

А. К. Калиновский, В. А. Краснов, Б. И. Огородников

Институт проблем безопасности АЭС НАН Украины, Чернобыль

РАДИОАКТИВНЫЕ АЭРОЗОЛИ ФУКУСИМЫ В ЧЕРНОБЫЛЕ

Представлены результаты определения радионуклидного состава, концентрации и дисперсности аэрозолей в локальной зоне объекта «Укрытие» весной 2011 г. Помимо аэрозолей чернобыльского генезиса выявлены техногенные радионуклиды ^{131}I , ^{132}I , ^{132}Te , ^{134}Cs и ^{136}Cs , содержащиеся в выбросах из аварийных блоков АЭС «Фукусима-1» и распространившиеся в северном полушарии. Их содержание не превысило допустимых уровней концентрации радионуклидов в воздухе для населения. Выявлено, что радионуклиды фукусимского генезиса (^{131}I , ^{134}Cs) и естественные радиоизотопы (^7Be , ^{210}Pb) находились на носителях подобного аэродинамического диаметра (АМАД < 1 мкм). Показано, что аэрозоли из Фукусимы не внесли значительного дополнительного вклада в дозовую нагрузку персонала, выполняющего работы на промплощадке объекта «Укрытие».

Ключевые слова: АЭС «Фукусима-1», авария, радиоактивный выброс, аэрозоли, естественные радионуклиды, объект «Укрытие», гамма-спектрометрические измерения, концентрация аэрозолей, дисперсный состав.

Введение

При разрушительном землетрясении 11 марта 2011 г. на японской АЭС «Фукусима-1» компании «Токуо Electric Power Co» (ТЕРСО) автоматически были заглушены работающие энергоблоки. Однако в результате последующего мощного цунами отказала система охлаждения реакторов. Это привело к тому, что 12 марта произошел взрыв на первом энергоблоке, 14 марта – на третьем и 15 марта – на втором и четвертом, который использовался в качестве хранилища отработанного ядерного топлива [1]. Взрывы произошли из-за остаточного тепловыделения продуктами деления. Вода в активных зонах реакторов нагрелась до температуры более 300 °С и превратилась в пар. В результате пароциркониевой реакции произошло образование водорода, который и привел к взрывам [2].

Радиоактивный выброс, сопровождавший взрывы, состоял из наработанных за период кампании инертных газов и летучих веществ: ^{134}Cs (2,06 лет), ^{136}Cs (13 сут), ^{137}Cs (30,17 лет), ^{131}I (8,04 сут), ^{132}I (2,3 ч), ^{133}I (21 ч), ^{132}Te (3,2 сут) и др. По предварительным данным МАГАТЭ, в отличие от аварии на ЧАЭС на АЭС «Фукусима-1» выброса ядерного топлива из активных зон реакторов практически не было. Только в двух из пяти проб, взятых на площадке АЭС, зафиксировано присутствие изотопов $^{239, 240, 241}\text{Pu}$ [2].

Первоначально предполагалось, что радиоактивный выброс незначителен и радиоактивное загрязнение будет носить локальный характер (в пределах 200 км). Однако по данным Комиссии по радиационному контролю за всеобъемлющим запрещением ядерных испытаний (СВТО) уже 19 марта повышенная концентрация ^{131}I была зарегистрирована на Гавайских островах, еще через день – в Исландии, 22 марта – в Швеции и западной части Российской Федерации [3].

В результате 18 марта японское Агентство по ядерной и промышленной безопасности присвоило аварии 4-й уровень опасности по международной шкале INES, затем 5-й, а 12 апреля ей был присвоен уже максимальный 7-й уровень [1]. Это поставило аварию на АЭС «Фукусима-1» в один ряд с катастрофой на ЧАЭС. Суммарный выброс радиоактивных веществ, по предварительным оценкам сотрудников ТЕРСО, составил порядка 15 % от выброса при Чернобыльской аварии за аналогичный период. При этом выброс ^{131}I приблизительно равен 10^5 ТБк [4].

© А. К. Калиновский, В. А. Краснов, Б. И. Огородников, 2011

Характеризация радиоактивных выбросов из аварийных блоков АЭС «Фукусима-1»

Для характеристики радионуклидного состава аварийного выброса использовали данные по атмосферным выпадениям Национального института передовой промышленной науки и технологии (AIST), расположенного в г. Цукуба в префектуре Ибараки [5]. Этот город расположен на расстоянии приблизительно 160 км от Фукусимы в направлении на Токио. В префектуре Ибараки наблюдались наибольшие уровни радиоактивного загрязнения.

Данные о радионуклидном составе выбросов (табл. 1) получены путем сбора выпадений на виниловый лист размером $1 \times 1,5$ м, экспонированного на земле возле здания AIST, последующего смыва аэрозолей и измерения проб на полупроводниковом детекторе.

Выпадения собирали ежедневно с 15 марта по 8 апреля практически в одно и то же время - с 13 ч 20 мин до 14 ч 20 мин. В первый день отбор проб выполнен дважды - в 9 ч 20 мин и 13 ч 20 мин. Существенные различия в активностях образцов свидетельствуют о неустойчивости аэрозольной обстановки. Анализ динамики активности ^{131}I , ^{132}I , ^{132}Te показывает, что выбросы происходили периодически и, как минимум, дважды из разных источников. На первом этапе соотношение $^{137}\text{Cs} / ^{134}\text{Cs}$ приблизительно равно 1, на втором - близко к 2.

Таблица 1. Содержание радионуклидов в выпадениях в г. Цукуба (префектура Ибараки)

Дата	Активность, Бк/пробу						Отношение		
	^{132}Te	^{131}I	^{132}I	^{133}I	^{134}Cs	^{137}Cs	$^{132}\text{Te}/^{132}\text{I}$	$^{137}\text{Cs}/^{134}\text{Cs}$	$^{131}\text{I}/^{134}\text{Cs}$
15.03.11	24	124	38	16	4	4	0,63	1,0	31,0
15.03.11	18	35	18	4	3	2	1,0	0,67	11,7
16.03.11	8	23	7	1	2	2	1,1	1,0	11,5
17.03.11	2	6	1	–	–	0	2,0	–	–
19.03.11	1	2	–	–	–	0	–	–	–
20.03.11	4	51	6	–	3	6	0,67	2,0	17,0
22.03.11	7	9	4	–	–	1	1,7	–	–
23.03.11	1	5	1	–	–	1	1,0	–	–
26.03.11	1	9	1	–	–	1	1,0	–	–
30.03.11	1	5	–	–	8	13	–	1,63	0,63
08.04.11	–	2	–	–	1	2	–	2,0	2,0

На рис. 1 приведены гамма-спектры образцов радиоактивных выпадений (верхний от 15 марта, средний от 19 марта) и фона в измерительной камере (нижний). Указаны гамма-линии радионуклидов ^{131}I , ^{132}I , ^{133}I , ^{132}Te , ^{134}Cs и ^{137}Cs , идентифицированных в выбросах из аварийных блоков АЭС «Фукусима-1».

Радиоактивные аэрозоли в воздухе локальной зоны объекта «Укрытие»

Средства измерения и объекты исследования

Регламентный отбор проб аэрозолей вокруг объекта «Укрытие» проводится на трех пунктах контроля (№ 1 – «Север», № 2 – «Северо-запад», № 3 – «Юг»), расположенных по периметру локальной зоны. Замена фильтров выполняется два раза в месяц. Мониторинг осуществляется с целью оценки радиационной обстановки на прилегающей территории и в зонах производства работ по строительству нового безопасного конфайнмента, а также учета влияния радиоактивных выбросов из объекта «Укрытие» на окружающую среду. Аэрозоли отбираются путем прокачки воздуха аспирационными установками (АУ) через фильтрующий материал ФПП-15-1,5 площадью около $0,8 \text{ м}^2$. При этом суточный объем составляет от 9 до 15 тыс. $\text{м}^3/\text{сут}$.

Отобранные пробы измеряют на гамма-спектрометрическом комплексе, состоящем из полупроводникового детектора GL2020R из сверхчистого германия с бериллиевым окном толщиной 500 мкм и 8192-канального амплитудного анализатора импульсов. Измерительный диапазон охватывает энергии от 10 до 1400 кэВ. Детектор имеет разрешение 0,57 и 1,2 кэВ для энергий гамма-квантов 122 кэВ (гамма-линия ^{57}Co) и 661,6 кэВ (гамма-линия ^{137}Cs) соответственно. Минимально измеряемая активность для фильтров, спрессованных в таблетки диаметром 50 мм, по γ -линии 59 кэВ ^{241}Am равна 0,03 Бк/пробу, а для ^{137}Cs – 0,4 Бк/пробу.

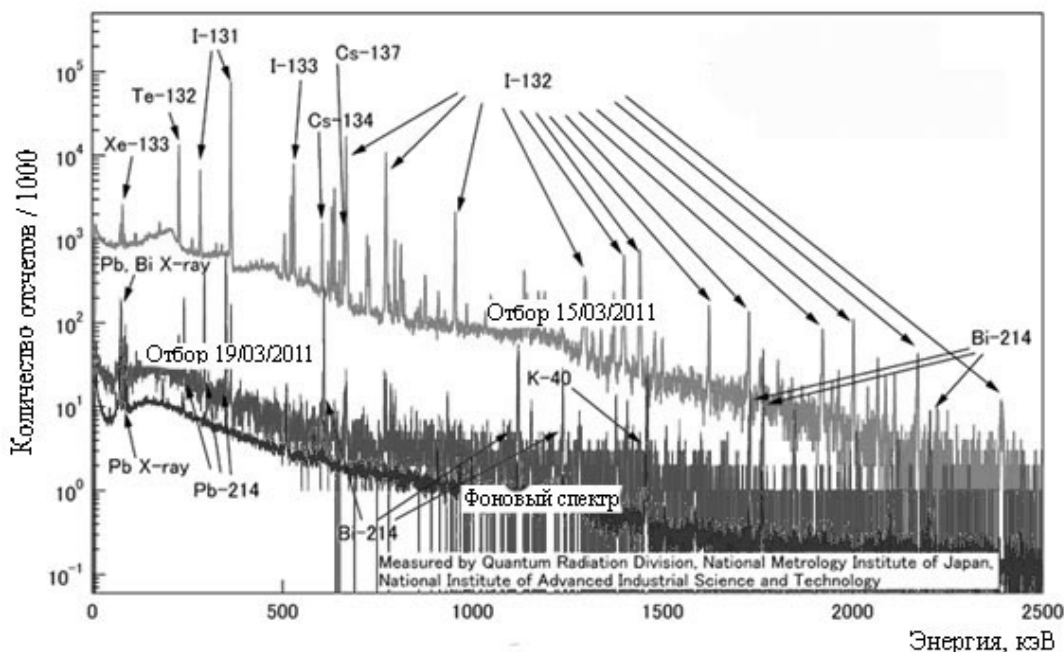


Рис. 1. Аппаратурные гамма-спектры образцов выпадений.

На протяжении последних лет в гамма-спектрах проб воздуха определяли активность как техногенных радионуклидов чернобыльского генезиса ^{137}Cs , ^{154}Eu , ^{241}Am , так и радионуклидов естественного происхождения ^7Be и ^{210}Pb .

В период поступления фукусимских аэрозолей, чтобы оценить не только состав радионуклидов, но и дисперсность их носителей, на установке АУ-3 на фильтр ФПП-15-1,5 дополнительно накладывали материал ФПП-70-0,3.

В фильтрах, экспонирование которых закончилось 30 марта 2011 г., кроме радионуклидов чернобыльского генезиса были выявлены ^{134}Cs , ^{136}Cs , ^{131}I , ^{132}I , ^{132}Te , характерные для аварийных аэрозольных выбросов действующих АЭС. Исходя из данных Комиссии СТВТО [3] и сообщения от 27 марта 2011 г. Государственной инспекции ядерного регулирования Украины [6], предположили, что появление этих радионуклидов связано с глобальным переносом воздушными массами аварийного выброса на АЭС «Фукусима-1». При расчете их объемной активности период поступления аэрозолей принимали с 23 по 30 марта. В последующих пробах фукусимские радионуклиды идентифицировали до 16 мая 2011 г.

Анализ результатов измерения

На рис. 2 представлены концентрации ^{137}Cs , ^{241}Am , ^7Be , ^{210}Pb радиоактивных аэрозолей с 1 марта по 2 июня 2011 г. Экспериментальные точки приведены на дату окончания сеанса прокачки воздуха. Практически синхронное изменение активности ^{137}Cs и ^{241}Am свидетельствует, что, вероятней всего, они находятся в частицах, представляющих собой фрагменты топливной матрицы. Концентрация естественного радионуклида ^7Be примерно вдвое выше концентрации ^{137}Cs , а содержание ^{210}Pb (продукта распада радона) превышает на порядок концентрацию ^{241}Am .

На рис. 3 представлены результаты определения концентраций радионуклидов, обнаруженных в аэрозолях локальной зоны с 14 марта по 2 июня 2011 г. Как и на рис. 2, экспериментальные точки приведены на дату окончания сеанса прокачки воздуха. Обнаруженные ра-

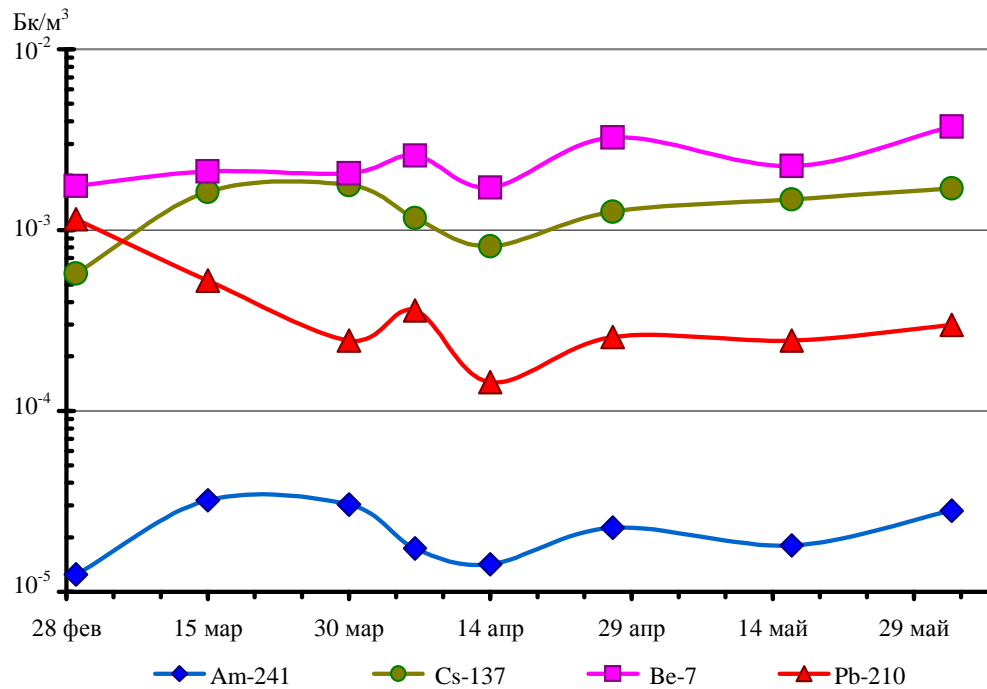


Рис. 2. Концентрация радионуклидов чернобыльского и естественного происхождения в воздухе локальной зоны объекта «Укрытие».

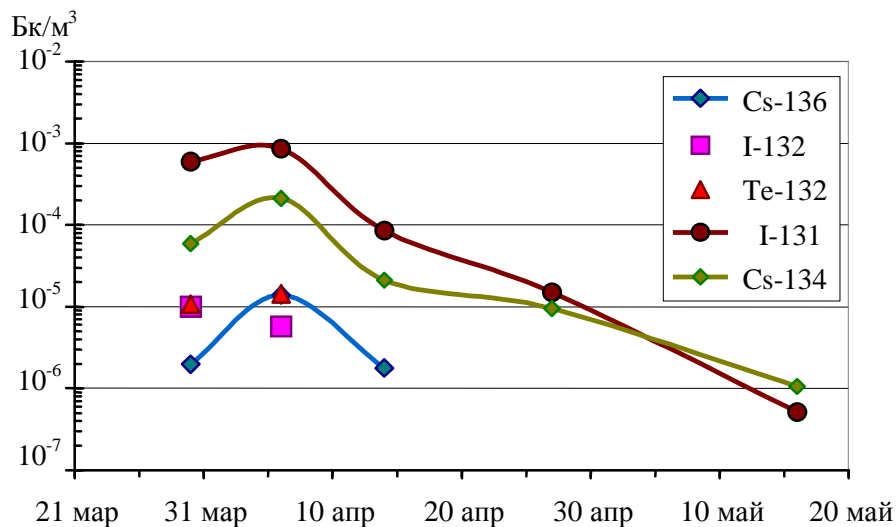


Рис. 3. Концентрации радионуклидов фукусимского генезиса в воздухе локальной зоны объекта «Укрытие».

дионуклиды обычно присутствуют в выбросах при авариях и разрушении оболочки твэла. Анализ данных Комиссии СТВТО о распространении аэрозольного выброса из аварийных энергоблоков АЭС «Фукусима-1», времени регистрации, составе и соотношениях активности идентифицированных радионуклидов указывает на их фукусимский генезис. В наших образцах проб аэрозолей, в отличие от образцов японских ученых (см. рис. 1, табл. 1), из-за почти двухнедельного глобального переноса отсутствовали короткоживущие радионуклиды. Например, ¹³³I с периодом полураспада 21 ч. Максимальные концентрации радионуклидов были зарегистрированы при отборе пробы с 30 марта по 6 апреля.

С целью оценки дисперсного состава радиоактивных аэрозолей рассчитано отношение активности нуклидов, собранных на основном фильтре ФПП-15-1,5, к их активности на дополнительном ФПП-70-0,3. Структура этого материала (диаметр волокон 7 мкм и стандартное сопротивление 0,3 мм вод. ст.) такова, что при использованной линейной скорости фильтрации воздуха (~17 см/с) он эффективно задерживает крупную фракцию аэрозолей и пропускает мелкодисперсную (субмикронную) фракцию на основной фильтр [7]. Из данных, представленных в табл. 2, следует, что радионуклиды чернобыльского генезиса ^{137}Cs и ^{241}Am в основном сосредоточены на дополнительном фильтре. Следовательно, они имеют размеры больше 1 мкм. Радионуклиды фукусимского генезиса (^{134}Cs , ^{136}Cs , ^{131}I) подобно естественным радионуклидам (^7Be , ^{210}Pb) преимущественно поступили на основной фильтр. Из ранее проведенных исследований в 30-километровой зоне отчуждения ЧАЭС известно [8], что ^7Be и ^{210}Pb оседают в основном на частицах размером от 0,3 до 0,7 мкм. Таким образом, ^{134}Cs , ^{136}Cs и ^{131}I , поступившие вследствие трансграничного переноса из Фукусимы, находились в воздухе локальной зоны объекта «Укрытие» с середины марта до середины апреля 2011 г. на субмикронных аэрозолях.

Таблица 2. Отношение активности радионуклидов основного фильтра к активности на дополнительном фильтре

Период экспозиции	^{137}Cs	^{241}Am	^7Be	^{210}Pb	^{131}I	^{134}Cs	^{136}Cs
15 – 30 марта	0,11	0,08	1,50	1,22	1,06	1,74	–
30 марта – 6 апреля	–	–	1,82	1,60	1,48	1,59	1,70
6 – 14 апреля	0,43	0,22	1,30	1,32	–	1,56	–
14 – 27 апреля	0,78	0,71	1,86	1,82	1,25	1,92	–

Кроме того, оценивали концентрацию пыли в воздухе локальной зоны объекта «Укрытие» и распределение ее на основном и дополнительном фильтрах. Результаты расчетов представлены в табл. 3. Средняя концентрация пыли за период наблюдений с 15 марта по 2 июня составила 0,022 мг/м³. Минимальная концентрация пыли 0,002 мг/м³ наблюдалась с 6 по 14 апреля. В это время в районе ЧАЭС шли интенсивные дожди. Суммарное количество атмосферных осадков было равно 20,6 мм при средней температуре 6,3 °С. Такие погодные условия способствовали снижению не только концентрации пыли в воздухе, но и объемной активности нуклидов ^{137}Cs , ^{241}Am , ^7Be , ^{210}Pb , ^{134}Cs , ^{131}I (см. рис. 2 и 3). Из последнего столбца в табл. 3, в котором приведены отношения массы пыли на основном фильтре к массе пыли на дополнительном, следует, что дополнительный фильтр принимает на себя основную пылевую нагрузку. Это способствует тому, что основной фильтр из ФПП-15-1,5 меньше забивается пылью, рост его сопротивления происходит медленнее и ресурс его работы увеличивается.

Таблица 3. Характеристики пыли в воздухе локальной зоны объекта «Укрытие»

Период экспозиции	Концентрация пыли в воздухе, мг/м ³	Отношение
15 – 30 марта	0,016	0,21
30 марта – 6 апреля	0,016	–
6 – 14 апреля	0,002	–
14 – 27 апреля	0,035	0,20
27 апреля – 16 мая	0,016	–
16 мая – 2 июня	0,049	–

Выводы

1. В период с 15 марта по 27 апреля 2011 г. в приземном слое воздуха локальной зоны объекта «Укрытие» выявлены техногенные радионуклиды ^{134}Cs , ^{136}Cs , ^{131}I , ^{132}I , ^{132}Te , содержащиеся в выбросах из аварийных блоков АЭС «Фукусима-1» и распространившиеся в северном полушарии в результате глобального переноса воздушных масс.
2. Максимальные концентрации радиоактивных аэрозолей фукусимского генезиса наблюдались с 30 марта по 14 апреля. Однако они не превышали допустимых уровней концентраций радионуклидов в воздухе для населения (^{131}I – 4 Бк/м³, ^{134}Cs – 0,8 Бк/м³) [9].
3. Вследствие высокого содержания ^{137}Cs в воздухе локальной зоны объекта «Укрытие» (около 1 мБк/м³) не удалось определить его концентрацию в аэрозолях, поступивших из Фукусимы.
4. Радиоактивные аэрозоли из Фукусимы не внесли значительного дополнительного вклада в дозовую нагрузку персонала, занятого выполнением работ на объекте «Укрытие».
5. Снижение концентрация радионуклидов ^{131}I и ^{134}Cs после 14 апреля указывает на отсутствие дополнительных мощных выбросов из аварийных блоков АЭС «Фукусима-1», достигавших высот глобального переноса воздушных масс. Более быстрое снижение активности ^{131}I , чем ^{134}Cs , частично связано с его коротким периодом полураспада (~8 сут).
6. Тожественное распределение на основном и дополнительном фильтрах естественных радионуклидов (^7Be и ^{210}Pb) и техногенных фукусимского генезиса (^{131}I и ^{134}Cs) указывает на то, что они находились в воздухе на носителях подобного субмикронного аэродинамического диаметра (0,4 – 0,7 мкм).
7. Радионуклиды чернобыльского генезиса (^{137}Cs , ^{154}Eu , ^{241}Am), как и в предыдущие годы, находились весной 2011 г. на аэрозолях с активностным медианным аэродинамическим диаметром более 1 мкм.
8. Применение дополнительного фильтрующего материала ФПП-70-0,3 позволило не только оценить дисперсный состав радиоактивных аэрозолей, поступивших из Фукусимы, но и снизить пылевую нагрузку на основной фильтр из материала ФПП-15-1,5.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. www.iaea.org/newscenter/news/2011/fukushima110311.html
2. www.nisa.meti.go.jp/english/files/en20110407-3.html
3. www.ctbto.org/verification-regime/the-11-march-japan-disaster
4. Барбашев С.В. Анализ последствий радиационного воздействия аварии на АЭС «Фукусима-1» на окружающую среду // 36. наук. ст. VII Міжнар. наук.-практ. конф. (Алушта 12 - 16 вересня 2011 р.). - Харків, 2011. - Т. 1. - С. 113 - 118.
5. www.aist.go.jp
6. www.atomic-energy.ru/news/2011/03/31/20647
7. Петрянов И.В., Козлов В.И., Басманов П.И., Огородников Б.И. Волокнистые фильтрующие материалы ФП. – М.: Знание, 1968. – 80 с.
8. Огородников Б.И., Скитович В.И., Будыка А.К. Дисперсный состав искусственных и естественных радиоактивных аэрозолей в 30-километровой зоне ЧАЭС в 1986 – 1996 гг. // Радиационная биология. Радиоэкология. – 1998. – Т. 38, вып. 6. – С. 889 – 892.
9. Нормы радиационной безопасности Украины НРБУ-97. – К., 1997.

О. К. Калиновський, В. О. Краснов, Б. І. Огородников

РАДІОАКТИВНІ АЕРОЗОЛІ ФУКУСИМИ В ЧОРНОБИЛІ

Представлено результати визначення концентрації радіоактивних аерозолів у приземному шарі повітря в локальній зоні об'єкта "Укриття" навесні 2011 р. У зразках проб повітря виявлено техногенні радіонукліди ^{134}Cs , ^{136}Cs , ^{131}I , ^{132}I , ^{132}Te , що містяться у викидах з аварійних блоків АЕС «Фукусима-1» та поширилися в північній півкулі. Показано, що радіоактивні аерозолі з Фукусими не

внесли значного додаткового внеску в дозове навантаження персоналу, зайнятого виконанням робіт на промайданчику об'єкта «Укриття», та їхні концентрації не перевищили допустимі рівні концентрації радіонуклідів у повітрі для населення. На підставі дисперсного аналізу радіонуклідів виявлено, що природні радіоізотопи (^7Be , ^{210}Pb) і радіонукліди фукусімського генезису (^{131}I , ^{134}Cs) знаходяться на носіях подібного аеродинамічного діаметра (0,4 – 0,7 мкм).

Ключові слова: АЕС «Фукусіма-1», аварія, радіоактивний викид, радіоактивні аерозолі, об'єкт «Укриття», природні радіонукліди, концентрація аерозолів, дисперсний склад.

O. K. Kalynovsky, V. O. Krasnov, B. I. Ogorodnikov

FUKUSHIMA RADIOACTIVE AEROSOLS IN CHERNOBYL

The results of determining of radioactive aerosol concentrations in the lower atmosphere in the local zone of the “Ukryttya” object in the spring of 2011 are presented. Man-made radionuclides ^{134}Cs , ^{136}Cs , ^{131}I , ^{132}I , ^{132}Te , contained in the releases from accident units of the NPP “Fukushima-1”, was revealed in air samples. Aerosols was distributed in the North hemisphere. It is shown that the radioactive aerosols from Fukushima did not have a significant additional contribution to the dose of personnel engaged in the performance of work on the local zone of the “Ukryttya” object. Their concentrations did not exceed the permissible levels of radionuclides in the air to the public. Based on the analysis of dispersed radionuclides found that natural radionuclides (^7Be , ^{210}Pb) and radionuclides of the Fukushima genesis (^{131}I , ^{134}Cs) are located on carriers of similar aerodynamic diameter (0.4 – 0.7 μm).

Keywords: NPP “Fukushima-1”, accident, radioactive release, radioactive aerosols, γ -spectrometric measurements, “Ukryttya” object, natural radionuclides, aerosol concentrations, aerosol size distribution.

Поступила в редакцію 01.09.11