

УДК 621.039.7

РАДИОАКТИВНЫЕ АЭРОЗОЛИ ПОМЕЩЕНИЯ 304/3 ОБЪЕКТА «УКРЫТИЕ» И ПЫЛЕГЕНЕРИРУЮЩАЯ СПОСОБНОСТЬ ЛАВООБРАЗНЫХ ТОПЛИВОСОДЕРЖАЩИХ МАТЕРИАЛОВ В НЕМ

© 2011 г. В. П. Бадовский, А. А. Ключников, А. Э. Меленевский, Ю. В. Морозов, И. А. Ушаков, В. Н. Щербин

Институт проблем безопасности АЭС НАН Украины, Чернобыль

В 2009 – 2011 гг. проведено изучение характеристик радиоактивных аэрозолей (РА) в содержащем лаваобразные топливосодержащие материалы (ЛТСМ) помещении 304/3 объекта «Укрытие». Исследовалось распределение объемных концентраций РА с долгоживущими альфа- и бета-излучателями, отдельно ^{137}Cs и ^{212}Pb по трем группам с аэродинамическими диаметрами $\geq 2,0$ мкм; $\geq 0,6$, но $\leq 2,0$ мкм и $\leq 0,6$ мкм. Установлено присутствие топливных РА и РА, содержавших только ^{137}Cs , со средними мало изменившимися за время исследования концентрациями $2 \cdot 10^{-3}$ и $2 \cdot 10^{-1}$ Бк/м³. Отношение концентрации ^{90}Sr и ^{137}Cs к концентрации альфа-излучателей превышает расчетное для топлива с 24-летней выдержкой в 1,5 и 3 раза соответственно. Предполагается, что компенсация оседающей части РА происходит за счет частиц с радионуклидами, отрывающимися от загрязненных ими поверхностей помещения. Для достижения измеренных концентраций топливных РА плотности поверхностного загрязнения этими частицами должны быть соизмеримы с плотностью радионуклидов в ЛТСМ. Приведены аргументы в пользу формирования данных частиц из отрывающихся фрагментов поверхности ЛТСМ. Выявлен прирост концентрации мелкодисперсной фракции топливных РА, составивший $(5 \pm 3,1) \cdot 10^{-5}$ Бк/м³ в год.

Ключевые слова: аэрозоли объекта «Укрытие», топливные аэрозоли, поверхность ЛТСМ, виртуальный импактор.

Введение

Изучение радиоактивных аэрозолей, начиная с первых часов аварии на ЧАЭС, в периоды становления объекта «Укрытие» и особой опасности ингаляционного пути облучения персонала обеспечивало специалистов всех уровней самой необходимой на ту пору информацией. В качестве энциклопедически всеобъемлющего обзора проведенных исследований аэрозолей того времени можно указать на работу [1]. В настоящее время в объекте «Укрытие» присутствуют в виде осевших частиц пыли радиоактивные топливные и конденсационные аэрозоли, образовавшиеся в процессе горения графита, окисления топлива, его частичного плавления и взаимодействия с окружающими материалами, а также новые аэрозоли, возникающие в процессе физико-химических превращений содержащих топливо материалов, особенно наименее стабильной их модификации - ЛТСМ. Согласно наиболее распространенной точке зрения разрушение лавы, вызванное внешними и внутренними процессами, должно носить постепенный характер, с образованием макроскопических фрагментов и радиоактивной пыли с медианным аэродинамическим диаметром (АД) в несколько микрометров [2]. Вместе с тем получила свое дальнейшее развитие и не подтвердившаяся до сих пор гипотеза быстрого развала ЛТСМ на альфа-активные частицы субмикронных размеров [3, 4].

Цель настоящей работы - проведение непосредственной экспериментальной проверки факта существования и интенсивности протекания процесса образования альфа-активного аэрозоля в достаточно изолированном помещении 304/3 объекта «Укрытие», содержащем большую площадь открытой поверхности ЛТСМ.

Оборудование и методика измерений

Описание использовавшейся методики отбора радиоактивных аэрозолей из воздуха помещения 304/3, виртуального импактора (ВИ) для выполнения этих отборов и комплекса для измерения активности осевших на фильтры ВИ радиоактивных аэрозолей, дано в рабо-

тах [5, 6]. Отбор проб в условиях очень высокой влажности воздуха производился с нагретыми примерно до 70 °С соплами и воздухоотводными трубками ВИ, что предотвращало конденсацию влаги на них, нарушавшую режим работы ВИ. Выполненные измерения дали возможность определить объемные концентрации радиоактивных аэрозолей для различавшихся по АД групп (группа 1 АД > 2,0 мкм; группа 2 АД > 0,6, но < 2,0 мкм и группа 3 АД < 0,6 мкм с подгруппой 32 АД < 0,4 мкм). Исследовались аэрозоли, содержавшие долгоживущие альфа- и бета-активные радионуклиды, радионуклид ^{137}Cs (^{137}Ba) как гамма-излучатель (далее в тексте дочерний радионуклид ^{137}Ba упоминаться не будет) и аэрозоли с дочерним продуктом ^{220}Rn ряда ^{212}Pb . Во время отбора проб измерялись влажность и температура в помещении отбора. В выбранные промежутки времени между отборами, в ближнем к устью скважины В.12.76 участке объема помещения 304/3, создавался интенсивный пылеподъем путем воздействия на поверхность находившихся там ЛТСМ потоком сжатого воздуха из дистанционно перемещавшегося сопла.

Полученные результаты и их обсуждение

На рис. 1 представлены результаты измерений, проведенных в период с сентября 2009 г. по февраль 2011 г. Вдоль горизонтальной оси указаны месяцы отборов проб. По вертикальной - объемные концентрации (Бк/м³) для измерявшихся групп размеров радиоактивных аэрозолей с долгоживущими альфа- и бета-активными радионуклидами, ^{212}Pb , а также влажность и температура воздуха в помещении отбора. Стрелками указано время проведенных пылеподъемов. Измеренные распределения по группам размеров объемных концентраций аэрозолей с долгоживущими альфа-излучателями содержали в группе 3 в доступных регистрации концентрациях только частицы с АД > 0,4 мкм. Аэрозоли с ^{212}Pb , наоборот, почти все регистрировались в подгруппе 32 (АД < 0,4 мкм), а аэрозоли с долгоживущими бета-активными радионуклидами и ^{137}Cs как гамма-излучателем были представлены, примерно поровну, в обеих подгруппах группы 3.

Из рис. 1 видно, что периоды сентябрь 2009 (2010) - февраль 2010 (2011) гг. отвечали в помещении 304/3 умеренной влажности (65–80) % и спадающей температуре воздуха, а май - июль 2010 г. - высокой влажности (95–100) % и температуре. Максимальная разность температур воздуха и пола достигалась к концу сентября (+10 °С). К январю она опускалась до 0 °С, а далее, вплоть до конца февраля, сохранялись инверсные значения ее (до -6 °С).

Начальные этапы обработки полученных данных аналогичны проводившимся в [6]. Не останавливаясь на деталях обработки, рассмотрим ее результаты.

Корреляционный анализ связи данных по измеренным в периоды 1 и 3 объемным концентрациям аэрозолей с соответствующими им значениями разностных температур воздуха и пола помещения отбора показал отсутствие корреляции между ними. Поэтому обнаруженные в периоды 1 и 3 вариации концентраций аэрозолей не могут быть объяснены наблюдавшимися в это время изменениями температуры.

Значения коэффициентов вариации для средних значений концентраций каждой из измеренных групп аэрозолей оказались больше значений этих коэффициентов для средних значений отношений измеренных концентраций для групп по размеру каждого из видов аэрозолей. Это свидетельствует о ламинарности воздушных потоков, вызывавших в период отборов проб отрыв слабо связанных с подстилающими поверхностями частиц с соответствующими радионуклидами.

Увеличение влажности в летние месяцы приводило к уменьшению объемных концентраций аэрозолей с долгоживущими альфа-излучателями в 10 - 15 раз, а аэрозолей с ^{137}Cs как гамма-излучателем и с ^{212}Pb в 4 - 6 раз. Следовательно, аэрозольные частицы-носители ^{137}Cs представляли собой материал более гидрофобный, чем материал частиц с альфа-излучателями (топливных частиц). В случае аэрозолей с ^{212}Pb можно утверждать, что процесс эксхалации радона из стен помещения отбора менее чувствителен к повышению влажности, чем отрыв частиц с альфа-излучателями от загрязненных ими поверхностей помещения.

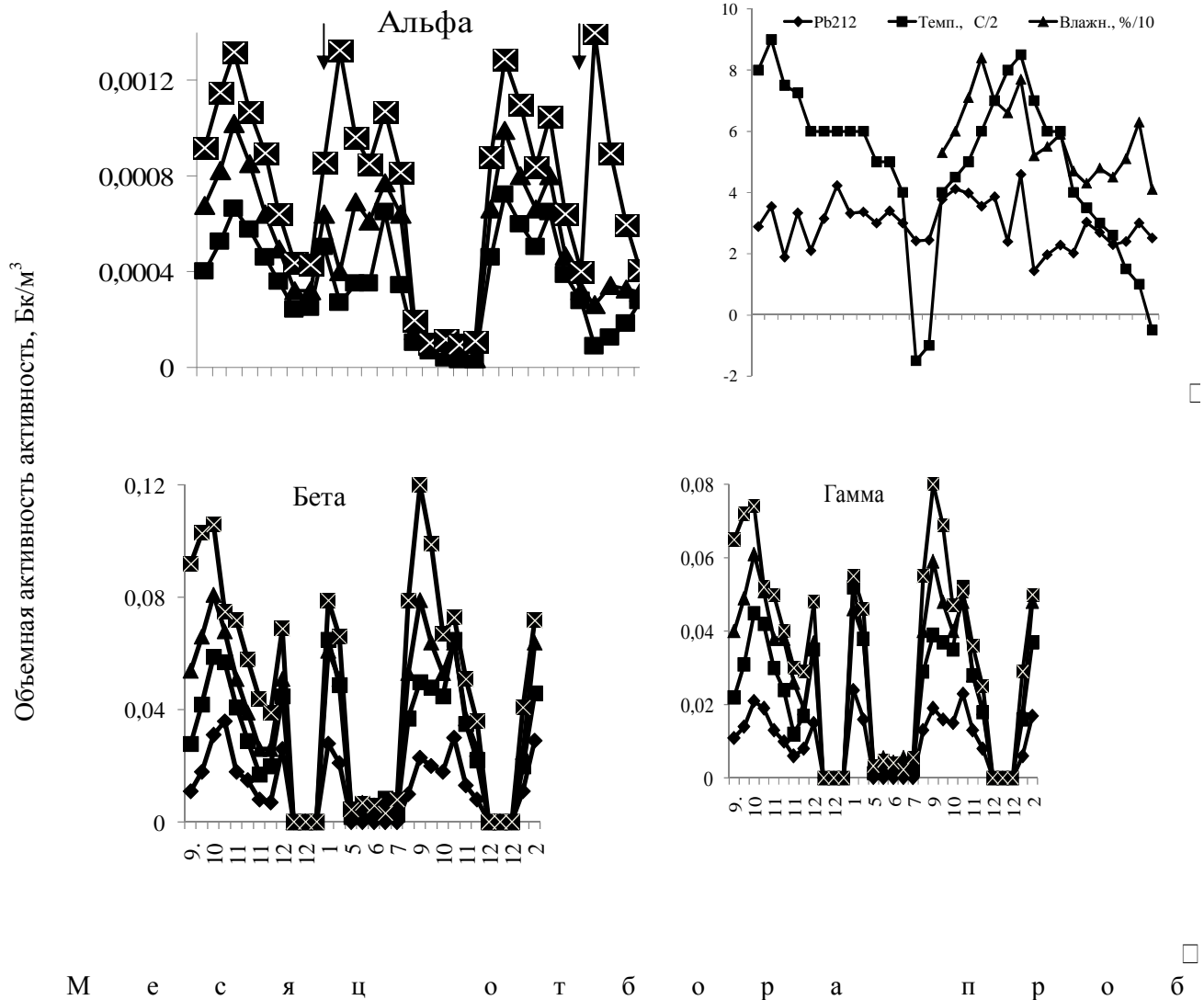


Рис. 1. Объемная концентрация различных по АД групп радиоактивных аэрозолей с долгоживущими альфа- и бета-активными радионуклидами (◆ – группа 32, ■ – группа 3, ▲ – группа 2; ✱ – группа 1) и ^{212}Pb ; температура и влажность воздуха в помещении 304/3 (▼ – время пылеподъема).

К началу периода 3 концентрации всех аэрозолей возвращались к значениям, близким к наблюдавшимся в период 1, что свидетельствует о слабом модифицирующем воздействии влаги на пылегенерирующую способность загрязненного радионуклидами поверхностного слоя материала помещения 304/3.

Проведенный межвидовой регрессионный анализ измеренных в периоды 1 и 3 значений объемных концентраций для трех групп размеров пар, составленных из данных измерения объемной активности аэрозолей, содержавших долгоживущие бета-активные радионуклиды и ^{137}Cs как гамма-излучатель, указывает на наличие не идентифицировавшихся ранее [6] аэрозолей с бета-излучателями без радионуклида ^{137}Cs . Это могли быть конденсационные аэрозоли с радионуклидом ^{90}Sr либо оторвавшиеся фрагменты лавы с радионуклидом ^{90}Sr .

Разностные значения между результатами измерения концентрации аэрозолей, содержавших все долгоживущие бета-активные радионуклиды и радионуклид ^{137}Cs (т.е. содержавшие ^{90}Sr и малоинтенсивные бета-излучатели, сохранившиеся в значительном количестве в аварийном топливе с 24-летней выдержкой) совместно со значениями для трех групп аэрозолей с долгоживущими альфа-активными радионуклидами, составили пары для регрессионного анализа. Найденные значения коэффициентов при линейных членах уравнений опреде-

лили отношения объемных концентраций для групп аэрозолей со ^{90}Sr и альфа-активными радионуклидами, составившие величину $12,7 \pm 3,3$ несколько меньшую рассчитанной на основании [7] для аварийного топлива с 24-летним сроком выдержки, равной 15,5. Учитывая малый вклад в расчетную концентрацию ^{90}Sr от упомянутых малоинтенсивных бета-излучателей, обнаружившееся различие величин следует признать достоверным.

Присутствие у данной пары регрессионного анализа заметных по величине положительных аддитивных членов подтверждает отсутствие у выявленных выше аэрозолей со ^{90}Sr альфа-излучателей. Исходя из соотношения аддитивных членов и коэффициентов при линейных членах уравнений регрессии, концентрация таких аэрозолей составляла, примерно, половину концентрации ^{90}Sr в топливных аэрозолях. Конденсационная природа их возникновения была возможна только при условии, что у попавшей в помещение 304/3 лавы на протяжении некоторого времени температура была выше температуры испарения стронция. Отметим, что данные работы [8] также указывают на наличие в аэрозолях системы «Байпас» «лишней» активности ^{90}Sr (с точки зрения регистрируемой активности топливных частиц).

Результаты регрессионного анализа для аэрозолей с ^{137}Cs как гамма-излучателем и долгоживущими альфа-активными радионуклидами дали среднюю величину отношения концентраций $13,5 \pm 4,2$, что также меньше значения 19,7, рассчитанного для указанного выше топлива. Вероятно, объяснить это можно аналогично предыдущему - выходом значительной доли ^{137}Cs в процессе формирования ЛТСМ.

Исходя из соотношения аддитивных членов и коэффициентов при линейных членах уравнений регрессии в группе крупных аэрозолей, концентрация таких частиц примерно в 1,5 раза превышала концентрацию ^{137}Cs в топливных аэрозолях, а в группе мелких в 2,5 – 3 раза. Как указывалось выше, примерно половина мелких аэрозолей с ^{137}Cs регистрировалась в группе 32, т. е. имела АД < 0, 4 мкм.

Остановимся детальнее на закономерностях поведения аэрозолей топливного происхождения.

На рис. 2 представлены значения отношений измеренных в периоды 1 и 3 концентраций аэрозолей с альфа-излучателями для пар, составленных из групп 2 – 1 и 3 - (1 + 2 + 3).

Значительная часть этих отношений находится в перекрывающейся области рис. 2. (Исключение составляют обо-

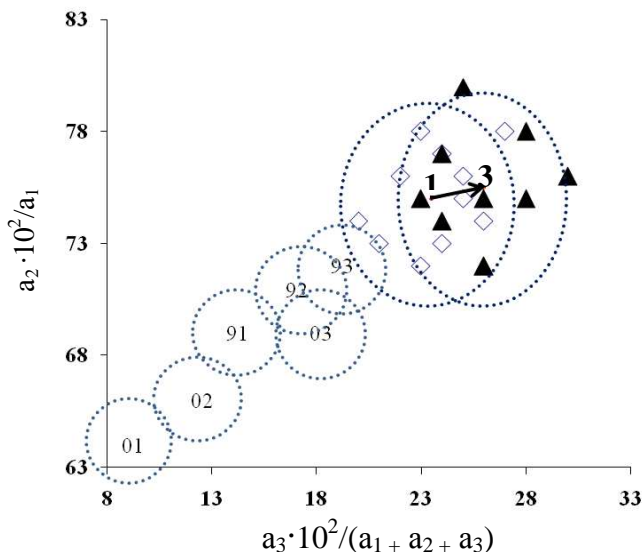


Рис. 2. Отношения измеренных концентраций групп аэрозолей, \diamond – период 1; \blacktriangle – период 3; 91-93 – пылеподъем 2009 г.; 01 - 03 – пылеподъем 2010 г.; \odot –области доверительных вероятностных значений.

значенные числами (91 - 93 и 01 - 03) отношения, полученные для пробоотборов, проведенных в сроки до 6 сут после отмечавшихся выше пылеподъемов в районе устья скважины В.12.76.) Обозначенные как 1 и 3 средние значения указанных отношений (без учета значений после пылеподъемов) характеризуются соотношением объемных концентраций аэрозолей для групп 1, 2 и 3 составляющими $43,7 : 32,8 : 23,5$ и $42,2 : 31,8 : 26$ соответственно. Видно, что ограниченные эллипсами площади рассчитанных для каждого из средних значений 95 %-ных доверительных интервалов также частично перекрываются.

Тем не менее, массивы последовательностей значений радиус-векторов для наборов указанных отношений позволили на основании непараметрического критерия различия Колмогорова - Смирнова [9] установить с уровнем значимости 0,95 достоверность их роста от

периода 1 к периоду 3. Найденная величина прироста отношения концентраций составила 2,5/25,7 концентрации аэрозолей в группе 3, что в пересчете на среднюю концентрацию аэрозолей с альфа-излучателями в помещении 304/3, составившую $(2 \pm 0,4) \cdot 10^{-3}$ Бк/м³, дает для аэрозолей группы 3 рост концентрации за год от $4,5 \cdot 10^{-4}$ до $5 \cdot 10^{-4}$ (т.е. прирост на $(5 \pm 3,1) \cdot 10^{-5}$ Бк/м³). Это несколько больше прироста, оцененного ранее [6], по меньшему числу отборов и времени их усреднения.

Перейдем к рассмотрению вопроса о возможном источнике пополнения концентрации долгоживущих радиоактивных аэрозолей в помещении 304/3 высотой 3 м. Так как выраженные источники аэрозолей в помещении отсутствовали, то следовало бы ожидать уменьшения концентрации аэрозолей за счет их гравитационного оседания (примерно в 10 раз за 2-3 сут для АД 2,0, и за 22 сут для АД 0,4 мкм [10]). В действительности всегда существующие конвекционные потоки создают условия «витания» некоторой части мелких аэрозолей, что увеличивает время их нахождения в воздухе, но тенденции к постепенному оседанию все равно остаются [11]. Поэтому дисперсный состав и концентрация смеси аэрозолей в помещении должны бы были со временем изменяться, что противоречит результатам измерений.

Источником пополнения, вероятно, стали поднятые в воздух слабо связанные с подстилающими поверхностями частицы, содержавшие соответствующие радионуклиды. Ламинарные воздушные потоки, поднимавшие частицы, могли быть сформированы частично сохранившимися воздухопроводными путями разрушенной вентиляционной системы реактора.

Рассмотрим вопрос пополнения концентрации аэрозолей в воздушной среде изолированного помещения с загрязненными поверхностями, используя понятие усредненного коэффициента вторичного пылеподъема [12]. С его помощью устанавливается связь между имеющейся в помещении поверхностной активностью способных к отрыву частиц с соответствующими нуклидами и концентрацией радиоактивных аэрозолей, формируемой из этих частиц. В условиях, подобных помещению 304/3, величина коэффициента вторичного пылеподъема для частиц с размерами в десятки микрометров составляет $(10^{-7} - 10^{-8}) \text{ м}^{-1}$ [13]. Сила адгезионного взаимодействия, удерживающая такие частицы, на два-три порядка меньше, чем для частиц микронных размеров [14]. Соответственно во столько же раз меньше величина коэффициента вторичного пылеподъема $(10^{-9} - 10^{-11}) \text{ м}^{-1}$ для частиц микронных размеров. Поэтому измеренная концентрация аэрозолей с альфа-излучателями могла возникнуть при наличии поверхностной активности способных к отрыву частиц с альфа-излучателями на уровне 10^7 Бк/м². Так как толщина слоя, из которого частицы способны подняться в воздух, ограничена их диаметром (несколько микрон и меньше), то объемная активность альфа-излучателей в поверхностном слое частиц должна была составлять около 10^7 Бк/см³ (быть соизмеримой с концентрацией альфа-излучателей в ЛТСМ).

Представим процесс формирования топливных аэрозолей как суперпозицию произведений множителей, определяющих количество поднимаемых в единицу времени с подстилающих поверхностей в воздух различного размера частиц с альфа-излучателями и аналогичных работе [10] множителей, задающих оседание части из этих частиц в единицу времени. В свою очередь количество поднимаемых частиц определяется их поверхностной плотностью на подстилающих поверхностях (подчиняющейся логнормальному закону с установленными медианным АД - d_1 , стандартным геометрическим отклонением - σ_1) и вероятностью отрыва частиц от поверхности. Рассмотрим два крайних из возможных вариантов отрыва: отрыв частицы от поверхностного слоя, состоящего из набора независимых частиц с альфа-излучателями, связанных с подстилающей поверхностью силой адгезии, и отрыв от многослойного ансамбля связанных между собой силой когезии частиц на поверхности ЛТСМ. В обоих случаях вес отдельной частицы значительно меньше силы ее взаимодействия с окружением. В рассматриваемом интервале размеров частиц, при существующих небольших вероятностях их отрыва, сама вероятность отрыва возрастает с увеличением диаметра. В случае ансамбля рост пропорционален диаметру частиц в степени 0,5, а в случае набора независимых частиц – степени 1,5 от диаметра [14].

На рис. 3 представлены рассчитанные для набора из трех групп размеров аэрозолей с границами, аналогичными использованным в работе, распределения относительной концентрации аэрозолей через различное время после начала процесса пролонгированного подъема частиц с постоянной производительностью. Расчеты произведены для помещения высотой 3 м с двумя отмеченными вариантами связи отрывааемых частиц. При заимствованном из [15] значении $\sigma_1 = 2,5$ значения d_1 для каждого из вариантов подбирались таким образом, чтобы конечные расчетные распределения аэрозолей наилучшим образом описывали усредненные за периоды 1 и 3 измеренные распределения.

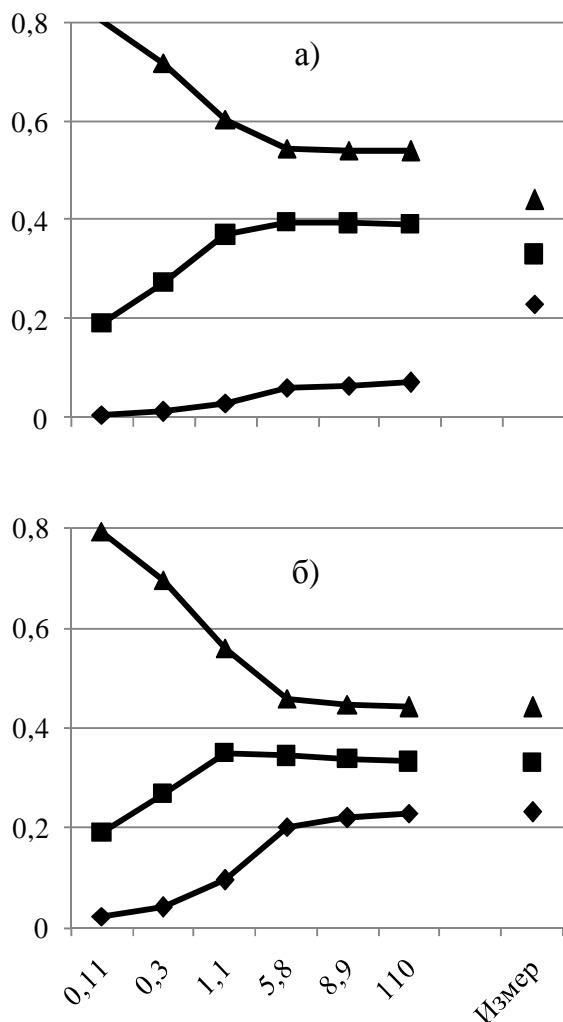


Рис. 3. Измеренные и расчетные относительные концентрации аэрозолей групп ▲ - 1, ■ - 2, ◆ - 3 (при различном времени подъема с постоянной производительностью), приближение монодисперсное (а) и бидисперсное (б).

периоды 1 и 3, проведено сравнение каждого из представленных на рис. 2 средних значений найденных отношений объемных концентраций аэрозолей с альфа-излучателями для групп размеров 2 - 1 и 3 - (1 + 2 + 3) с расчетными их значениями в установившемся режиме с подобранными выше значениями d_1 . Таблица демонстрирует заметное различие в величине сравниваемых отношений.

Уменьшить его можно, предположив, что на подстилающей поверхности находится бимодальный набор логнормально распределенных по размерам частиц: отмеченные ранее с

Из рис. 3 видно, что качество «оптимальной» подгонки рассчитанных распределений аэрозолей по размерам к усредненным измеренным распределениям низкое. Различаются они для двух вариантов связи отрывааемых частиц величиной d_1 (3,1 мкм для монослая и 7,1 мкм для ансамбля).

Отметим, что в разные моменты времени дисперсный состав аэрозолей по-разному отличается от состава формирующих его и способных к подъему частиц на подстилающей поверхности. Режим с установившимися параметрами распределения по размерам в данном случае возникает лишь к 110 сут после начала процесса подъема частиц с постоянной производительностью.

Расчеты [16] показали, что изменения абсолютных концентраций аэрозолей, возникающие при скачкообразных изменениях производительности подъема, приводят к существенным искажениям относительного дисперсного распределения их по размерам только на начальном этапе (до 3 – 4 сут). Поэтому режим, мало отличимый от установившегося, возникает уже через 8 – 10 сут, а при практически реализуемых режимах плавного изменения производительности подъема сроки проявления искажений будут еще короче.

В реальных условиях контролировать, а тем более обеспечивать установившийся режим невозможно, и единственный способ уменьшения степени неопределенности суждений об истинном характере исследуемых дисперсных распределений – сравнение их в достаточно широких интервалах времени. Считая такой критерий выполненным для измерений в

$d_1 = 3,1$ (или $7,1$) мкм и частицы с меньшими d_2 и σ_2 . Естественно, различить моды невозможно, но сумма их вкладов создает на загрязненных поверхностях повышенную концентрацию частиц малого размера, обеспечивающую повышение числа поднимаемых в воздух частиц, образующих аэрозоли малого размера. Различие в качестве подгонки расчетных распределений к экспериментальным в одномодальном и бимодальном приближениях можно видеть на рис 3.

Измеренные и расчетные отношения концентрации групп аэрозолей с альфа-излучателями

Период измерений	Отношение концентраций	Измеренное отношение	Расчетное отношение		Вклад компоненты 2	
			Одномодальное	Бимодальное	Монослой	Ансамбль
1	$a_3 : \Sigma a$	23,5	7,4	23,5	17,4	4,15
	$a_2 : a_1$	32,8 : 43,7	39,6 : 53	32,8 : 43,7		
3	$a_3 : \Sigma a$	26		26	20,7	5,2
	$a_2 : a_1$	31,8 : 42,2		31,8 : 42,2		

Как следует из табл. 1, при оптимальных значениях $d_2 = 0,49$ мкм и $\sigma_2 = 1,2$, подбирая относительный вклад частиц моды 2 в формируемую концентрацию аэрозолей, получены расчетные значения отношений, близкие к представленным на рис. 2 средним значениям 1 и 3. При переходе от интервала 1 к 3 вклад частиц данной моды увеличивается от 17,4 до 20,7 % (нахождение их в монослое) или от 4,15 до 5,2 % (нахождение в ансамбле).

Рассмотренный подход не противоречит использованному в работе [6], основанному на статической модели двухмодальной смеси аэрозолей, не учитывавшей динамику их формирования и поведения. Набор и значения использованных параметров в обоих подходах близки. Формально вводимая в статической модели мелкодисперсная мода в данном случае представлена двумя компонентами: завышенным (в сравнении с логнормальным распределением) вкладом в установившийся режим распределения аэрозолей от медленно оседающих аэрозолей малых размеров и вкладом от поднимаемых с подстилающих поверхностей частиц с распределением, близким к монодисперсному.

Выбор между вариантами распределения частиц на поверхности ЛТСМ произведен на основании результатов, полученных после специально проведенных в помещении 304/3 10 декабря 2009 г. и 9 декабря 2010 г. интенсивных пылеподъемов. Так как пылеподъемы являются частным случаем рассмотренного режима скачкообразного изменения производительности подъема, характеризующегося существенными искажениями дисперсных распределений сразу после его проведения, измерения распределения концентрации аэрозолей были выполнены через 4, 5 и 6 сут после пылеподъема. Результаты их в виде отношений концентраций аэрозолей с альфа-излучателями для указанных ранее пар групп представлены на рис. 2 (точки 91 - 93 и 01 - 03 соответственно 2009 и 2010 гг.). Характерным для них является систематически заниженный относительный вклад концентрации аэрозолей малых размеров.

Если бы смесь двух мод, логнормально распределенных по размерам частиц с альфа-излучателями находилась на поверхности ЛТСМ в виде монослоя или была гомогенно распределена по глубине их слоя, то отношения измеренных объемных концентраций после пылеподъемов мало отличались от рассчитанных по данным измерений в периоды 1 и 3. Обнаруженные их занижения возможны, если поверхность ЛТСМ покрыта сформировавшимися в разное время слоями частиц с альфа-излучателями моды d_1 и процесс диспергирования с образованием частиц моды d_2, σ_2 в них продолжается. Тогда концентрация частиц этой моды будет изменяться от максимальной в наружных ранее сформировавшихся слоях до минимальной на цельной части поверхности ЛТСМ. Сдув такой смеси приведет к смешению с имевшимися в данной части объема помещения аэрозолями. Результирующая концентрация частиц моды d_2, σ_2 при этом уменьшится, и рассчитанные относительные дисперсные распределения окажутся с заниженным относительным вкладом аэрозолей малых размеров, близкими к полученным на основании измерений после пылеподъемов. Наблюдающиеся на

рис. 2 более низкие значения отношений после повторного пылеподъема связаны с минимальной толщиной сдуваемого в этом случае слоя частиц, накопившихся всего за год после первого сдува слоя, который накопился за весь послеаварийный период.

Признав достоверным рассмотренный вариант распределения двухмодальной смеси частиц с альфа-излучателями на поверхности ЛТСМ и используя экспериментальные данные по концентрации аэрозолей с альфа-излучателями для группы 3, находим время, за которое эти концентрации сформировались. В предположении экспоненциального характера роста концентрации это составило 28,7 лет (т.е. диспергирование поверхности ЛТСМ началось сразу с ее образованием). Если сохранятся указанные темпы генерации аэрозолей с альфа-излучателями, то концентрация их на уровне PC^{inhal} будет достигнута лишь через 20 - 25 лет.

Следуя работе [17], можно предположить, что постепенное разрушение лавы происходит под действием автоволны доокисления урана в находящихся в ЛТСМ молекулах UO_2 диффундировавшими к ним молекулами O_2 . Оцененная толщина разрушаемого таким образом за год слоя составляет около 250 мкм (при температуре 300 К). Основные затруднения в использовании данного механизма для интерпретации результатов настоящей работы – необходимость подключения дополнительного механизма, способного обеспечить генерацию частиц моды 2. Возможный выход - дополнение подхода авторов работы [17] предложенным в работе [3] механизмом генерации частиц субмикронных размеров с поверхности ЛТСМ. Необходимо только учесть, что при достигнутом в настоящей работе пороге обнаружения среди регистрировавшегося спектра размеров «топливных частиц» не было выявлено аэрозолей с $AD < 0,4$ мкм (в отличие от аэрозолей, содержащих только бета-излучатели или дочерние продукты радоновых рядов).

Выводы

Проведенное исследование распределения по размерам объемной концентрации радиоактивных аэрозолей в содержащем ЛТСМ помещении 304/3 объекта «Укрытие» позволило установить следующее.

1. В период отбора проб существовала смесь радиоактивных аэрозолей с долгоживущими радионуклидами состоявшая из топливных аэрозолей и аэрозолей, с радионуклидами ^{137}Cs и отдельно ^{90}Sr . Отношения концентрации ^{90}Sr и ^{137}Cs к концентрации альфа-излучателей в топливных аэрозолях были несколько меньше расчетных для топлива с 24-летней выдержкой, а их общие концентрации соответственно в 1,5 и 3 раза большими.

2. При влажности воздуха менее 85 % средняя концентрация топливных аэрозолей составляла около $2 \cdot 10^{-3}$ Бк/м³, а аэрозолей с ^{137}Cs – $2 \cdot 10^{-1}$ Бк/м³. С увеличением влажности до (95 - 100) % концентрация первых уменьшалась в 10 - 15 раз, а вторых - в 4 - 6 раз, что указывает на большую гидрофобность поверхности носителей конденсационного ^{137}Cs в сравнении с материалом топливных частиц из ЛТСМ.

3. Установлена с уровнем значимости 0,95 достоверность роста от периода 1 к периоду 3 отношений измеренных объемных концентраций для групп размеров 2 - 1 и 3 - (1+2+3) аэрозолей с альфа-излучателями. Для группы 3 прирост концентрации за год составил около $(5 \pm 3,1) \cdot 10^{-5}$ Бк/м³ (10^4 топливных частиц с AD 0,5 мкм на м³ воздуха помещения отбора).

4. Предложена динамическая модель формирования концентрации топливных аэрозолей как суперпозиции с соответствующими парциальными вкладами от набора произведений множителей, определяющих количество поднимаемых в единицу времени с подстилающих поверхностей в воздух логнормально распределенных по размеру частиц с альфа-излучателями и множителей, задающих оседание части этих частиц в единицу времени.

5. Если предположить, что кроме указанных в п. 4 частиц отрываются еще и логнормально распределенные по размеру частицы с $d_2 = 0,49$ и $\sigma_2 = 1,2$, то расчетные значения отношений концентраций топливных аэрозолей для групп 2 - 1 и 3 - (1 + 2 + 3) хорошо согласуются с их усредненными измеренными значениями. При переходе от интервала 1 к интервалу 3 расчетный вклад указанной группы частиц увеличивается от 17,4 до 20,7 % (при отрыве от монослоя) и от 4,15 до 5,2 % (отрыв от ансамбля).

6. Используя экспериментальные данные по приросту концентрации аэрозолей с альфа-излучателями за год (п. 3) в предположении экспоненциального характера ее дальнейшего роста, расчетное время достижения уровня PC^{inhal} в помещении 304/3 составит 20 - 25 лет.

Завершая настоящее рассмотрение, хочется выразить надежду, что оно явится еще одним аргументом в пользу создания системы мониторинга ЛТСМ объекта «Укрытие». Регулярное отслеживание возможных изменений в состоянии ЛТСМ не только обеспечит готовность к нейтрализации этих изменений в случае их неблагоприятного развития, но и позволит адаптировать подходы к принятию оптимальных решений по извлечению ЛТСМ.

Авторы считают своим приятным долгом выразить благодарность сотрудникам ЧАЭС В. А. Каштанову, А. В. Дмитриенко, С. В. Сухоставскому за содействие в проведении работы и сотрудникам ИПБ АЭС НАН Украины В. Е. Хану и А. А. Одинцову за проведенные экспертные анализы.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Огородников Б.И., Пазухин Э.М., Ключников А.А.* Радиоактивные аэрозоли объекта «Укрытие»: 1986 – 2006 гг. Монография. – Чернобыль: ИПБ АЭС НАН Украины. – 2008.
2. *Боровой А.А.* Ядерное топливо в объекте «Укрытие» // Атомная энергия. - Т. 100, вып. 4, апрель 2006. - С. 259 - 267.
3. *Жидков О.В.* Вивчення фізичних механізмів дії внутрішніх і структурних чинників, відповідальних за процеси деградації паливовмісних матеріалів об'єкта «Укриття» в період його переведення на екологічно безпечну систему // Проблеми безпеки атомних електростанцій і Чорнобиля. – 2010. – Вип. 13. – С. 155 – 156.
4. *Baryakhtar V., Gonchar V., Kluchnicov A., Zhidkov A.* Dust Productivity of fuel-containing materials of "Shelter" object: experimental data, physical mechanisms, possible technology of prevention. Scientific-technical collection "Problems of Chernobyl", 1999, vol. 5.
5. *Бадовский В.П., Ключников А.А., Кравчук Т.А.* Исследование характеристик аэрозолей в содержащих топливо помещениях объекта «Укрытие» // Проблеми безпеки атомних електростанцій і Чорнобиля. – 2009. – Вип. 12. – С. 103 – 112.
6. *Бадовский В.П., Ключников А.А., Кравчук Т.А. и др.* Мониторинг аэрозольной обстановки в некоторых подреакторных помещениях объекта «Укрытие» // Там же. – 2008. – Вип. 10. – С. 99 – 110.
7. *Бегичев С.Н., Боровой А.А., Бурлаков Е.В. и др.* Топливо реактора 4-го блока ЧАЭС. - Москва, 1990. - 21 с. - (Препр. / ИАЭ им. И. В. Курчатова; № 5268/3).
8. *Огородников Б.И., Павлюченко Н.И., Будыка А.К., Краснов В.А.* Пылеобразование в объекте «Укрытие» под воздействием техногенных и природных факторов // Проблеми безпеки атомних електростанцій і Чорнобиля. – 2005. – Вип. 3, ч. 1. – С. 155 – 156.
9. *Урбах В.Ю.* Биометрические методы. – М.: Наука, 1964. – 416 с.
10. *Райст П.* Аэрозоли. Введение в теорию. - М.: Мир, 1987.
11. *Талиев В.Н.* Аэродинамика вентиляции. – М.: Стройиздат, 1979.
12. *Радиоактивные загрязнения. Дезактивация.* Библиотечка «Военные знания» / Составитель А. Д. Зимон. - 2-е изд., перераб. и доп. – М., 2001. – 56 с.
13. *Sehmel G.A.* Particle resuspension: a review // Environ. Int. - 1980/ - Vol. 4. - P. 107 - 127.
14. *Зимон А.Д.* Адгезия пыли и порошков. - М.: Химия, 1976. - 432 с.
15. *Сухоручкин А.К.* Расчет дозового коэффициента аэрозоля произвольной дисперсности // Проблеми безпеки атомних електростанцій і Чорнобиля. – 2005. - Вип. 3, ч. 1. - С. 98 – 101.
16. *Розробка методик і приладів для діагностики передаварійних станів об'єктів атомної техніки шляхом оцінки характеристик супутніх аерозолів: (Заклуч. звіт про НДР) / ИПБ АЭС НАН України. – Арх. № 3984. – Чорнобиль, 2009.*
17. *Голіней І.Ю., Сугаков В.Й.* Деякі механізми руйнування паливовмісних матеріалів // Проблеми безпеки атомних електростанцій і Чорнобиля. – 2007. – Вип. 8. – С. 86 – 91.

РАДІОАКТИВНІ АЕРОЗОЛІ ПРИМІЩЕННЯ 304/3 ОБ'ЄКТА «УКРИТТЯ» ТА ПИЛОГЕНЕРУЮЧА ЗДАТНІСТЬ ЛАВОПОДІБНИХ ПАЛИВОВМІСНИХ МАТЕРІАЛІВ У НЬОМУ

**В. П. Бадовський, О. О. Ключников, О. Е. Меленевський,
Ю. В. Морозов, І. О. Ушаков, В. М. Щербін**

У 2008 – 2011 рр. проведено вивчення характеристик радіоактивних аерозолів (РА) у приміщенні 304/3, що вміщує лавоподібні паливовмісні матеріали (ЛПВМ), об'єкта «Укриття». Досліджувалося розподілення об'ємних концентрацій РА, що вміщують довгоіснуючі альфа- та бета-випромінювачі, окремо ^{137}Cs та ^{212}Pb по трьох групах з аеродинамічними діаметрами $\geq 2,0$ мкм; $\geq 0,6$, але $\leq 2,0$ мкм і $\leq 0,6$ мкм. Виявлено присутність паливних РА та РА, що вміщують тільки ^{137}Cs із середніми концентраціями $2 \cdot 10^{-3}$ та 10^{-1} Бк/м³, що мало змінились за час досліджень. У паливних РА відношення концентрації ^{90}Sr до концентрації альфа-випромінювачів перевищує розрахункове для палива з 24-літньою витримкою в 1,5 рази, а ^{137}Cs - занижено в 1,5 – 2 рази. Припускається, що компенсація частки РА, що осідає, відбувається за рахунок частинок з радіонуклідами, що відриваються від забруднених ними поверхонь приміщення. Для досягнення концентрації паливних РА, що вимірювались, щільності поверхневого забруднення цими частинками повинні бути сумірними із щільністю радіонуклідів у ЛПВМ. Наведено аргументи на користь формування шару цих частинок із фрагментів, що відриваються від поверхні ЛПВМ. Виявлено приріст концентрації дрібнодисперсної фракції паливних РА, що становив $(5 \pm 3,1) \cdot 10^{-5}$ Бк/м³ у рік.

Ключові слова: аерозолі об'єкта «Укриття», паливні аерозолі, поверхня ЛПВМ, віртуальний імпактор.

RADIOACTIVE AEROSOLS OF OBJECT "UKRYTTYA" 304/3 ROOM AND DUST GENERATING ABILITY IN IT

**V. P. Badovsky, O. O. Klyuchnykov, A. E. Melenevsky, Yu. V. Morozov,
I. O. Ushakov, V. M. Shcherbin**

During 2009 - 2011 years was made monitoring of radioactive aerosol (RA) in object "Ukryttya" lava fuels containing materials (LFCM) containing premise 304/3. Researches were provided on distribution RA volumetric concentrations which contained long-living alpha-, beta-emitters, separately ^{137}Cs and ^{212}Pb among three groups of aerodynamical diameter sizes $\geq 2,0$ μm , $\geq 0,6$ μm but $\leq 2,0$ μm , and $\leq 0,6$ μm . Presence of fuel RA and containing only ^{137}Cs RA with average concentrations of $2 \cdot 10^{-3}$ and 10^{-1} Bk/m³ in year was defined. In fuel RA concentration of ^{90}Sr to concentration of α -emitters ratio is 1,5 times more than for 24 year exposure fuel but for ^{137}Cs it is 1,5 – 2 times less. Is expected that compensation of subsided part of RA, occurs by particles with radio nuclides tearing off from LFCM surface. Fuel RA measured concentrations can be came up if surface contamination density by these particles will be commensurable with LFCM radio nuclides density. Arguments for the benefit of these particles layer, forming out of LFCM surface fragment given. Increment of fuel RA fine dispersed fraction concentration exposed with value of $(5 \pm 3,1) \cdot 10^{-5}$ Bk/m³ in year.

Keywords: object "Ukryttya" radioactive aerosol, fuel aerosol, LFCM surface, virtual impactor.

Поступила в редакцію 02.03.11