгорание по сравнению со средним выгоранием топлива в 4-м блоке ЧАЭС на момент аварии [2, 8, 9]. На основании экспериментальных данных получены соотношения между активностями ^{90}Sr , ^{95}Zr , ^{106}Ru , ^{125}Sb , ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{144}Ce , ^{154}Eu , ^{155}Eu и трансурановыми элементами (ТУЭ) в топливных частицах, что позволяет рассчитывать загрязнение территории основными радиологически значимыми радионуклидами в составе топливной компоненты выпадений. Полученная экспериментальная информация вошла в созданную в среде Microsoft Access базу данных «Горячие частицы». Данная база данных широко используется как в странах СНГ, так и в дальнем зарубежье и доступна для широкого круга пользователей. Дисперсный состав топливных частиц в первоначальных радиоактивных выпадениях на удалении 2 – 60 км от ЧАЭС описывается логнормальным законом распределения с медианным радиусом топливных частиц около 3 мкм [10]. Основная доля активности радионуклидов топливной компоненты чернобыльских радиоактивных выпадений приходится именно на топливные частицы микронного диапазона. Вклад крупных частиц размером более 10 мкм в плотность загрязнения территории на удалении более 2 км от ЧАЭС является незначительным. Слаботрансформированные топливные частицы могли образоваться на первой стадии Чернобыльской аварии при механическом разрушении топлива во время взрыва (26 апреля 1986 г.) и были выброшены преимущественно в западном направлении. Они представляют собой кусочки ядерного топлива с хорошо выраженной «зернистой» структурой либо отдельные зерна (кристаллиты) UO_2 , что обусловлено технологией производства топлива. Внешний вид слаботрансформированных во время аварии чернобыльских топливных частиц после достаточно длительного их нахождения в почве (до 15 лет) практически не отличается от частиц реального облученного ядерного топлива сразу после окончания его эксплуатации. Это указывает на крайне малую скорость растворения UO_2 -частиц в окружающей среде.

На последующих стадиях аварии происходило образование топливных частиц с высокой степенью трансформации их матрицы. Ядерное топливо при окислении на воздухе разрушалось по границам зерен. В результате диффузии кислорода в зерно поверхность UO_2 растрескивалась за счет различий плотности и кристаллических решеток разных окислов урана. При высокой аварийной температуре топливо могло частично оплавляться. Оно контактировало с различными конструкционными материалами и материалами засыпки реактора, что привело к образованию сложных химических соединений, особенно на поверхности топливных частиц. Как правило, крупные оплавленные топливные частицы содержат цирконий. Это, видимо, связано с более высокой температурой плавления окислов урана по сравнению с их сплавами с цирконием. В силу методических трудностей удастся, как правило, выделить из почвы только достаточно крупные топливные частицы, которые не являются репрезентативными для всей топливной компоненты чернобыльских радиоактивных выпадений. Поэтому значительная доля этих частиц приходится именно на оплавленные U-O-Zr-частицы, которые имеют больший размер по сравнению с «чистыми» частицами диоксида урана, преимущественно разрушившегося до исходных кристаллитов меньшего размера. Поэтому при изучении поведения топливных частиц в окружающей среде, для получения репрезентативных данных, необходимо использовать статистически достоверную выборку частиц (например, реально присутствующую в почве), а не отдельные выделенные крупные частицы.

Для лучшего понимания процессов, происходящих в аварийном блоке, и оценки дисперсного состава выброшенных во время аварии топливных частиц были проведены эксперименты по моделированию их образования во время аварии. В модельных экспериментах было показано, что в результате окисления на воздухе при температуре 673–1173 К реального облученного чернобыльского ядерного топлива в течение 1 – 21 ч происходит его разрушение на мелкие частицы, дисперсный состав которых хорошо описывается логнормальным законом распределения [11] и соответствует дисперсному составу радиоактивных выпадений

[10]. Получены параметры распределений дисперсного состава топливных частиц [11, 12]. Медианный радиус образующихся частиц не зависит от температуры отжига и уменьшается с увеличением времени до размеров зерен (кристаллитов) ядерного топлива (~6 мкм). Исходя из дисперсного состава и состава матрицы реальных чернобыльских топливных частиц, можно сделать вывод, что окисление ядерного топлива было одним из основных механизмов их образования во время аварии на ЧАЭС.

При окислении на воздухе и диспергировании реального облученного оксидного ядерного топлива даже при температуре 673 К происходит утечка рутения в виде летучего RuO_4 с последующим его восстановлением на материалах группы железа. Окисление и утечка рутения происходит только с поверхности зерен и не превышает единиц процентов от его содержания в топливной матрице [11]. Показано, что никель и нержавеющую сталь можно эффективно использовать при высоких температурах для поглощения радиоизотопов рутения в аварийных ситуациях и при некоторых технологических операциях.

Экспериментальные данные по измерению динамики относительной утечки продуктов деления при высокотемпературном отжиге топливных частиц показали, что с увеличением температуры отжига реальных топливных частиц в инертной среде в диапазоне от 1273 до 2273 К растет относительная утечка радионуклидов в следующей последовательности: изотопы цезия > изотопы европия > изотопы церия > изотопы америция > изотопы рутения, плутония, кюрия. При температуре 2273 К за 100 мин относительная утечка в вакууме всех измеряемых радионуклидов из реальных топливных частиц превышает 90 %.

Отсутствие фракционирования ^{144}Ce , $^{154,155}\text{Eu}$ и ^{125}Sb в реальных чернобыльских топливных частицах и сравнительно невысокое обеднение их ^{90}Sr и $^{134,137}\text{Cs}$ указывает на то, что выброшенные из реактора частицы размером более 10 мкм находились либо в достаточно "мягких" температурных условиях во время аварии на ЧАЭС, либо нагревались в течение малого промежутка времени [11].

На основании данных о коэффициентах фракционирования ^{137}Cs и ^{90}Sr в чернобыльских топливных частицах с учетом их выгорания и полученной зависимости эффективных коэффициентов диффузии от температуры сделана оценка эффективного времени и температуры отжига топливных частиц во время аварии. Полученные распределения эффективных значений температур (T) и времен (t) изотермического отжига выброшенных из реактора топливных частиц (медианное значение $T = 2400$ К и $t = 3,5$ с, соответственно) указывают на "взрывной" характер образования топливных частиц (размером >10 мкм) при быстром росте температуры отжига во время аварии. При неизотермических условиях для линейного и экспоненциального роста температуры получены близкие значения медианных максимальных температур отжига топливных частиц во время аварии ($T = 2630$ К и $T = 2640$ К соответственно) и несколько большие медианные времена отжига ($t = 17$ с и $t = 27$ с соответственно) [8, 9].

На основании данных о распределении топливных частиц и ядерного топлива в реакторе по глубине выгорания сделана попытка и показана возможность определения области их первоначального выброса из реактора во время взрыва на ЧАЭС [9].

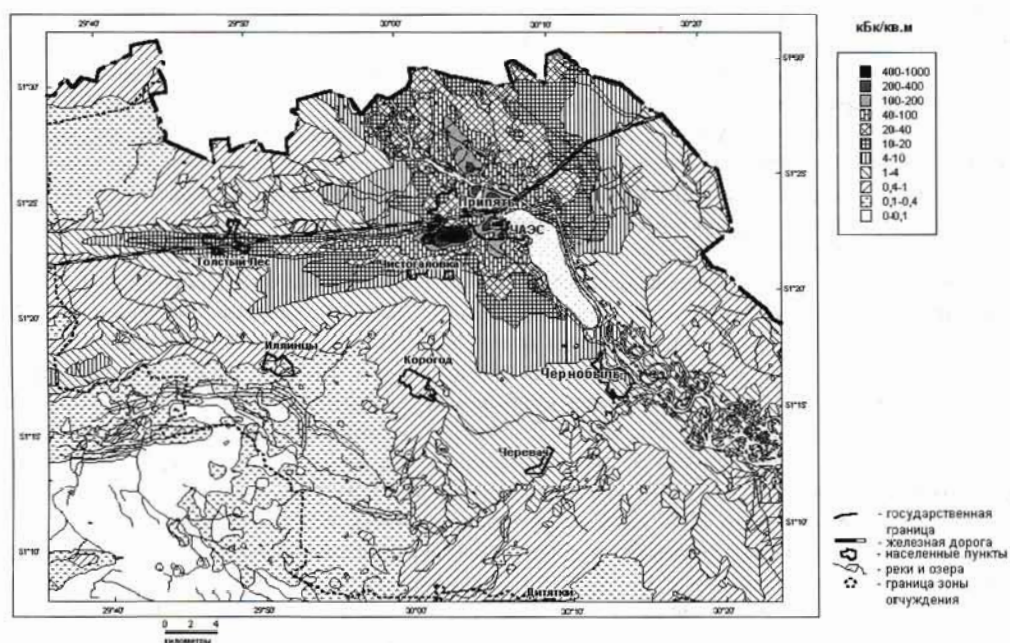
Загрязнение территории радионуклидами топливной компоненты радиоактивных выпадений

Ближняя зона аварии (до 30 – 100 км) была загрязнена в основном топливной компонентой радиоактивных выпадений (топливными частицами) в виде четко выраженных следов: западного, северного и южного. Такие радионуклиды, как ^{95}Zr , ^{95}Nb , ^{99}Mo , $^{141,144}\text{Ce}$, $^{154,155}\text{Eu}$, $^{237,239}\text{Np}$, $^{238,242}\text{Pu}$, $^{241,243}\text{Am}$, $^{242,244}\text{Cm}$, были выброшены из аварийного блока только в составе топливных частиц. Более 90 % утечки активности $^{89,90}\text{Sr}$ и $^{103,106}\text{Ru}$ также приходилось на топливные частицы. Все эти радионуклиды (радионуклиды топливной компоненты чернобыльских радиоактивных выпадений) выпали на почву в составе матрицы топливных частиц разной степени трансформации. Из-за невозможности использования дистанционных

методов измерения и большой трудоемкости работ до 1997 г. отсутствовали детальные карты загрязнения зоны отчуждения радионуклидами, входящими в состав топливной компоненты черновыльских радиоактивных выпадений. В связи с этим, для планирования реабилитационных мероприятий, в 1997 г. был проведен комплекс работ по уточнению загрязнения ближней зоны аварии на ЧАЭС [1, 5, 6, 15, 21]. В первую очередь работы были направлены на картирование 30-километровой зоны по ^{90}Sr и ТУЭ, что было связано с растворением топливных частиц и увеличением содержания мобильного радиостронция в почве. Это приводило к преобладающему загрязнению ^{90}Sr растительности, а также поверхностных и грунтовых вод в 30-километровой зоне ЧАЭС.

Началу работ по крупномасштабному пробоотбору почвы предшествовала большая методическая работа по оптимизации процесса пробоотбора и измерений образцов [13, 14]. Пробы почвы отбирались в 30-километровой зоне ЧАЭС по регулярной сетке с шагом около 1 км (на участках с большими градиентами плотности загрязнения расстояние между точками отбор проб составляло 0,1-0,5 км). Отбор проб почвы производился по единой методике на глубину 30 см методом "конверта" с шагом 2 – 5 м (5 уколов) с использованием цилиндрического пробоотборника диаметром 37 мм. В каждой точке измерялась мощность экспозиционной дозы и с помощью GPS определялись географические координаты. Учитывая большую площадь работ (около 2000 км²) и труднодоступность в настоящее время отдельных участков, отбор проб почвы проводился с помощью вертолетов. Измерения почвенных проб проводилось с использованием стандартных радиохимических методов. На основании измерений активности почвенных проб по $^{134,137}\text{Cs}$, ^{90}Sr , ^{154}Eu и ТУЭ (четыре параллельных образца в каждой точке) в среде Microsoft Access была создана база данных экспериментальной информации «Проба». Контроль вертикального распределения в почве наиболее мобильного радионуклида ^{90}Sr проводился с помощью послыонного пробоотбора и специально разработанного каротажного бета-радиометра. Это обеспечило достаточность пробоотбора и показало, что и спустя 11 – 15 лет после аварии только в единичных точках на незадернованных песках с малым содержанием гумуса наблюдается значительная вертикальная миграция ^{90}Sr (фронт активности может достигать 1-2 м). На основании этого впервые были построены интегрированные карты плотности загрязнения 30-километровой зоны (рис. 1) в масштабе 1 : 200000 радионуклидами топливной компоненты радиоактивных выпадений (^{90}Sr , ^{154}Eu , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am).

Интегрирование поверхности загрязнения территории показало, что общее содержание радионуклидов в 30-сантиметровом почвенном слое 30-километровой зоны ЧАЭС на 1 января 2000 г. за пределами промышленной площадки (без учета мест захоронения радиоактивных отходов и пруда охладителя) составляет: ^{90}Sr – $7,7 \cdot 10^{14}$ Бк; ^{137}Cs – $2,8 \cdot 10^{15}$ Бк; ^{154}Eu – $1,4 \cdot 10^{13}$ Бк; ^{238}Pu – $7,2 \cdot 10^{12}$ Бк; $^{239+240}\text{Pu}$ – $1,5 \cdot 10^{13}$ Бк; ^{241}Am – $1,8 \cdot 10^{13}$ Бк [1, 5, 6, 15, 21]. Суммарный запас радионуклидов топливной компоненты радиоактивных выпадений в поверхностном слое почвы 30-километровой зоны Украины соответствует 0,4 – 0,5 % от наработки этих радионуклидов в 4-м блоке ЧАЭС, что в три раза ниже общепринятых до этого величин, полученных еще в первые годы после аварии. Около 70 – 80 % запаса активности радионуклидов топливной компоненты черновыльских радиоактивных выпадений в 30-сантиметровом поверхностном слое почвы сосредоточены всего на 10 % центральной части территории 30-километровой зоны ЧАЭС. По мере удаления от ЧАЭС, несмотря на увеличение площади загрязненной территории, плотность загрязнения почвы и запас в ней ^{90}Sr и ТУЭ быстро уменьшается. Так, на 50 % территории 30-километровой зоны ЧАЭС, приходящейся на периферию зоны отчуждения с плотностью загрязнения $^{239+240}\text{Pu} < 1$ кБк/м², содержится всего около 3 % активности радионуклидов топливной компоненты радиоактивных выпадений. Это указывает на то, что основная часть радионуклидов топливной компоненты черновыльского выброса сосредоточена непосредственно на примыкающих к ЧАЭС территориях и за пределами 30-километровой зоны ее вклад в загрязнение местности является незначительным.



Было также оценено содержание радионуклидов топливной компоненты выброса в других объектах 30-километровой зоны и за ее пределами (таблица).

Абсолютное и относительное распределение активности (запаса) радионуклидов топливной компоненты чернобыльских радиоактивных выпадений за пределами промплощадки ЧАЭС по состоянию на 2000 г.

Объект	Запас радионуклидов, Бк		Соотношение запаса радионуклидов к их наработке в реакторе, %	
	^{90}Sr	^{238}Pu	^{90}Sr	^{238}Pu
Почвы 30-километровой зоны ЧАЭС Украины	$7,7 \cdot 10^{14}$	$7,2 \cdot 10^{12}$	0,45	0,52
Донные отложения пруда-охладителя ЧАЭС	$2,4 \cdot 10^{13}$	$2,4 \cdot 10^{11}$	0,01	0,02
Вынос радионуклидов р. Припять за 14 лет	$1,2 \cdot 10^{14}$	-	0,07	-
Все пункты временной локализации радиоактивных отходов в 30-километровой зоне и пункт захоронения радиоактивных отходов «Буряковка»	$5,0 \cdot 10^{14}$	$4,5 \cdot 10^{12}$	0,30	0,33
Почвы зоны отчуждения Беларуси	$6,0 \cdot 10^{14}$	$3,0 \cdot 10^{12}$	0,36	0,22
Почвы за пределами 30-километровой зоны ЧАЭС	$5,4 \cdot 10^{14}$	$4,3 \cdot 10^{12}$	0,32	0,31
(в том числе Украина)	$1,3 \cdot 10^{14}$	$1,1 \cdot 10^{12}$	0,08	0,08
Конденсационная составляющая радиоактивных выпадений	$4,5 \cdot 10^{14}$	-	0,27	-
(в том числе Украина)	$8,4 \cdot 10^{13}$	-	0,05	-
Всего	$3,0 \cdot 10^{15}$	$2,0 \cdot 10^{13}$	1,8	1,4
(в том числе Украина)	$1,6 \cdot 10^{15}$	$1,3 \cdot 10^{13}$	0,96	0,97

Интегральный запас радионуклидов топливной компоненты чернобыльских радиоактивных выпадений за пределами промплощадки ЧАЭС по состоянию на 2000 г. составил (см. таблицу): ^{90}Sr – $3,0 \cdot 10^{15}$ Бк, ^{154}Eu – $3,8 \cdot 10^{13}$ Бк, ^{238}Pu – $2,0 \cdot 10^{13}$ Бк и $^{239+240}\text{Pu}$ – $4,3 \cdot 10^{13}$ Бк, что с

учетом радиоактивного распада соответствует 1,4 - 1,8 % (для Украины около 1 %) от наработки этих радионуклидов в реакторе [15]. На основании полученных данных уточнена величина относительного выброса радионуклидов в составе топливных частиц во время аварии на ЧАЭС за пределы промплощадки ЧАЭС. Она составила $1,5 \pm 0,5$ % от наработки радионуклидов в реакторе и в два раза ниже ранее приводимых оценок. Две трети радионуклидов в составе матрицы топливных частиц выпало на территории Украины.

Таким образом, существовавшие до этого оценки содержания радионуклидов топливной компоненты радиоактивных выпадений в почве и самого их выброса из реактора во время аварии были значительно завышены.

Для более корректного прогнозирования и оценки радиологической ситуации в ближней зоне аварии во всех почвенных пробах, отобранных при картировании зоны отчуждения по ^{90}Sr и ТУЭ, были определены основные агрохимические показатели. Около 70 % территории зоны отчуждения приходится на дерново-подзолистые почвы, 23 % - на слабо задернованные пески с низким содержанием гумуса, 4,5 % - на торфяные и около 2,5 % занимают луговые и серые лесные почвы. На основании экспериментально полученных агрохимических характеристик почв в точках пробоотбора с известной координатой привязкой в среде MapInfo 4.0 для каждого почвенного контура были оценены средние показатели, определяющие скорость растворения топливных частиц и переход радионуклидов в растения, а также построены соответствующие карты: рН_{H2O}, содержания обменного кальция, подвижного калия и т.д.

Кинетика растворения топливных частиц в почвах в естественных условиях и модельных средах

На основании измерений доли обменного чернобыльского ^{90}Sr и внесенного в почву в водорастворимой форме ^{85}Sr был разработан метод оценки степени растворения топливных частиц в почве и динамики перехода радионуклидов в мобильные формы в естественных условиях [10, 16, 19]. Полученные с помощью данного метода результаты хорошо согласуются с прямыми автораддиографическими измерениями активности ^{90}Sr в составе топливных частиц и радиохимическим определением его содержания в почвенных образцах. С помощью бета-спектрометрических измерений почвенных образцов, отобранных на различных направлениях и удалении от ЧАЭС было установлено, что до настоящего времени до 20 % активности ^{90}Sr на узком западном следе и до 10 % в других направлениях не переходит в раствор даже при нагревании почвы в концентрированной азотной кислоте в течение нескольких часов в соответствии со стандартной радиохимической методикой вскрытия почвенных проб. По мере удаления от ЧАЭС доля активности ^{90}Sr , содержащаяся в химически сверх устойчивых частицах монотонно уменьшается (на удалении 10 – 15 км составляет всего единицы процентов от валовой активности). Данные топливные частицы не будут растворяться в естественных условиях в обозримом будущем.

Полученные данные показали более высокую химическую устойчивость топливных частиц в почве на узком западном следе радиоактивных выпадений, образовавшемся в результате первого выброса во время аварии на ЧАЭС, по сравнению с частицами, выброшенными в других направлениях и образовавшимися в результате окисления ядерного топлива. Это указывает на то, что топливные частицы (отдельные зерна, кристаллиты окиси урана) с медианным диаметром порядка 4 – 6 мкм и их конгломераты можно условно разбить на три типа по скорости их растворения в естественных условиях [10, 12, 19]:

химически сверхустойчивые частицы (предположительно U-Zr-O, образовавшиеся в результате высокотемпературного плавления конструкционного циркония оболочек твэлов в UO_2 [17]). Эти частицы образовывались в первый момент аварии 26 апреля 1986 г. и преимущественно выпали на узком западном следе;

не окисленные химически устойчивые топливные частицы (UO_2) первого выброса (26 апреля 1986 г.), образовавшиеся в результате механического разрушения ядерного топ-

лива. Эти частицы выпали также преимущественно на узком западном следе. Утечка продуктов деления из данного типа частиц во время аварии была минимальной, о чем свидетельствует постоянство соотношения в них продуктов деления;

химически слабо устойчивые частицы (UO_{2+x}), образовавшиеся в результате окисления ядерного топлива в период 26 апреля – 5 мая 1986 г. Эти частицы преимущественно выпали на северном и южном топливном следе.

В реальных условиях в разных точках 30-километровой зоны ЧАЭС в первоначальных выпадениях мы имеем суперпозицию всех трех типов топливных частиц с различным их долевым вкладом в зависимости от направления и удаления от ЧАЭС. Разделение топливных частиц на три типа является условным, так как нет четких границ между разными типами частиц (степень окисления ядерного топлива и содержание в нем циркония (а также объемное распределение) могут изменяться в широком диапазоне). Анализ влияния физико-химических свойств почвы на растворение топливных частиц показывает, что скорость растворения однотипных частиц в наибольшей степени коррелирует с кислотностью водной вытяжки $\text{pH}_{\text{H}_2\text{O}}$. В наибольшей степени частицы сохранились в нейтральных почвах ($\text{pH}_{\text{H}_2\text{O}} > 6$) независимо от направления и расстояния от ЧАЭС. Так, даже на удалении на юг более 30 км в окультуренных нейтральных почвах ($\text{pH}_{\text{H}_2\text{O}}$ около 7), используемых в сельскохозяйственном производстве после аварии, в 1998 г. основная доля активности ^{90}Sr находилась в немобильной форме в составе топливных частиц (порядка 50–70 %). До настоящего времени в донных отложениях пруда-охладителя ($\text{pH}_{\text{H}_2\text{O}}$ около 7) более 90 % активности ^{90}Sr также содержится в составе топливных частиц, о чем свидетельствуют автордиографические и радиохимические анализы образцов [22]. В многочисленных пунктах временной локализации радиоактивных отходов менее половины активности радионуклидов перешла из матрицы топливных частиц в почву за все послеаварийные годы [18, 20].

Экспериментально показано, что скорость растворения топливных частиц в естественных условиях определяется как свойствами самих частиц – степенью окисления матрицы, так и кислотностью среды. Это же подтвердили модельные эксперименты по изучению кинетики растворения частиц облученного чернобыльского топлива разной степени окисления в растворах с pH от 3 до 9 [1, 12]. Наименьшая скорость растворения топливных частиц наблюдалась в нейтральной среде. Неокисленные топливные частицы в нейтральной среде (pH около 7) практически не растворяются. Окисленные при температуре 670 К на воздухе топливные частицы в течение 1–21 ч имеют на порядок более высокие значения постоянных трансформации топливных частиц в растворах с $\text{pH} = 4\text{--}9$ по сравнению с не окисленными топливными частицами. Время окисления ядерного топлива в течение 1–21 ч не оказывает существенного влияния на скорость растворения топливных частиц. В результате проделанной работы были получены параметры растворения топливных частиц в зависимости от их генезиса и кислотности среды [1, 12]. Это позволило на основании данных о доле активности ^{90}Sr в составе топливных частиц спустя 9 – 17 лет после их нахождения в почве, кислотности среды, постоянных трансформации частиц разной степени окисления оценить долю UO_2 и UO_{2+x} частиц в первоначальных радиоактивных выпадениях в зависимости от направления выброса (рис. 2). Как и предполагалось, в среднем, на долю UO_2 частиц приходилось около 60 ± 30 % активности ^{90}Sr на узком западном следе, образовавшемся в результате первоначального выброса 26 апреля 1986 г. Северный, восточный и южный следы радиоактивных выпадений, сформировавшиеся позднее, представлены в основном UO_{2+x} частицами, образовавшимися в результате окисления ядерного топлива (на долю UO_2 частиц здесь приходилось только 19 ± 10 %, 23 ± 10 % и 21 ± 17 % активности ^{90}Sr соответственно).

В результате проделанной работы получены параметры растворения топливных частиц в зависимости от их генезиса и кислотности среды [10, 12, 16]. Как было показано раньше [10], процесс растворения топливных горячих частиц в почве удовлетворительно может быть описан уравнением кинетики первого порядка (без учета реального дисперсного состава топливных частиц)

$$dA(t)/dt = -(k+\lambda) \cdot A(t), \quad \Delta FP = A(t)/(A_0 \cdot \exp(-\lambda \cdot t)) = \exp(-k \cdot t),$$

где $A(t)$ и A_0 - активность UO_2 и UO_{2+x} частиц в момент времени t после выпадений и в начальный момент соответственно, с учетом радиоактивного распада (Бк); k и λ – постоянные трансформации топливных частиц и радиоактивного распада радионуклида (год^{-1}); t - продолжительность нахождения топливных частиц в почве после аварии, лет.

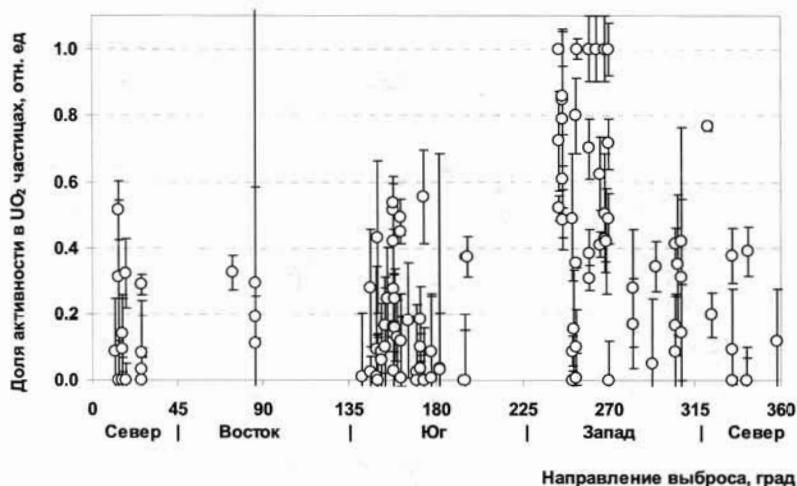


Рис. 2. Доля первоначальной активности ^{90}Sr в составе UO_2 частиц (по отношению к суммарной активности в UO_2 и UO_{2+x} частицах) в ближней зоне аварии в зависимости от направления выброса.

На основании экспериментальных данных доли активности в составе топливных частиц (ΔFP) были получены зависимости постоянных трансформации топливных частиц (k) от кислотности почвы pH_{H_2O} :

для западного следа черновыльских радиоактивных выпадений

$$k = 0,6 \cdot 10^{(-0,15 \cdot pH)} \text{ at } pH_{H_2O} < 7,0, \\ k = 0,05 \text{ at } 7,5 > pH_{H_2O} > 7,0;$$

для всей ближней зоны аварии за пределами западного следа

$$k = 40 \cdot 10^{(-0,45 \cdot pH)} \text{ at } pH_{H_2O} < 6,5, \\ k = 0,05 \text{ at } 7,5 > pH_{H_2O} > 6,5.$$

Период полураспада топливных частиц с увеличением кислотности почвы (pH_{H_2O} с 7 до 4) изменяется с 14 до 1 года. Описание с помощью полученных нами параметров динамики перехода ^{90}Sr из матрицы топливных частиц в почву [1, 16, 19] хорошо согласуется с литературными данными (рис. 3) о формах его нахождения в почве на топливных следах черновыльского выброса в различное время после аварии.

Полученные зависимости постоянных трансформации черновыльских топливных частиц разного генезиса от кислотности почв позволили спрогнозировать переход радионуклидов из матрицы топливных частиц в почвенный раствор и вовлечение в процессы миграции, а также корневого поступления в растения. В различных местах 30-километровой зоны скорость растворения топливных частиц в почве будет разной и это надо учитывать при оценке и прогнозе радиологической ситуации (см. рис. 3.). Так, на 16 % территории 30-километровой зоны период полураспада топливных частиц превышает 10 лет; на 15 % территории составляет 7 – 10 лет; на 25 % – 4,6 – 7 лет; на 20 % – 3,5 – 4,6 лет и на 24 % территории - меньше 2 лет. На основе полученной оцифрованной карты постоянных трансформации

топливных частиц (рис. 4) была сделана пространственная оценка перехода радионуклидов из матрицы топливных частиц в почву в естественных условиях через 5, 10, 15, 20 и 30 лет после аварии. Высокие скорости растворения топливных частиц на большей площади 30-километровой зоны связаны с достаточно высокой кислотностью почв, так как эти земли после аварии были выведены из сельскохозяйственного производства, и длительное время на них не проводилось известкование.

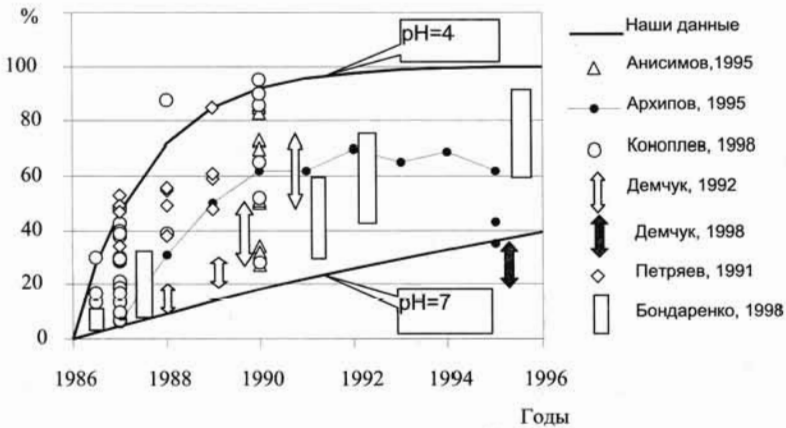


Рис. 3. Относительная динамика выщелачивания ⁹⁰Sr из топливных частиц в почву, полученная в наших исследованиях $(1-\Delta FP) = 1-\exp(-kt)$ [16] и литературные данные.

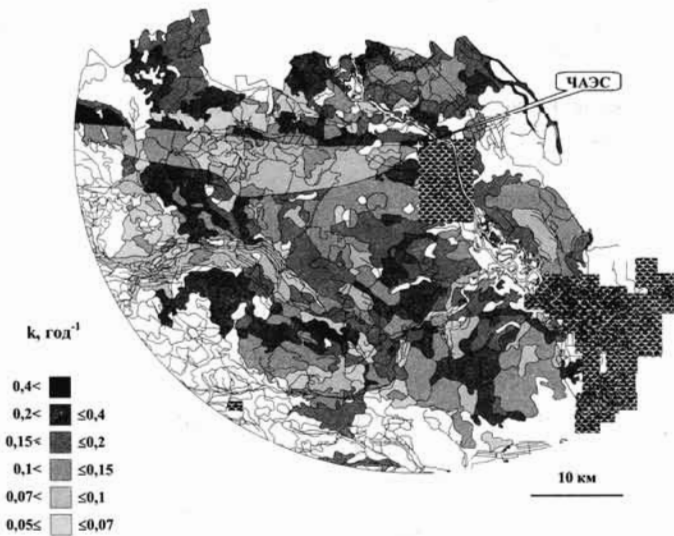


Рис. 4. Карта-схема постоянных трансформации топливных частиц (k , год⁻¹) в почвах 30-километровой зоны ЧАЭС.

Динамика загрязнения растительности на топливных следах радиоактивных выпадений

Экспериментальные измерения вертикального распределения активности радионуклидов и их форм нахождения в почвах спустя 9–15 лет после аварии показали очень низкую скорость вертикального переноса топливных частиц для контрастных почвенных условий

ближней зоны аварии. На ненарушенных землях практически все топливные частицы независимо от типа почвы и водного режима содержались в верхнем 4-сантиметровом слое почвы. Скорость миграции радионуклидов непосредственно в составе матрицы топливных частиц соизмерима или значительно ниже скорости миграции ^{137}Cs , и тем более ^{90}Sr , на конденсационных следах радиоактивных выпадений. Все это указывает на то, что топливные частицы заглубляются в почву, видимо, в основном за счет механического перемешивания верхнего слоя грунта. Следовательно, на топливных следах радиоактивных выпадений будет наблюдаться замедление вертикальной миграции радионуклидов в почве, по сравнению с конденсационными выпадениями, за счет локализации радионуклидов в матрице топливных частиц. Наиболее сильно это будет проявляться для ^{90}Sr , как наиболее подвижного радионуклида, в нейтральных дерново-подзолистых почвах с низким содержанием гумуса ($< 1\%$) и слабогумусированных песках. Если на конденсационных следах эффективный период полураспада от ^{90}Sr пахотного слоя слабогумусированных песков и дерново-подзолистой песчаной почвы с низким содержанием гумуса составляет 2–5 лет, то для топливных частиц в нейтральных почвах ($\text{pH} = 6\text{--}7$) он лимитирован постоянной трансформацией топливных частиц и составит 7–10 лет и 9–12 лет соответственно.

Топливные частицы являются своеобразной линией задержки вовлечения радионуклидов в процессы миграции в почве и перехода в корневую систему растений. Это приводит как к принципиально иным уровням, так и к иной динамике содержания радионуклидов в биологически доступной форме в корнеобитаемом слое почвы и в растительности по сравнению с конденсационными выпадениями (рис. 5) [5, 10, 16].

Динамика загрязнения ^{90}Sr растительности в первую очередь определяется кинетикой растворения топливных частиц и обусловленным этим изменением содержания мобильного радиостронция в корнеобитаемом слое почвы. В зависимости от скорости растворения топливных частиц корневое загрязнение ^{90}Sr растительности в первые годы растет и достигает максимума только на 2–20-й год. Наиболее поздно достигает максимума загрязнение растительности ^{90}Sr на нейтральных почвах (через 20–25 лет), при этом уровень загрязнения приблизительно в 2,5 раза ниже по сравнению с максимальным уровнем на конденсационных следах выпадений (в первые годы после выпадений различия достигают 10 раз). На дерново-подзолистых песчаных почвах с низким содержанием гумуса и негумусированных песках на топливных следах радиоактивных выпадений максимум корневого загрязнения растительности приходится на 3–10-й год. После достижения максимума загрязнение растительности на нейтральных почвах будет уменьшаться более медленно за счет постоянной подпитки из топливных частиц по сравнению с конденсационными выпадениями ^{90}Sr и при этом значительно превышать его.

Учитывая динамику растворения топливных частиц в почве, можно сделать вывод, что радиологическая ситуация на топливных следах радиоактивных выпадений в настоящее время стабилизировалась. В составе матрицы топливных частиц (в малодоступной форме) находится менее 50 % активности радионуклидов от их общего запаса в почве. Учитывая радиоактивный распад ^{90}Sr , можно утверждать, что увеличение его абсолютного содержания в мобильной форме в нейтральных почвах будет наблюдаться в течение еще 10–20 лет, однако его максимальное содержание не превысит более чем на 20 % существующий в настоящее время уровень. Для кислых же почв содержание ^{90}Sr в мобильном состоянии уже достигло своего максимума и со временем, как и обусловленное этим загрязнение растительности, будет уменьшаться.

Для конденсационной формы выпадений ^{137}Cs наблюдается резкое уменьшение со временем корневого загрязнения растительности. Для топливной же его составляющей в течение первых лет возможно как уменьшение, так и увеличение загрязнения растительности в зависимости от скорости растворения топливных частиц и доли конденсационного ^{137}Cs . На небольших расстояниях от ЧАЭС, где доля выпавшего в конденсационной форме радиоцезия минимальна, корневое загрязнение ^{137}Cs растительности увеличивалось в течение первых 2–

6 лет после аварии. Спустя 10 лет после аварии корневое загрязнение растительности ^{137}Cs на пахотных угодьях будет уменьшаться и слабо отличаться для топливной и конденсационной формы радиоактивных выпадений.

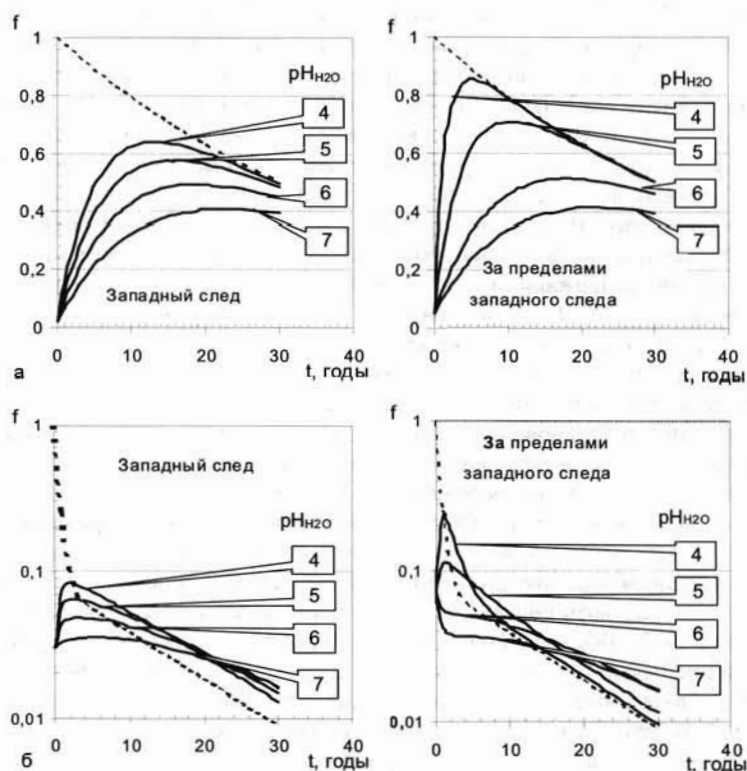


Рис. 5. Относительная динамика корневое загрязнение ^{90}Sr (а) и ^{137}Cs (б) растительности (f) на конденсационных (пунктирная линия) и топливных (сплошная линия) следах радиоактивных выпадений с низкой скоростью миграции радионуклидов из пахотного слоя.

На топливных следах радиоактивных выпадений вынос радионуклидов растительностью и обусловленные этим дозовые нагрузки за счет потребления сельскохозяйственной продукции будут ниже по сравнению с конденсационными следами радиоактивных выпадений. На конденсационных следах радиоактивных выпадений менее чем за четыре первых года в растительность переходит около 50 % активности от общего возможного выноса ^{137}Cs (за 10 лет 70 % и за 30 лет около 90 %). На топливных же следах радиоактивных выпадений относительный вынос растительностью ^{137}Cs и ^{90}Sr из нейтральных почв составляет только ~25 и 55 % и ~5 и 23 % за первые 10 и 30 лет соответственно. Интегральный вынос растительностью ^{90}Sr на топливных следах радиоактивных выпадений с минимальной скоростью растворения топливных частиц будет до 2,5 раз ниже по сравнению с конденсационными следами.

Для определения распределения всасывающей способности корневой системы растений в зоне отчуждения на трех экспериментальных площадках с разными почвенными условиями и растительностью на фоне чернобыльских радионуклидов на разную глубину были инжестированы ^{134}Cs и ^{85}Sr . На основании данных о загрязнении радионуклидами растительности были рассчитаны коэффициенты перехода ^{85}Sr и ^{134}Cs с различной глубины, а также чернобыльского ^{90}Sr , ^{137}Cs и обменного кальция из почвы в разные виды растений на экспе-

риментальных площадках. В разных почвенных условиях для различных растений функция выноса радионуклидов корневой системой растений и эффективная толщина корнеобитаемого слоя почвы может сильно отличаться. Максимум выноса радионуклидов корневой системой растений может быть как из поверхностного слоя почвы, так и на некоторой глубине. Поэтому вертикальная миграция в почве радиостронция в мобильной форме даже на конденсационных следах радиоактивных выпадений может приводить как к уменьшению, так и к увеличению загрязнения растительности во времени.

С помощью разработанной в УНИИСХР модифицированной конвективно-диффузионной модели MATPASS и полученных параметров распределения всасывающей способности корневой системы растений была рассчитана динамика загрязнения луговой растительности радиостронцием на топливных и конденсационных следах радиоактивных выпадений.

На основании полученных данных о плотности загрязнения радионуклидами территории 30-километровой зоны, постоянных трансформации топливных частиц в почвах, основных агрохимических показателей почв ближней зоны и установленных закономерностей перехода радионуклидов в растительность сделана оценка возможности сельскохозяйственного использования зоны отчуждения. Лимитирующим фактором при рассмотрении различных сценариев использования 30-километровой зоны является загрязнение продукции ^{90}Sr , а не ^{137}Cs , или внешнее облучение персонала. Оценки загрязнения лугопастбищной растительности на 10-й и 20-й год после аварии практически не отличаются, что связано с компенсацией уменьшения содержания ^{90}Sr за счет его радиоактивного распада подпиткой из топливных частиц. В настоящее время и в обозримом будущем могут использоваться только отдельные участки периферии юго-западной части 30-километровой зоны. Здесь может выпасаться молодняк крупного рогатого скота. Однако эти луга не покрывают сплошной территории, оторваны друг от друга, и с учетом социального аспекта их использование вряд ли целесообразно в настоящее время.

Другим вариантом возможного использования территории зоны отчуждения является заготовка древесины. Проведенная оценка показала, что за пределами наиболее загрязненной 10-километровой зоны ЧАЭС загрязнение древесины ^{90}Sr и, тем более, ^{137}Cs будет соответствовать существующим нормативам.

Полученные данные о плотности загрязнения ближней зоны аварии на ЧАЭС радионуклидами, выпавшими в составе топливных частиц, пространственном распределении постоянных трансформации топливных частиц и основных агрохимических характеристик почв, наряду со знанием основных закономерностей миграции радионуклидов, являются базой для оценки и прогнозирования изменения радиологической ситуации в 30-километровой зоне. Наряду с разработанными подходами по радиологической и экономической оптимизации контрмер они необходимы при рассмотрении возможности реабилитации зоны отчуждения и обязательного отселения.

В связи с растворением топливных частиц и переходом ^{90}Sr в мобильные формы в районах, примыкающих к зоне отчуждения, наблюдалось увеличение загрязнения ^{90}Sr сельскохозяйственной продукции. С введением в Украине в 1997 и 2006 г. новых допустимых уровней (ДУ-97, 2006) загрязнения ^{90}Sr продуктов питания (для хлебопродуктов – 5 Бк/кг, для пищевого зерна, овощей, мяса и молока – 20 Бк/кг) вновь возникла острая необходимость в сертификации сельскохозяйственной продукции, так как малые уровни загрязнения ^{90}Sr растительности в первые годы после аварии, обусловленные топливной компонентой радиоактивных выпадений, привели к ослаблению или полному прекращению подобного контроля. Исследования загрязнения ^{90}Sr сельскохозяйственной продукции в 1997–2009 гг. в наиболее критических районах Киевской, Черниговской и Житомирской областей Украины, примыкающих к зоне отчуждения, показали, что для молока и овощей не наблюдается превышения ДУ-97, 2006. Наиболее критическими с точки зрения содержания ^{90}Sr в настоящее время являются зерновые культуры в случае их использования непосредственно для производства

хлебопродуктов [23]. В 2009 г. удельная активность ^{90}Sr в зерне в 3-й зоне Иванковского района составляла 20 – 70 Бк/кг.

Вторичный переноса радионуклидов и ингаляционная опасность поступления топливных частиц в организм человека

Экспериментально установлено, что уже спустя два года после аварии не наблюдалось значимых различий во вторичном ветровом переносе радионуклидов, выпавших в составе топливных частиц и конденсационной форме, что обусловлено прочной фиксацией топливных частиц частицами почвы [24]. При нормальных метеоусловиях ветровой перенос радионуклидов даже при проведении сельскохозяйственных работ спустя несколько лет после аварии составляет десятые-сотые доли процента в год от запаса радионуклидов на единице площади и не может оказывать сколь-нибудь значимого влияния на вторичное радиоактивное загрязнение территории и дезактивированных населенных пунктов. Ветровой подъем усиливается при выполнении агротехнических мероприятий, особенно при культивации почвы, однако насыщение потока происходит на расстоянии 50 - 100 м от края поля. При лесных пожарах на загрязненных территориях концентрация радионуклидов в приземном слое воздуха может возрастать до 10^3 раз (с максимумом на удалении в несколько километров от очага огня), однако это не приводит к значительному перераспределению активности и увеличению радиологической опасности за пределами 30-километровой зоны ЧАЭС [25, 30, 31].

Для корректной оценки дозовых нагрузок при ингаляционном поступлении топливных частиц в организм человека необходимо знание их дисперсного состава и класса растворимости. В модельных экспериментах с имитатором легочной жидкости показано, что радиоактивные черномыльские аэрозоли на топливных следах радиоактивных выпадений могут быть классифицированы как нерастворимые при рассмотрении их ингаляционного поступления в дыхательную систему человека [26], поскольку доля компоненты, имеющей период полураспада более 100 сут, составляет для различных радионуклидов 83,3 – 99,4 %.

Для различных видов тракторов и комбайнов, а также широкого набора агротехнических работ была измерена концентрация и дисперсный состав радиоактивных аэрозолей непосредственно на рабочих местах механизаторов, являющихся критической группой населения [27, 28]. Показано, что даже для этой критической группы населения на территориях, загрязненных в результате Чернобыльской аварии топливными частицами, эффективные дозы от ингаляции радионуклидов (^{137}Cs , $^{238-240}\text{Pu}$, ^{241}Am) как минимум на порядок величины ниже дозовых нагрузок, обусловленных внешним облучением от ^{137}Cs в течение года.

Поведение радионуклидов в составе топливных частиц в организме сельскохозяйственных животных

Значимость перорального пути поступления радиоактивных частиц в организм сельскохозяйственных животных представляется весьма высокой при выпасе скота на открытых пастбищах после аэрозольного загрязнения растительности частицами в результате радиационных аварий и вследствие вторичного их подъема. В острый период Чернобыльской аварии осевшие на подстилающую поверхность топливные частицы попадали в организм выпасавшихся сельскохозяйственных животных вместе с кормом, дерниной и заглатываемой почвой. С целью изучения поведения топливных частиц при их пероральном поступлении в организм крупного рогатого скота был проведен эксперимент по разовой затравке коров модельными топливными частицами, сходными по характеристикам с образовавшимися в результате аварии на ЧАЭС [29].

Установлено, что всасывание в кровь и выведение из организма ^{90}Sr и ^{137}Cs при поступлении в организм животных в составе топливных частиц принципиально отличаются от поведения при поступлении радионуклидов в растворимой форме. Коэффициент всасывания ^{137}Cs в организм крупного рогатого скота из топливных частиц (0,8 – 1,4 %) значительно ни-

же по сравнению с его растворимой формой (50 – 75 %). Пик концентрации ^{137}Cs в молоке наблюдается через 44 – 68 ч после поступления топливных частиц в организм крупного рогатого скота. После этого содержание радионуклида уменьшается по экспоненте с периодом полууменьшения 58 – 69 ч. Всего за 9 сут после поступления топливных частиц с молоком выводилось 0,11 – 0,17 % ^{137}Cs от введенного в организм количества, что на два порядка величины меньше по сравнению с растворимой формой ^{137}Cs . Динамика прохождения топливных частиц в ЖКТ совпадает с поведением корма. Крупные топливные частицы размером более 50 мкм могут длительное время прочно фиксироваться на стенках ЖКТ, приводя к локальному переоблучению тканей.

Заключение

В статье обобщены основные результаты работы по изучению свойств и поведения черновобильских горячих частиц в окружающей среде, а также рассмотрен весь комплекс главных факторов, определяющих радиологическую обстановку: загрязнение территории топливными частицами, их растворение и переход радионуклидов в мобильные формы, миграция в почве и загрязнение растительности, вторичный ветровой перенос, поступление в организм человека и сельскохозяйственных животных.

Каждая ядерная авария сама по себе уникальна по природе выброса и осаждения радиоактивных веществ, но несмотря на это полученные из опыта Чернобыльской аварии результаты могут быть использованы для оценки и прогноза радиозэкологической обстановки в случае гипотетических ядерных аварий с выбросом частиц облученного ядерного топлива. Выявленные закономерности поведения топливных частиц в окружающей среде и оценка загрязнения ими ближней зоны Чернобыльской аварии являются основой для долговременного прогнозирования изменения радиологической обстановки в зоне отчуждения и рассмотрения возможности ее реабилитации.

Результаты проведенных исследований, базирующиеся на системном и комплексном подходе к решаемой проблеме, позволили сделать ряд выводов, которые необходимы для определения радиологической значимости топливной компоненты радиоактивных выпадений. Знание физико-химических форм радиоактивных выпадений в случае радиационных аварий является крайне необходимым для правильной оценки тяжести сложившейся радиологической ситуации, прогнозирования ее долговременного изменения в будущем, а также принятия адекватных решений и контрмер.

По результатам работы в ближней зоне аварии на ЧАЭС для широкого круга специалистов, интересующихся проблемами последствий Чернобыльской катастрофы, был создан компакт-диск «Загрязнение 30-километровой зоны». Диск содержит (русская и английская версии): комплект карт радиоактивного загрязнения территории и свойств почвы (растровые изображения (*.jpg) и тематические слои в MapInfo (*.wor)); базы данных экспериментальной информации радиоактивного загрязнения территории «Проба» и ядерно-физических характеристик «горячих частиц» (*.mdb); основные публикации УкрНИИСХР (*.pdf), запасы радионуклидов в 30-километровой зоне ЧАЭС и т.д. Просмотр компакт-диска осуществляется Microsoft Internet Explorer версии 4.0 и выше.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Kashparov V.A.* Hot Particles at Chernobyl // *Environ. Sci. and Pollut. Res.* – 2003. – Vol. 10. – Special Issue № 1. – P. 21–30.
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. – Vol. 20 (6). – P. 415–420.
3. *Salbu B., Krekling T., Oughton D.H. et al.* Hot Particles in Accidental Releases From Chernobyl and Windscale Nuclear Installations // *Analyst.* – 1994. – Vol. 119 (1). – P. 125–130.
4. *Baryakhtar V.G.* Chernobyl Catastrophe. – Kyiv: Export Publishing House, 1997. – 572 p.

5. *Кашипаров В.О.* Формування і динаміка радіоактивного забруднення навколишнього середовища під час аварії на Чорнобильській АЕС та в післяаварійний період // Чорнобиль. Зона відчуження: 36. наук. праць НАН України. – К.: Наук. думка, 2001. – С. 11–46.
6. *Kashparov V.A., Lundin S.M., Khomutinin Yu.V. et al.* Soil contamination with ^{90}Sr in the near zone of the Chernobyl accident // J. Environm. Radioact. – 2001. – Vol. 56 (3). – P. 285–298.
7. *Pollanen R., Valkama I., Toivonen H.* Transport of radioactive particles from the Chernobyl accident // Atmospheric Environment. – 1997. – Vol. 31 (21). – P. 3575–3590.
8. *Кашипаров В.А., Иванов Ю.А., Хомутинин Ю.В., Пазухин Э.М.* Оценка эффективной температуры и времени отжига топливных частиц, выброшенных из Чернобыльского реактора во время аварии // Радиохимия. – 1996. – Т. 38 (1). – С. 91–95.
9. *Кашипаров В.А., Иванов Ю.А., Процак В.П. и др.* Оценка максимальной температуры и времени отжига топливных частиц во время аварии на ЧАЭС. Радиохимия. – 1997. – Т. 39 (1). – С. 66–70.
10. *Kashparov V.A., Oughton D.H., Zvarich S.I. et al.* Kinetics of fuel particle weathering and ^{90}Sr mobility in the Chernobyl 30-km exclusion zone // Health Phys. – 1999. – Vol. 76 (3). – P. 251–259.
11. *Kashparov V.A., Ivanov Yu.A., Zvarich S.I. et al.* Formation of Hot Particles During the Chernobyl Nuclear Power Plant Accident // Nuclear Technology. – 1996. – Vol. 114 (1). – P. 246–253.
12. *Kashparov V.A., Protsak V.P., Ahamdach N. et al.* Dissolution kinetics of particles of irradiated Chernobyl nuclear fuel: influence of pH and oxidation state on the release of radionuclides in contaminated soil of Chernobyl // J. Nucl. Materials. – 2000. – Vol. 279. – P. 225–233.
13. *Kashparov V.A., Yoschenko V.I., Levchuk S.E. et al.* Application of the method of repeated mixing to non-uniformly contaminated bulky samples // J. Radioanal. Nucl. Chem. – 2000. – Vol. 246 (1). – P. 165.
14. *Хомутинин Ю.В., Кашипаров В.А., Жебровская Е.И.* Оптимизация отбора и измерений проб при радиоэкологическом мониторинге. – К.: ВІПОЛ, 2001. – 160 с.
15. *Kashparov V.A., Lundin S.M., Zvarich S.I. et al.* Territory contamination with the radionuclides representing the fuel component of Chernobyl fallout // Sci. Total Environ. – 2003. – Vol. 317. Is. 1-3. – P. 105–119.
16. *Кашипаров В.А., Зварич С.И., Процак В.П., Журба М.А.* Кинетика растворения чернобыльских топливных частиц. II. Растворение топливных частиц в почве в естественных условиях // Радиохимия. – 2000. – Т. 42 (6). – С. 542–549.
17. *Ahamdach N.* The Chernobyl pilot site project: Isolation and microscopic characterisation of fuel particles // Radioprotection-Colloques. – 2002. – Vol. 37. – P. 1055–1060.
18. *Bugai D., Kashparov V., Dewiére L. et al.* Characterization of subsurface geometry and radioactivity distribution in the trench containing Chernobyl clean-up wastes // Environ. Geol. – 2005. – Vol. 47. – P. 869–881.
19. *Kashparov V.A., Ahamdach N., Zvarich S.I. et al.* Kinetics of dissolution of Chernobyl fuel particles in soil in natural conditions // J. Environ. Radioact. – 2004. – Vol. 72. Is. 3. – P. 335–353.
20. *Dewiere L., Bugai D., Grenier C. et al.* ^{90}Sr migration to the geo-sphere from a waste burial in the Chernobyl exclusion zone // J. Environ. Radioact. – 2004. – Vol. 74. Is. 1-3. – P. 139–150.
21. *Кашипаров В.А., Лундин С.М., Зварич С.И. и др.* Загрязнение территории радионуклидами топливной компоненты чернобыльских радиоактивных выпадений // Радиохимия. – 2003. – Т. 45 (2). – С. 173–183.
22. *Кашипаров В.О., Хомутинин Ю.В., Глуховський О.С. та ін.* Оцінка небезпечності вторинного вітрового переносу радіоактивних аерозолів після часткового осушення водойми-охолоджувача ЧАЕС // Бюлетень екологічного стану зони відчуження та безумовного (обов'язкового) відселення. – К.: Чорнобильінтерінформ. – Травень 2003. – № 1 (21). – С. 67–74.
23. *Кашипаров В.А., Лундин С.М., Левчук С.Е. и др.* Комплексний моніторинг забруднення сільськогосподарської продукції ^{90}Sr // Вісник аграрної науки. Спеціальний випуск. – Квітень 2001. – С. 38–43.
24. *Kashparov V.A., Protsak V.P., Ivanov Yu.A., Nicholson K.W.* Resuspension of Radionuclides and Contamination of Village Areas Around Chernobyl // J. Aerosol Science. – 1994. – Vol. 25 (5). – P. 755–761.
25. *Kashparov V.A., Lundin S.M., Kadygrib A.M. et al.* Forest fires in the territory contaminated as a result of the Chernobyl accident: radioactive aerosol resuspension and exposure of fire-fighters // J. Environ. Radioact. – 2000. – Vol. 51. – P. 281–298.

26. Кашпаров В.А., Йоценко В.И., Зварич С.И. и др. Оценка класса растворимости чернобыльских радиоактивных аэрозолей при ингаляции // Радиохимия. – 1997. – Т. 39 (1). – С. 77–79.
27. Kashparov V.A., Protsak V.P., Yoschenko V.I., Watterson J.D. Inhalation of Radionuclides During Agricultural Work in Areas Contaminated as a Result of the Chernobyl Reactor Accident // J. Aerosol Science. – 1994. – Vol. 25 (5). – P. 761–767.
28. Кашпаров В.А. Вторичный ветровой перенос радионуклидов и их ингаляционное поступление в организм человека при проведении сельскохозяйственных работ // Гигиена населенных мест. – 2000. – Т. 36 (1). – С. 124–135.
29. Кашпаров В.А., Лазарев Н.М., Йоценко В.И. Поведение топливных частиц в организме коров при их пероральном поступлении // Радиационная биология. Радиоэкология. – 1997. – Т. 37, № 5. – С. 804–811.
30. Yoschenko V.I., Kashparov V.A., Protsak V.P. et al. Resuspension and redistribution of radionuclides during grassland and forest fires in the Chernobyl exclusion zone: part I. Fire experiments // J. Environ. Radioact. – 2006. – Vol. 86 (2). – P. 143–163.
31. Yoschenko V.I., Kashparov V.A., Levchuk S.E. et al. Resuspension and redistribution of radionuclides during grassland and forest fires in the Chernobyl exclusion zone: part II. Modeling the transport process // J. Environ. Radioact. – 2006. – Vol. 87 (3). – P. 260–278.

РАДІОЛОГІЧНА ЗНАЧИМІСТЬ ПАЛИВНОЇ КОМПОНЕНТИ ЧОРНОБІЛЬСЬКИХ РАДІОАКТИВНИХ ВИПАДІНЬ

В. О. Кашпаров

Робота присвячена оцінці радіоекологічної значимості паливної компоненти чорнобильських радіоактивних випадів. Вивчено фізико-хімічні властивості чорнобильських гарячих частинок (радіонуклідний і дисперсний склад, глибина вигорання ядерного палива і фракціонування радіонуклідів, склад матриці частинок тощо), включаючи паливні частинки (ПЧ), які є специфічною формою чорнобильських радіоактивних випадів. Зроблено спробу реконструкції умов утворення паливних частинок під час аварії і показано, що окислення ядерного палива було одним із основних механізмів утворення ПЧ. На основі репрезентативного пробовідбору ґрунтових зразків уперше побудовано карти забруднення ближньої зони аварії в масштабі 1 : 200000 радіонуклідами, що випали в складі паливних частинок. Уточнено загальний вміст радіонуклідів у 30-сантиметровому ґрунтовому шарі 30-кілометрової зони ЧАЕС. Оцінено величину відносного викиду радіонуклідів у складі паливних частинок під час аварії за межі промплощадки ЧАЕС, що становила $1,5 \pm 0,5$ % від напрацювання радіонуклідів у реакторі, що у два рази менше від оцінок, які приводились раніш. Вивчено кінетику й отримано залежності швидкості розчинення паливних частинок як у природних умовах, так і в модельних середовищах. Зроблено прогноз динаміки забруднення рослинності на паливних слідах радіоактивних випадів. Розглянуто ресуспензію радіонуклідів у природних умовах, при техногенній дії на ґрунт і лісових пожежах, а також інгаляційну небезпеку надходження ПЧ в організм людини. Отримано параметри метаболізму радіонуклідів у складі ПЧ в організмах сільськогосподарських тварин.

Ключові слова: гарячі частинки, паливні частинки, ядерне паливо, Чорнобильська аварія, радіонукліди, навколишнє середовище, радіоактивне забруднення.

RADIOECOLOGICAL SIGNIFICANCE OF A FUEL COMPONENT OF CHERNOBYL RADIOACTIVE FALLOUT

V. A. Kashparov

Radioecological significance of a fuel component of Chernobyl radioactive fallout was evaluated. Physical-and-chemical properties of Chernobyl hot particles (radionuclide and dispersal composition, nuclear fuel burn-up and radionuclides fractionation, composition of particle matrix etc.) including the fuel particles as a specific form of Chernobyl radioactive fallout were studied. Attempt to reconstruct the conditions of the fuel particles (FP) formation during the accident was done. Maps of the near zone of Chernobyl accident contamination with radionuclides contained in deposited fuel particles were built. It was established that the total content of radionuclides in upper 30-cm soil layer of the 30-km Chernobyl zone. Estimated value of a relative release outside the ChNPP industrial site of the radionuclides in the fuel particles during the accident

is $1,5 \pm 0,5$ % of their inventory in the reactor, which is twice lower than the previous assessments. Kinetics of the fuel particles dissolution both in natural and model conditions were studied and the dissolution rates were obtained. Prognosis of the plants contamination dynamics along the fuel traces of radioactive fallout was done. Problems of the secondary radionuclides transfer in natural conditions, due to technogenic action to soil and forest fires, as well as a significance of the FP inhalation intake into human body are considered. Parameters of metabolism of FP-associated radionuclides in agricultural animals organism were obtained.

Keywords: hot particles, fuel particles, nuclear fuel, radioactive fallout, Chernobyl accident, radionuclide, environment, radioactive contamination.