

ОБРАЗОВАНИЕ РАДИОЛИТИЧЕСКОГО ВОДОРОДА В ПОМЕЩЕНИИ 001/3 ОБЪЕКТА «УКРЫТИЕ»

Н. И. Панасюк, С. С. Подберезный, Г. В. Левин, И. А. Литвин

Институт проблем безопасности АЭС НАН Украины, Чернобыль

С. А. Кабакчи

Институт ядерных реакторов, РНЦ "Курчатовский институт", Москва

В. М. Шестопапов

*Научно-инженерный центр радиогидрогеоэкологических полигонных исследований
НАН Украины, Киев*

Показано, что за год в процессе радиолиза воды, локализованной в помещении 001/3, может образоваться порядка 4 м³ водорода. Это количество составляет около 1 % объема воздуха над скоплениями воды. Учитывая недоступность для отбора проб воздуха, а также закрытость и слабую проветриваемость этого помещения, полученные результаты должны привести к организации соответствующего мониторинга воздушного пространства и другим мероприятиям, повышающим безопасность объекта «Укрытие» и строящегося над ним нового безопасного конфайнмента.

Ключевые слова: ЧАЭС, объект «Укрытие», радиолиз, образование водорода, мониторинг воздушного пространства.

Общая характеристика помещения 001/3

Неорганизованное скопление высокоактивных блочных вод в помещении 001/3 самое большое внутри объекта "Укрытие" [1]. Длина помещения 57 м, ширина до отметки минус 1,485 м - 6 м, на отметке пола - минус 2,6 м, ширина пола составляет 3 м за счет откоса со стороны ряда У. Проектная отметка пола минус 2,60 м, потолка +0,25 м. В настоящее время доступ в помещение 001/3 затруднен. Прямого доступа к нему нет, так как лестница по ряду У между осями 51 - 51' на глубине одного пролета залита водой. Кроме того, лестницу от основного помещения отделяет стена, в которой имеется дверь, но она на три четверти залита водой. Исследования радиоактивного загрязнения воды и донных осадков в этом помещении проводятся через пробуренную в полу вышерасположенного помещения 01/3 скважину (точка наблюдения (т.н.) 30 [2]). Уровень воды в помещении постоянно держится на отметке минус 0,9 в строительных отметках или 113, 1 м в Балтийской системе высот. Столб воды в т.н. 30 равен ~0, 9 м. При ликвидации аварии часть помещений оказалась залитой бетоном, что существенно изменило геометрию свободного пространства; мощность наплыва бетона в т. н. 30 составляет 0,14 м (рис. 1).

На полу помещения 001/3 (на кровле наплыва бетона) образовался слой донных отложений. По данным работы [1] отложения представлены двумя слоями. Верхний слой в т.н. 30 мощностью 0,17 - 0,26 м представляет собой текучие илы черного цвета с характерным запахом сероводорода. Ниже залегает слой уплотненных донных осадков, представленных илистыми отложениями с большим содержанием песка. Мощность этого слоя 0,42 м. По нашим подсчетам, объем донных отложений ~ 96 м³, что соответствует массе 150 т; массовая доля воды в иле 50 %. Плотность ила, $d_{\text{обводн}} = 1,6 \text{ г/см}^3$, была определена в лабораторных условиях в пробе после отстаивания донных осадков с нарушенной при пробоотборе структурой в течение 7 сут в мерной емкости. Плотность сухого грунта 1,07 г/см³, пористость достигает 60 %.

Объем воды и ила в помещении 001/3 рассчитывался с учетом бетонного наплыва на полу помещения. Объем воды в помещении 001/3 по нашей оценке $V_{\text{H}_2\text{O}} \sim 300 \text{ м}^3$. Объем воздуха над уровнем воды 370 м³.

Образование водорода в результате радиолиза воды в помещении 001/3

Расчет проводился в рамках следующей простой модели.

1. Полагается, что реальная система состоит из двух фаз – ила слоем 62 см (вода и твердые частицы в соотношении 1 : 1) и воды над илом слоем 90 см.

2. Предполагается, что радиолиз водной фазы происходит в результате поглощения энергии распада всех находящихся в растворенном виде радионуклидов, а также под действием γ -излучения радионуклидов ($^{137}\text{Cs} + ^{137}\text{Ba}$), инкорпорированных в ил. Последний рассматривается как своеобразный внешний протяженный источник γ -излучения с равномерно распределенной по объему активностью (рис. 2).

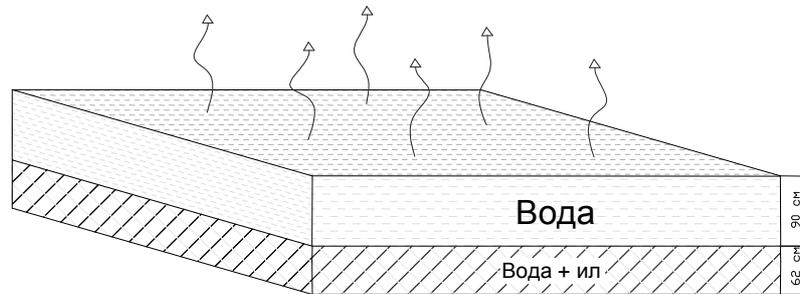


Рис. 2. Модель помещения 001/3, использованная для расчета радиолиза воды под действием γ -излучения радионуклидов, содержащихся в иле.

3. На радиолиз в фазе ила идет доля энергии распада всех радионуклидов, содержащихся в иле, пропорциональная массовой доле воды (консервативный вариант) в фазе ила.

4. Мощность дозы, поглощенной в единицу времени единицей массы фазы (вода, ил), содержащей радионуклиды, определяли в предположении, что они равномерно распространены в фазе, а излучение радионуклидов поглощается в ней полностью.

Для i -го α -излучающего радионуклида

$$P(\alpha)_i = Q_{\alpha i} \cdot \bar{E}_i, \text{ МэВ}/(\text{г}\cdot\text{с}), \quad (1)$$

где $Q_{\alpha i}$ - удельная активность, Бк/г; \bar{E}_i - энергия α -излучения i -го радионуклида, МэВ/распад. Мощность поглощенной дозы от смеси α -излучателей равна

$$P(\alpha) = \sum_i P(\alpha)_i, \text{ МэВ}/(\text{г}\cdot\text{с}). \quad (2)$$

Энергии α -частиц радионуклидов ^{238}Pu , ^{239}Pu и ^{240}Pu варьируются от 5,11 до 5,50 МэВ/распад. Для расчетов мощности поглощенной дозы α -излучения примем в качестве консервативного варианта $E_{\alpha} = 5,50$ МэВ/распад. В этом случае формула (2) преобразуется в соотношение

$$P(\alpha) = E_{\alpha} \sum_i Q_{\alpha i}, \text{ МэВ}/(\text{г}\cdot\text{с}). \quad (3)$$

Для содержащегося в водной и иловой фазах i -го материнского γ - и β -излучателя (в общем случае порождающего цепочку радиоактивного распада) мощность поглощенной дозы определяется как

$$P(\gamma, \beta)_i = Q_i^0 \exp[-\lambda_i t] \left(\sum_{ij} I_j^{i,j} + \sum_{ij} \bar{E}_{\beta} \bar{n}_{\beta} \right), \text{ МэВ}/(\text{г}\cdot\text{с}), \quad (4)$$

где Q_i^0 – удельная активность i -го материнского нуклида, Бк/г; λ_i - постоянная распада i -го материнского нуклида; $I_j^{i,j}$ – энергетическая γ -постоянная i -го материнского и всех j -х дочерних радионуклидов, МэВ/(с·Бк); \bar{E}_{β} - средняя энергия β -спектра материнского и всех дочерних радионуклидов, МэВ/распад; n_{β} - доля β -распада со средней энергией E_{β} ; t – про-

межутков времени, для которого делается расчет, с. Величину в скобках в правой части формулы (4) называют удельной энергетической постоянной цепочки i -го материнского нуклида и обозначают как A_i . В табл. 3 приведены значения A_i для радионуклидов, содержащихся в водной и иловой фазах.

Мощность поглощенной дозы от смеси γ - и β -излучателей равна

$$P(\gamma, \beta) = \sum_i P(\gamma, \beta)_i, \text{ МэВ/(г}\cdot\text{с)}. \quad (5)$$

Таблица 3. Удельные энергетические постоянные цепочек для ^{90}Sr и ^{137}Cs [4]

Нуклид	$(t_{1/2})_i$	$\lambda_i, \text{ с}^{-1}$, материнского нуклида	$A_i, \text{ МэВ/(с}\cdot\text{Бк)}$
$^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$	28 лет (64, 3 ч)	$7,848 \cdot 10^{-10}$	1,126
$^{137}\text{Cs} + ^{137}\text{Ba}$	30 лет (2, 6 мин)	$7,325 \cdot 10^{-10}$	0,243

Учитывая большие времена полураспада содержащихся в воде и иле радионуклидов, при подсчете накопления водорода за времена до года влиянием изменения удельной активности на мощность поглощенной водой дозы пренебрегали, т.е. значение экспоненты в выражении (4) принимали равным единице.

5. Принималось в качестве консервативного варианта, что радиационно-химический выход молекулярного водорода $G(\text{H}_2)$ равен выходу при радиоллизе чистой воды под действием соответствующего вида излучения. Для β - и γ -излучения $G(\text{H}_2)_{\beta,\gamma} = 0,45$, а для α -частиц $G(\text{H}_2)_{\alpha} = 1,00$ молекула/100 эВ поглощенной в воде энергии [4].

6. Количество водорода $N(\text{H}_2)_1$, образующегося за время t , в единице массы облучаемой воды (блочной или в составе ила), рассчитывали по формуле

$$N(\text{H}_2)_1 = a \{ (G(\text{H}_2)_{\alpha}/100N_A) E_{\alpha} \sum_i 10^6 Q_{\alpha i} + (G(\text{H}_2)_{\beta,\gamma}/100N_A) \sum_i 10^6 P(\gamma, \beta)_i \} t, \text{ моль/г}, \quad (6)$$

где N_A = число Авогадро, t – время, с; a – массовая доля воды в облучаемой системе (для блочной воды $a = 1,00$; для ила $a = 0,42$); 1 моль H_2 /(г) соответствует $22,4 \text{ дм}^3 \text{ H}_2$ /(г) при нормальных условиях. REM: 10^6 – переход от мегаэлектрон-вольта к электрон-вольту.

7. Количество водорода $N(\text{H}_2)_2$, образующегося за время t в единице массы воды, облучаемой слоем ила в качестве внешнего источника γ -излучения, проведем в следующем консервативном приближении.

$$N(\text{H}_2)_2 = (G(\text{H}_2)_{\beta,\gamma}/100N_A) \cdot (P(\gamma)_{\text{Cs}}) t, \text{ моль/г}, \quad (7)$$

где $P(\gamma)_{\text{Cs}}$ – мощность поглощенной дозы γ -излучения $^{137}\text{Cs} + ^{137}\text{Ba}$ в слое воды над илом. Для расчета ее величины полагаем, что весь цезий-137, содержащийся в иле, сосредоточен на поверхности раздела "ил - вода" и создает поверхностную активность $q_{\text{пов}}$. Принимаем следующую геометрию: прямоугольник с площадью поверхности раздела "ил - вода" в помещении 001/3 на отметке -1,485 м, т.е. длиной $l = 57,0$ м и шириной $b = 6,0$ м; толщина слоя воды принимается равной $h = 0,9$ м (см. рис. 2). Максимальная мощность дозы $(P(\gamma)_{\text{Cs}})_{\text{макс}}$ будет в точке, находящейся на пересечении диагоналей прямоугольника при $h = 0$ м; мощность дозы у поверхности воды над точкой пересечения диагоналей (т.е. при $h = 0,9$ м) будет $P_{h=0,9}$. Для расчетов образования водорода примем, что мощность дозы в любой точке в слое воды равна мощности дозы на полувысоте слоя облучаемой воды.

$$P(\gamma)_{\text{Cs}} = ((P(\gamma)_{\text{Cs}})_{\text{макс}} + (P(\gamma)_{\text{Cs}})_{h=0,9})/2. \quad (8)$$

При массе ила 150 т и удельной активности $^{137}\text{Cs} + ^{137}\text{Ba}$, содержащихся в донных осадках (см. табл. 2), эффективная удельная поверхностная активность составит $q_{\text{пов}} = 1,32 \cdot 10^8 \text{ Бк/см}^2$. Расчет мощности экспозиционной дозы для плоского источника проводили

с использованием кода [MicroShield v5.05 (5.05-00430) Washington Group International]. Мощность экспозиционной дозы на полувысоте слоя воды над илом составляет $D = 0,036 \text{ Р/с}$. Для гамма-излучения экспозиционная $D = 1 \text{ Р}$ соответствует поглощенной дозе в воде $0,95 \text{ рад}$ ($1 \text{ рад} = 0,01 \text{ Гр} = 6,24 \cdot 10^{13} \text{ эВ/г}$). Таким образом, $P(\gamma)_{\text{Cs}} = 2,16 \cdot 10^{12} \text{ эВ/(г}\cdot\text{с)}$.

В табл. 4 приведены результаты расчетов, проведенных с использованием уравнений (6), (7) и (8) с параметрами, приведенными в табл. 1, 2 и 3.

В табл. 4 приведены результаты расчетов, проведенных с использованием уравнений (6) и (7), с параметрами, приведенными в табл. 1, 2 и 3.

Таблица 4. Количество водорода, образующегося в блочной воде (масса 300 т) и обводненном иле (масса – 150 т) в течение 1 года ($t = 3,15 \cdot 10^7 \text{ с}$)

Источник	$N(\text{H}_2)$, моль/г	$V(\text{H}_2)$, ндм ³ /г	$V(\text{H}_2)$ из всего слоя, ндм ³
Вода над слоем ила за счет поглощения энергии растворенных радионуклидов	$1,2 \cdot 10^{-9}$	$2,78 \cdot 10^{-8}$	~8
Вода над слоем ила за счет поглощения γ -излучения, исходящего из слоя ила	$5,0 \cdot 10^{-7}$	$1,1 \cdot 10^{-5}$	~3300
В воде в составе ила	$2,7 \cdot 10^{-7}$	$6,1 \cdot 10^{-6}$	~900
Всего			~4200

Таким образом, в помещении 001/3 в течение года может образовываться 4 м^3 водорода H_2 . Это количество составляет около 1 % объема воздуха между уровнем воды в помещении и потолком (370 м^3), что выше контрольного уровня концентрации водорода в объекте «Укрытие», равного 0,8 % [5]. По данным [4], такие соотношения представляют реальную опасность. Учитывая, что помещение принудительно не проветривается, можно предположить, что водород имеет возможность накапливаться в этом пространстве в течение нескольких лет. Также следует учитывать, что концентрации радионуклидов в воде с каждым годом возрастают и условия радиоактивного загрязнения воды и ила в т. н. 30 могут не в полной мере характеризовать радиоактивное загрязнение воды и донных осадков помещения 001/3 в целом. И поэтому реальные концентрации водорода и, следовательно, опасность его накопления может быть выше. Кроме того, возведение нового безопасного конфайнмента над объектом «Укрытие» может привести к снижению воздухообмена в помещениях, что повлечет за собой повышение опасности от накопления радиолитического водорода.

Выводы

1. Накопление радиолитического водорода в полностью закрытых помещениях объекта «Укрытие» представляет реальную опасность.

2. В связи с этим в помещении 001/3 и других помещениях такого типа необходима организация мониторинга концентраций водорода в воздухе по аналогии с центральным залом объекта «Укрытие». И как первоочередное мероприятие необходимо предусмотреть разовое проветривание данного помещения.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Панасюк Н. И., Скорбун А. Д., Подберезный С. С. и др. Подсчет количества радионуклидов в донных осадках помещения 001/3 объекта "Укрытие" // Проблеми безпеки атомних електростанцій і Чорнобиля, 2005 - Вип. 2. - С. 46 - 48.
2. Контроль неорганизованных выбросов из объекта "Укрытие": (Отчет о НИР, договор 154/04) / ИПБ АЭС НАН Украины. - Чернобыль, 2004.
3. Контроль неорганизованных выбросов из объекта "Укрытие": (Отчет о НИР, договор 267/08) / ИПБ АЭС НАН Украины. - Чернобыль, 2008.

4. Кабакчи С.А., Булгакова Г.П. Радиационная химия в ядерном топливном цикле. - М.: РХТУ им. Д. И. Менделеева, 1998.
5. Анализ текущей безопасности объекта "Укрытие" и прогнозные оценки развития ситуации: (Отчет о НИР) / Науч. рук. А. А. Боровой. - Арх. № 3836. - Чернобыль: МНТЦ "Укрытие", 2001. - 337с.

УТВОРЕННЯ РАДІОЛІТИЧНОГО ВОДНЮ В ПРИМІЩЕННІ 001/3 ОБ'ЄКТА «УКРИТТЯ»

**М. І. Панасюк, С. С. Підберезний, Г. В. Левін, І. А. Литвин,
С. А. Кабакчі, В. М. Шестопалов**

Показано, що за рік у процесі радіолізу води, локалізованої в приміщенні 001/3 може утворитися близько 4 м³ водню - це біля 1 % об'єму повітря над скупченнями води. Ураховуючи недоступність для відбору проб повітря, а також закритість і слабку провітрюваність цього приміщення, отримані результати повинні привести до організації відповідного моніторингу повітряного простору та інших заходів, що підвищують безпеку об'єкта «Укриття» й нового безпечного конфайнмента, який будується над ним.

Ключові слова: ЧАЕС, об'єкт «Укриття», радіоліз, утворення водню, моніторинг повітряного простору

FORMATION OF RADIOLYTIC HYDROGEN IN PLACEMENT 001/3 OF THE OBJECT «UKRUTTYA»

**M. I. Panasyuk, S. S. Pidberezniy, G. V. Levin, I. A. Lytvyn,
S. A. Kabakchi, V. M. Shestopalov**

In this article is shown, that for a year in process of radiolysis the water located in placement. 001/3 it can be formed about 4 m³ of hydrogen. This quantity makes 1 % from volume of air above the water accumulation. Taking into account inaccessibility to sampling air, and also confined and poor ventilation this placement the results received should result in the organization of corresponding monitoring air space and other actions raising safety of object "Ukruttya" and builded above it new safe konfaynment .

Keywords: ChNPP, object "Ukruttya", radiolysis, formation of hydrogen, monitoring of air space.

Поступила в редакцію 07.07.09