

## ИССЛЕДОВАНИЕ ХАРАКТЕРИСТИК АЭРОЗОЛЕЙ В СОДЕРЖАЩИХ ТОПЛИВО ПОМЕЩЕНИЯХ ОБЪЕКТА «УКРЫТИЕ»

**В. П. Бадовский, А. А. Ключников, Т. А. Кравчук,  
А. Э. Меленевский, В. Н. Щербин**

*Институт проблем безопасности АЭС НАН Украины, Чернобыль*

В 2008 – 2009 гг. проведено изучение характеристик радиоактивных аэрозолей в содержащих топливо помещениях 304/3, 305/2 объекта «Укрытие». Исследовалось распределение объемных концентраций аэрозолей, содержавших долгоживущие альфа- и бета-излучатели, отдельно  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{212}\text{Pb}$  по трем группам с аэродинамическими диаметрами  $\geq 2,0$  мкм;  $\geq 0,6$ , но  $\leq 2,0$  мкм и  $\leq 0,6$  мкм. Отношения концентраций аэрозолей с  $^{137}\text{Cs}$  к концентрации аэрозолей со всеми бета-излучателями для групп с диаметром  $\geq 0,6$  и  $\leq 0,6$  мкм составили 0,58 и 0,72 соответственно, а отношения концентраций аэрозолей со всеми бета-излучателями к концентрациям аэрозолей с альфа-излучателями для тех же групп составили 110 и 300 соответственно. Выявлена тенденция роста во времени концентрации мелкодисперсной фракции аэрозолей с альфа-излучателями. Скорость ее  $10^3 - 10^4$  топливных частиц объемом в  $10^{-3}$  мкм<sup>3</sup> в месяц на 1 м<sup>3</sup> анализируемого объема воздуха. Двухмодальное распределение аэрозолей по размерам хорошо описывает экспериментальные данные. В помещении 305/2 выявлена заниженная (в сравнении с помещением 304/3) концентрация продуктов распада  $^{222}\text{Rn}$  ряда.

*Ключевые слова:* радиоактивные аэрозоли объекта «Укрытие», субмикронные аэрозоли, виртуальный импактор.

### Введение

В развитие ранее выполненных работ по мониторингу радиоактивных аэрозолей в некоторых подреакторных помещениях объекта «Укрытие» [1] в настоящей работе проведены измерения концентрации и дисперсного состава радиоактивных аэрозолей в содержащих топливо помещениях 304/3 и 305/2. Согласно современным представлениям в подреакторном помещении 305/2 содержится в различных модификациях большая часть разведенных скоплений топливосодержащих материалов (ТСМ) аварийного реактора, а в граничащем с ним помещении 304/3, наоборот, предполагается присутствие только лавообразных ТСМ (ЛТСМ). Поэтому создалась уникальная возможность в одном исследовании оценить, если существуют, различия во временном поведении ТСМ различного состава.

### Оборудование и методика измерений

Описание использовавшегося в исследованиях устройства отбора проб и измерительного комплекса АСиМА дано в работе [2]. Схема организации отборов воздуха в настоящей работе представлена на рис. 1.

Из помещения 304/3 отбор производился через введенную в обсадную трубу скважины В.12.76 дополнительную трубу диаметром 11 см и длиной 3 м. (Устье скважины находится в помещении 318/2.) Из помещения 305/2 пробы воздуха отбирались через трубу того же диаметра длиной 12,3 м, проходившую также из помещения 318/2 через вакуумно-уплотненную дверь коридора 308/2 и сам коридор к имевшемуся сквозному проему в бетонной перегородке между коридором и помещением 305/2. Полученные в этом случае результаты отборов будем условно относить к помещению 305/2.

Само устройство отбора в обоих случаях располагалось в помещении 318/2. Заметим, что организация отбора проб воздуха из помещения 305/2 отличалась от отбора из помещения 318/2 в работе [1] только тем, что дверь коридора 308/2 ранее была все время открыта, и помещение 318/2 через коридор 308/2 было соединено с помещением 305/2.

Особенностью работы устройства отбора был подбор оборотов двигателей вентиляторных турбин таким образом, чтобы удельный расход воздуха через импактор для каждого из обследованных помещений составлял одинаковую величину  $2,85 \pm 0,2$  м<sup>3</sup>/мин.

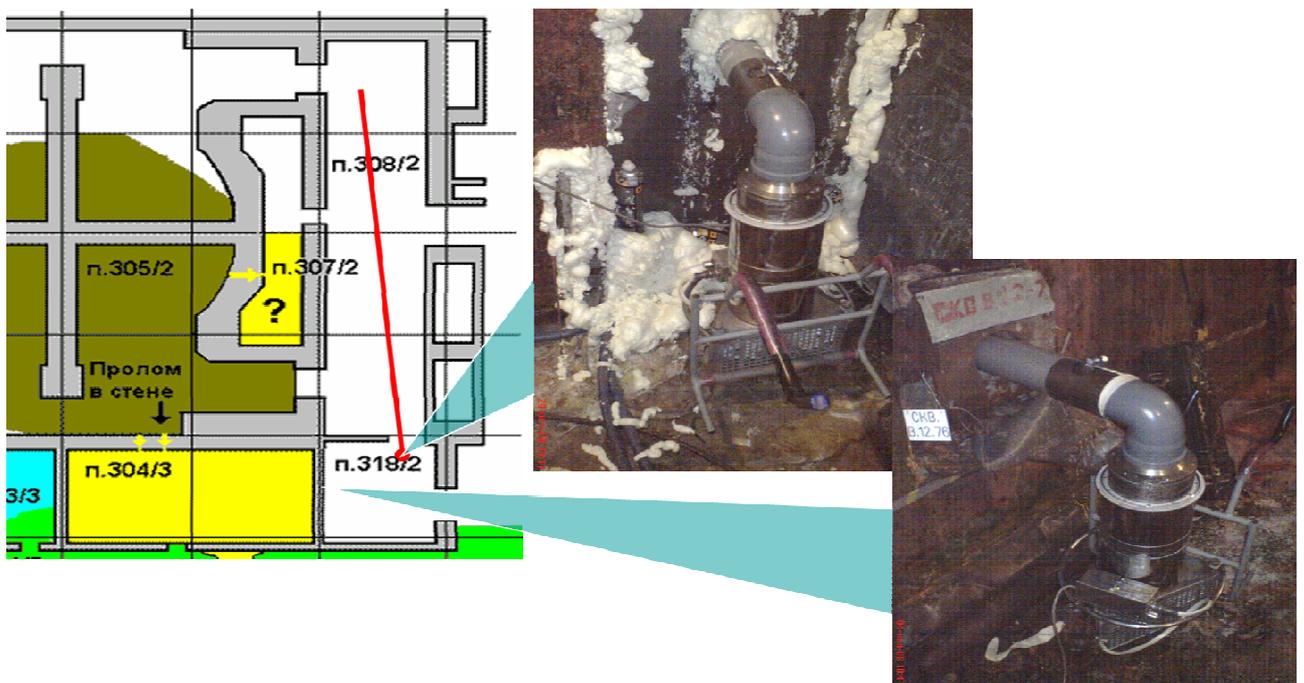


Рис. 1. Схема организации отбора воздуха из основных помещений с ТСМ.

Измерительные посты АСiМА, в отличие от описанных ранее, содержали как схемы быстрых альфа-бета-квазисовпадений с разрешающим временем 1,6 мкс (несших информацию о числе одновременно зарегистрированных каждым из постов альфа- и бета-частиц, связанных с распадом дочерних продуктов  $^{220}\text{Rn}$  ряда), так и схемы медленных квазисовпадений с разрешающим временем 2,0 мс (регистрировавших аналогичные излучения дочерних радионуклидов  $^{222}\text{Rn}$  ряда). Измерения соотношения концентраций продуктов распада обоих радоновых рядов производили после двухчасовой выдержки аспирированных фильтров, а измерения концентрации  $^{212}\text{Pb}$  и долгоживущих альфа- и бета-излучателей аналогично работе [1].

Таким образом, в измерениях на фильтрах одной аспирации извлекалась отдельная информация об объемной концентрации радионуклидов альфа- и бета-излучателей, продукта распада  $^{137}\text{Cs} - ^{137}\text{Ba}$  как гамма-излучателя (в последующем изложении дочерний продукт  $^{137}\text{Ba}$  не будет упоминаться) для различающихся по аэродинамическим диаметрам (АД) трех групп аэрозолей (группа 1 АД  $\geq 2,0$  мкм; группа 2 АД  $\geq 0,6$ , но  $\leq 2,0$  мкм и группа 3 АД  $\leq 0,6$  мкм) и концентрации аэрозолей, содержавших дочерний продукт распада  $^{220}\text{Rn}$  ряда  $^{212}\text{Pb}$  (а в ряде случаев и обоих радоновых рядов).

### Результаты измерений и их обсуждение

На рис. 2 и 3 представлены результаты измерения объемной концентрации различных по АД групп радиоактивных аэрозолей, содержавших долгоживущие альфа- и бета-активные радионуклиды,  $^{137}\text{Cs}$  как гамма-излучатель и радионуклид  $^{212}\text{Pb}$ .

На рис. 2 и 3 по горизонтальной оси указаны даты отборов проб; по вертикальной - объемная концентрация радиоактивных аэрозолей, Бк/м<sup>3</sup>; вертикальными линиями - границы раздела измерений по времени отбора на два интервала.

На первом этапе обработки результатов измерений проведен их корреляционный анализ. Расчеты выполнены отдельно для пар, составленных из групп 1 и 2 всех видов аэрозолей, содержавших долгоживущие радионуклиды (пары  $\alpha_1 - \alpha_2$ ;  $\beta_1 - \beta_2$ ;  $\gamma_1 - \gamma_2$ ); пар, составленных из суммарных показаний для групп 1 и 2 и группы 3 аэрозолей тех же видов ( $(\alpha_1 + \alpha_2) - \alpha_3$ ;  $(\beta_1 + \beta_2) - \beta_3$ ;  $(\gamma_1 + \gamma_2) - \gamma_3$ ), и пары, включавшей аэрозоли с  $^{212}\text{Pb}$  и группу 3 аэрозолей с долгоживущими альфа-излучателями. Полученные результаты представлены в табл. 1.

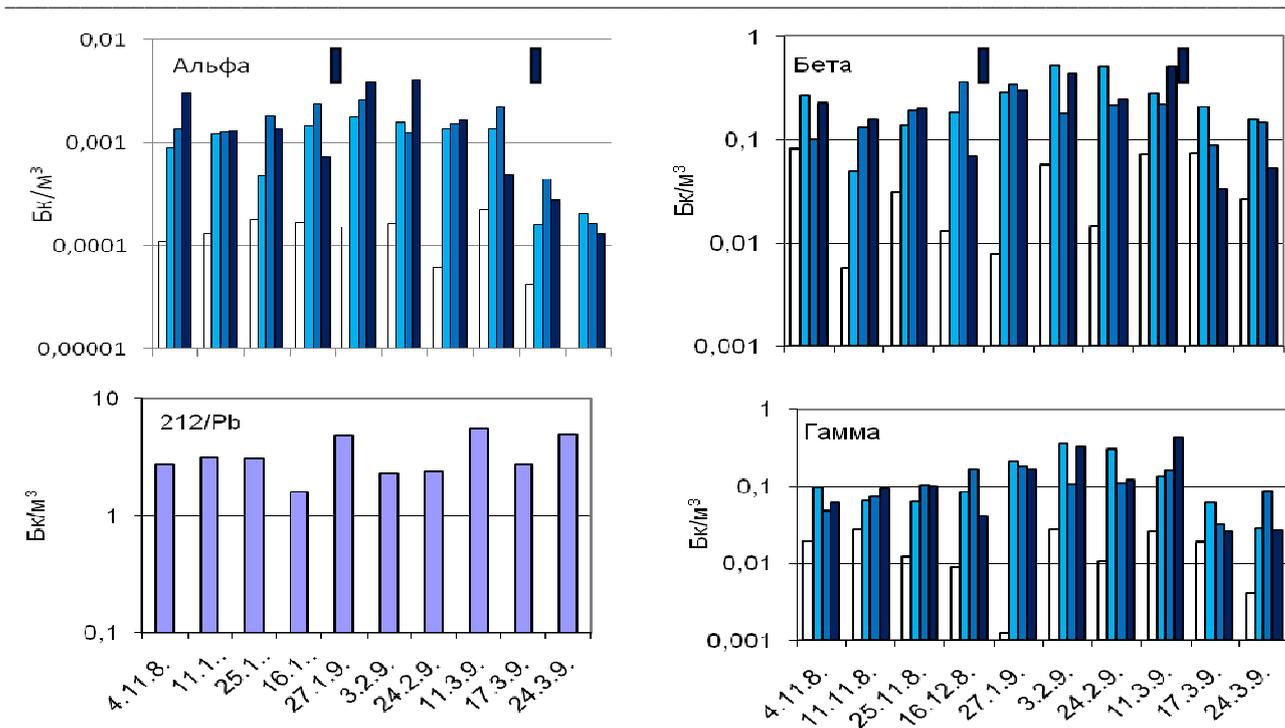


Рис. 2. Объемная концентрация различных по АД групп радиоактивных аэрозолей с долгоживущими альфа- и бета-активными радионуклидами, <sup>137</sup>Cs и <sup>212</sup>Pb в помещении 304/3:  
 □ – аэрозоли с АД ≤ 0,4 ± 0,1 мкм (группа 32); ■ – аэрозоли с АД ≤ 0,6 ± 0,1 мкм (группа 3);  
 ■ – аэрозоли с АД ≥ 0,6 ± 0,1 мкм, но ≤ 2,0 ± 0,2 мкм (группа 2); ■ – аэрозоли с АД ≥ 2,0 ± 0,2 мкм (группа 1).

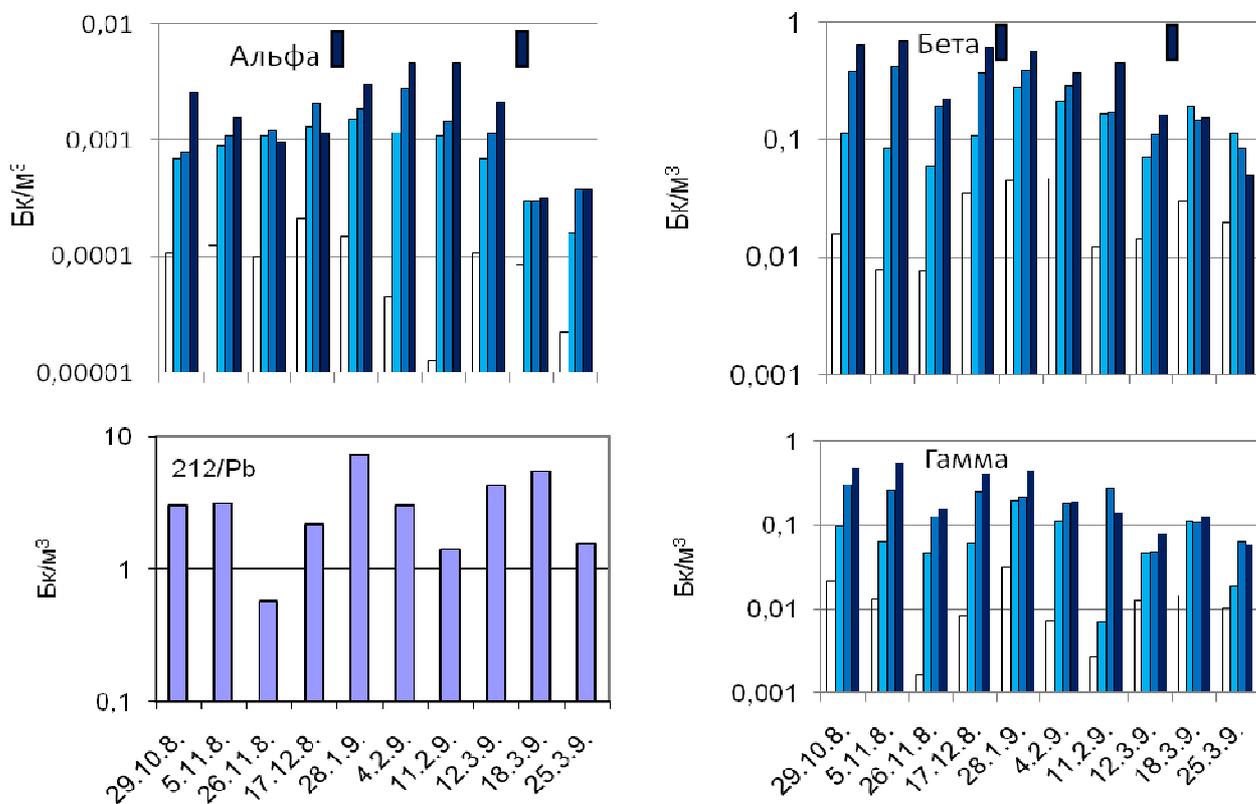


Рис. 3. Объемная концентрация различных по АД групп радиоактивных аэрозолей с долгоживущими альфа- и бета-активными радионуклидами, <sup>137</sup>Cs и <sup>212</sup>Pb в помещении 305/2 (обозначения аналогичны рис. 2).

Большие значения найденных коэффициентов корреляции между всеми парами результатов измерений для групп 1 и 2 свидетельствуют как о корректности выполненных измерений, так и существовавшей причинной связи между показаниями для данных групп каждого из анализировавшихся видов аэрозолей.

Поэтому корреляции с результатами для группы 3 рассчитывались относительно соответствующих суммарных значений для 1 + 2. Величины полученных в этом случае коэффициентов корреляции для каждого из исследованных видов аэрозолей оказались также положительными, но систематически меньше соответствующих значений для пар 1 и 2. Простейшим объяснением этому может служить гипотеза, что группы аэрозолей 3 и 1 + 2 представляли собой большей частью двухмодальную смесь аэрозолей, различавшихся происхождением.

**Таблица 1. Значения коэффициентов корреляции между объемными концентрациями для групп 1 и 2; (1 + 2) и 3 аэрозолей с долгоживущими радионуклидами и группы 3 этих аэрозолей с аэрозолями, содержащими  $^{212}\text{Pb}$**

Вид радиоактивных аэрозолей и его группы	Помещение	
	304/3	305/2
$\alpha_1 - \alpha_2$	0,89	0,92
$\beta_1 - \beta_2$	0,94	0,97
$\gamma_1 - \gamma_2$	0,95	0,96
$(\alpha_1 + \alpha_2) - \alpha_3$	0,54	0,69
$(\beta_1 + \beta_2) - \beta_3$	0,75	0,71
$(\gamma_1 + \gamma_2) - \gamma_3$	0,68	0,74
$^{212}\text{Pb} - \alpha_3$	- 0,12	0,39

Корреляционная связь между альфа-излучателями группы 3 и соизмеримыми с ними по АД аэрозолями, содержащими  $^{212}\text{Pb}$  для помещения 304/3, отсутствовала. Объяснить это можно различием источников данных аэрозолей. В случае помещения 305/2 оба вида аэрозолей попадали на фильтры отбора проб в помещении 308/2 с воздухом, прошедшим из помещения 305/2 через проем сравнительно малого сечения. Поэтому в вариации концентраций групп аэрозолей, близких по АД, возникла некоторая корреляционная связь.

Таким образом, можно считать, что экспериментально выявившаяся изменчивость результатов отдельных измерений определяется изменениями объемной концентрации соответствующих аэрозолей под влиянием набора артефактов, часто не поддающихся однозначной интерпретации. В конкретном случае существенных уменьшений объемных концентраций для всех групп различных видов аэрозолей (в сравнении с предыдущими отборами), выявившихся для помещений 304/3 и 305/2 соответственно 17, 24 и 18, 25 марта 2009 г., их причина была связана с зарегистрированным возрастанием влажности воздуха в этих помещениях. Правда, согласно работе [3], последняя должна была бы в первую очередь повлиять на концентрации более крупных из анализировавшихся аэрозолей и тем самым привести к большей деформации измеренного спектра размеров.

Далее был проведен регрессионный анализ взаимосвязи между объемными концентрациями аэрозолей, суммированных по группам 1 и 2 и между группой 3 для пар с альфа- и бета-излучателями а также альфа- и бета-излучателями и  $^{137}\text{Cs}$  как гамма-излучателем.

Результаты анализа представлены в табл. 2.

Как следует из таблицы, проявилась тесная взаимосвязь между суммарными объемными концентрациями групп 1 и 2 и отдельно группы 3 всех рассматриваемых пар аэрозолей с альфа- и бета-излучателями и  $^{137}\text{Cs}$  как гамма-излучателем. Наличие в уравнениях регрессии для двух пар анализировавшихся видов аэрозолей ( $\beta_1 + \beta_2$ ) – ( $\alpha_1 + \alpha_2$ ), ( $\beta_3 - \alpha_3$ ) и ( $\gamma_1 + \gamma_2$ ) – ( $\alpha_1 + \alpha_2$ ), ( $\gamma_3 - \alpha_3$ ), заметных по величине, но существенно различающихся между группами положительных аддитивных членов, свидетельствует о присутствии среди регистрировавшихся радиоактивных аэрозолей части их, содержавшей в своем составе только бета-

излучатели (для топлива аварийного реактора с 23-летней выдержкой основными из них являлись  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{90}\text{Y}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{147}\text{Pm}$ ,  $^{154}\text{Eu}$ ), причем, как будет видно из дальнейшего, присутствие среди них радионуклида  $^{137}\text{Cs}$  являлось обязательным. Исходя из различия в величине аддитивных членов, можно говорить о наличии у группы самых мелких аэрозолей примерно четырехкратного превышения концентрации тех из них, которые содержали только бета-излучатели. Одновременно наличие положительных аддитивных членов указывает, что аэрозоли, содержавшие альфа-излучатели, могли существовать только в агрегатах совместно с бета-излучателями (в виде топливных частиц).

**Таблица 2. Данные регрессионного анализа для суммарных объемных концентраций групп 1 и 2 и отдельно группы 3 пар аэрозолей, содержавших альфа- и бета-излучатели и  $^{137}\text{Cs}$  как гамма-излучатель (помещения 304/3 и 305/2)**

Корреляционные пары	304/3			305/2		
	Коэффициент при линейном члене	Аддитивный член	Коэффициент корреляции, $r^2$	Коэффициент при линейном члене	Аддитивный член	Коэффициент корреляции, $r^2$
$(\beta_1 + \beta_2) - (\alpha_1 + \alpha_2)$	48	54	0,95	51	61	0,94
$(\beta_3 - \alpha_3)$	39	205	0,90	45	213	0,81
$(\gamma_1 + \gamma_2) - (\alpha_1 + \alpha_2)$	15	32	0,93	17	34	0,95
$(\gamma_3 - \alpha_3)$	10	147	0,86	14	150	0,77
$(\gamma_1 + \gamma_2) - (\beta_1 + \beta_2)$	0,56	-0,05	0,97	0,60	-0,07	0,99
$(\gamma_3 - \beta_3)$	0,71	-0,04	0,98	0,74	-0,05	0,97

Коэффициенты при линейных членах для пар аэрозолей  $(\beta_1 + \beta_2) - (\alpha_1 + \alpha_2)$ ,  $(\beta_3 - \alpha_3)$  и  $(\gamma_1 + \gamma_2) - (\alpha_1 + \alpha_2)$ ,  $(\gamma_3 - \alpha_3)$  оказались различными между парами и помещениями. Физический смысл этих коэффициентов - величина отношения концентраций соответствующих групп бета- и гамма-излучателей к концентрации альфа-излучателей в аэрозольных топливных частицах той или иной группы. Они оказались меньше расчетных значений для аварийного топлива с выдержкой в 23 года, равных 60 и 22 соответственно [4].

Особенности радионуклидного состава осевших на фильтры аэрозолей могут быть частично объяснены материалами работы [6], указывавшей на реальное существование в отобранных на ранних стадиях после аварии образцах топливных частиц неравномерностей распределения радионуклидов, особенно это касалось  $^{137}\text{Cs}$ . Другая из возможных причин - насыщение атмосферы помещений с ТСМ предсказанными в работе [5] мелкодисперсными, содержащими топливо «фрагментами», отрывающимися чаще всего от обедненных  $^{137}\text{Cs}$  поверхностей ТСМ. В наибольшей степени, вероятно, подобная неравномерность должна проявляться в различных участках фрагментарно образующихся объемов ЛТСМ, а следовательно, и в отрывающихся от них «фрагментах» субмикронных размеров.

Отметим, что вопрос о радионуклидном составе «фрагментов» до настоящего времени окончательно не решен. В частности, в предоставленных нам д.ф.-м.н. А. В. Жидковым образцах, представлявших собой «фрагменты» ЛТСМ, осевшие в лабораторных условиях на подложки, имелась заниженная примерно в два-три раза концентрация нуклидов бета-излучателей (в сравнении с расчетной для топлива аварийного реактора с 23-летней выдержкой). Основной причиной занижения была существенно уменьшенная концентрация радионуклидов  $^{137}\text{Cs}$  в образцах.

Таким образом, к моменту отбора проб в воздухе помещений, содержавших ТСМ, вероятно, могла находиться некая смесь содержавших топливо частиц, представлявших собой несколько различные по соотношению альфа- и бета-излучателей конгломераты. Тогда найденные коэффициенты регрессионного анализа должны описывать закономерности для аэрозолей с неким «усредненным» радионуклидным составом. Минимальным отличием от расчетного значения характеризовались содержавшие топливо аэрозоли более крупных фракций из помещения 305/2, а максимальным - мелкодисперсная часть содержащих

топливо аэрозолей помещения 304/3. Причина различий, вероятно, связана с наличием в помещении 304/3 только ЛТСМ, в то время как в помещении 305/2 есть большие количества фрагментов самого аварийного топлива.

Значения аддитивных членов в уравнениях, описывающих взаимосвязь групп аэрозолей  $(\gamma_1 + \gamma_2) - (\beta_1 + \beta_2)$  и  $(\gamma_3 - \beta_3)$ , оказались достаточно малыми по величине, но все отрицательные. Это свидетельствует об отсутствии заметных концентраций аэрозолей с бета-излучателями, не содержащих радионуклид  $^{137}\text{Cs}$  (только 15 % бета-распадов  $^{137}\text{Cs}$  происходит без испускания гамма-квантов). В принципе, этим же подтверждается факт обязательного присутствия в аэрозолях с бета-излучателями радионуклида  $^{137}\text{Cs}$ .

Значения коэффициентов при линейных членах в последних уравнениях регрессии определяют долю радионуклида  $^{137}\text{Cs}$  относительно всех долгоживущих бета-излучателей в регистрировавшейся смеси аэрозолей разной природы. Если бы все они представляли собой только топливную пыль, характеризовавшуюся отмеченным «усредненным» радионуклидным составом, то ко времени измерений концентрация радионуклидов  $^{137}\text{Cs}$  должна была бы составить несколько меньше 37 % от измеренной общей бета-активности расчетного аварийного топлива с выдержкой 23 года. (Судя по уже найденным значениям коэффициентов при линейных членах в рассмотренных выше уравнениях регрессии, она должна была бы быть еще меньше.) Реально же в корреляционных связях пар  $(\gamma_1 + \gamma_2) - (\beta_1 + \beta_2)$  и  $(\gamma_3 - \beta_3)$  наблюдаются существенно большие значения коэффициентов при линейных членах. Свидетельствует это о присутствии в воздушной среде помещений отбора кроме смеси топливных аэрозолей дополнительного количества аэрозолей, содержащих только радионуклид  $^{137}\text{Cs}$ . Средние значения величины этих коэффициентов равны 0,58 и 0,72 соответственно. Это означает, что в диапазоне размеров аэрозолей, отвечающих группам 1 и 2, смесь должна была состоять из приблизительно близких по бета-активности концентраций смеси топливных аэрозолей и аэрозолей, содержащих только  $^{137}\text{Cs}$ , а в диапазоне группы 3 - последних аэрозолей было приблизительно в четыре раза больше количества  $^{137}\text{Cs}$  в наборе имевшейся смеси топливных аэрозолей. Требуемое для такой смеси избыточное количество мелкодисперсных аэрозолей с  $^{137}\text{Cs}$  могло возникнуть из аэрозолей конденсационного типа. Такое предположение подтверждается и несколько меньшей (в сравнении с помещением 305/2) относительной концентрацией аэрозолей с единственным бета-излучателем  $^{137}\text{Cs}$  в помещении 304/3.

Завершая обсуждение представленных в табл. 2 корреляционных связей, следует еще раз подчеркнуть, что при анализе аспирированных в объекте "Укрытие" фильтров, содержащих аэрозоли с альфа- и бета-излучателями, нет смысла говорить о параметрах одномодального логнормального распределения по размерам аэрозолей различной природы, содержащих бета-активные радионуклиды. Как следствие этого, методика измерений с трехслойными фильтрами [7] в традиционном применении не может давать реальных характеристик дисперсности анализируемых смесей бета-активных аэрозолей различной природы. С другой стороны, доказательство полимодальности состава смеси аэрозолей, содержащих топливо, можно получить, только проведя анализ распределения по размерам аэрозолей с альфа-излучателями.

В табл. 3 представлены усредненные для каждого из двух интервалов отбора проб значения объемных концентраций трех измерявшихся в настоящей работе групп аэрозолей, содержащих долгоживущие альфа-излучатели. Здесь же даны заимствованные из работы [1] аналогичные данные для помещения 318/2, усредненные по отборам 2006 г. (месяцы 11 и 12). Статистическая ошибка измерения во всех случаях не более 10 %. Учитывая тот факт, что аэрозольная обстановка в исследовавшемся в работе [1] помещении 318/2 формировалась воздушными потоками из помещения 305/2, в настоящей работе полагалось, что полученные тогда данные представительно отразили и положение, существовавшее в помещении 305/2.

Косвенным подтверждением тому есть факт, что в последующих отборах в этих помещениях (первые кварталы 2007 и 2009 г.) проявилась одинаковая тенденция постепенного

спада во времени измеренных концентраций аэрозолей (см. рис. 3), связываемая с возникновением повышенной влажности воздуха. Это в некотором смысле обосновывает правомерность процедуры сравнения усредненных значений концентраций аэрозолей группы 3 с альфа-излучателями для проб, отобранных в 2006 и 2008 г. Соответствующие значения усредненных концентраций составляли  $5 \cdot 10^{-4}$  и  $9 \cdot 10^{-4}$  Бк/м<sup>3</sup>. Тогда, в предположении равномерного во времени роста, прирост концентрации в пересчете на месяц для помещения 305/2 составил около  $2 \cdot 10^{-5}$  Бк/м<sup>3</sup>.

**Таблица 3. Усредненные значения объемных концентраций для групп аэрозолей с альфа-излучателями и параметры подгона их двухмодальным логнормальным распределением (помещения 304/3, 305/2 и 318/2, отборы 2008, 2009 и 2006 г.)**

Группа аэрозолей и параметры их распределения		304/3		305/2		318/2	
		Год, месяц отбора					
		2008; 11, 12	2009; 1 - 3	2008; 11, 12	2009; 1 - 3	2006; 11,12	
$\times 10^3$ , Бк/м <sup>3</sup>	$\alpha_1$	1,4	2,3	1,5	2,0	1,9	
	$\alpha_2$	1,5	2,1	0,9	1,1	1,0	
	$\alpha_3$	1,2	1,6	0,9	1,0	0,5	
$d_{с\text{ мкм}}$ , мкм		0,45	0,5	0,35	0,4	0,4	
$d_{\text{мкм}}$ , мкм		2,5	3,0	3,0	3,5	2,5	
$k_{\text{мкм}}$		0,5	0,5	0,6	0,6	0,8	
$X^2$ , %		12,3	9,6	10	13,6	7,3	

Для помещения 304/3 благоприятные условия отбора проб сохранялись вплоть до середины марта 2009 г. (см. рис. 2). Поэтому было проведено сравнение усредненных результатов измерений для отборов проб конца 2008 г. и большей части первого квартала 2009 г. Значение прироста концентрации аэрозолей группы 3 с альфа-излучателями оказалось близким к предыдущему, но достигнуто оно было всего за 2 - 2,5 мес. Следовательно, прирост концентрации аэрозолей группы 3 с альфа-излучателями, в пересчете на месяц, в этом помещении оказался примерно на порядок больше предыдущего.

Полагая, что причиной увеличения концентрации аэрозолей группы 3 с альфа-излучателями есть пополнение объема помещений отбора «фрагментами» ТСМ, можно найти оценочные значения скорости этого пополнения. Согласно работе [5], ожидаемая величина медианного АД генерируемых «фрагментов» составляет приблизительно 0,3 мкм. Тогда, вне зависимости от происхождения «фрагментов» (они из аварийного топлива или из ЛТСМ), активность входящих в каждый из них долгоживущих альфа-излучателей должна составлять примерно  $10^{-8}$  Бк.

Для обеспечения найденного увеличения концентрации аэрозолей группы 3 необходимо пополнение воздушной среды помещений отбора указанными частицами со скоростью от  $10^3$  до  $10^4$  част./м<sup>3</sup> в месяц (в помещениях 305/2 и 304/3 соответственно). Правда, существующее для помещения 305/2 явление выноса некоторой доли «фрагментов» требует пересмотра найденного значения скорости генерации в сторону ее увеличения.

Произведем оценку некоторых характеристик предполагаемых «усредненных» топливных частиц. Как следует из табл. 3, в каждой из представленных пар временных интервалов усредненные значения экспериментально найденных концентраций аэрозолей группы 3 с альфа-излучателями продемонстрировали тенденцию роста во времени. Вместе с тем все найденные на их основе значения отношений концентрации этих групп аэрозолей к суммарной концентрации аэрозолей групп 1 и 2 оказались больше рассчитываемых с помощью одномодального логнормального распределения аэрозолей по размерам (с использованием

разумного набора его параметров). Поэтому дальнейшее описание полученных экспериментальных результатов проведено с использованием приближения двухмодального логнормального распределения по размерам [2]. Программа расчетов описана в работе [8].

Величина стандартного геометрического отклонения для аэрозолей микронного диапазона устанавливалась равной рекомендованному в [8] значению 3,5, а для субмикронного диапазона - в интервале изменения АД от 0,05 до 0,75 мкм изменялась в соответствии с рекомендациями работы [9].

Шаг при вариации величины медианных АД микронного и субмикронного диапазонов составлял 0,5 и 0,05 мкм соответственно, а для соотношения парциальных вкладов микронной и субмикронной компонент - 0,1.

Подгонка расчетных распределений к экспериментальным производилась путем оптимизации суммарного значения относительного среднеквадратичного различия между ними. Качество ее представлено в строке 7 табл. 3. Естественно, что имевшиеся экспериментальные распределения с очень грубым разбиением по размерам на группы удалось легко описать наборами величин, представленных в строках 4 - 6 табл. 3.

Как следует из табл. 3, для помещения 305/2 величина парциального вклада микронной компоненты в суммарное распределение по размерам аэрозолей с долгоживущими альфа-излучателями уменьшилась от 0,8 в 2006 г. до 0,6 в 2008/9 г., что хорошо коррелирует с отмеченным ростом во времени концентрации мелкодисперсных аэрозолей.

В случаях более коротких интервалов между группами отборов проб подобная тенденция не проявлялась, но, вместе с тем, можно отметить несколько больший парциальный вклад субмикронной компоненты в случае аэрозолей в воздушной среде помещения 304/3. Медианный АД этой компоненты здесь оказался несколько больше (в районе 0,5 мкм), чем для воздушной среды помещения 305/2 (0,35 - 0,4 мкм), а АД микронных компонент - близкими (около 3,0 мкм). Проявившаяся для обоих помещений тенденция роста в первом квартале 2009 г. (в сравнении с четвертым кварталом 2008 г.) найденных величин медианных субмикронных АД, возможно, есть подтверждением «утяжеления» соответствующих аэрозолей за счет оседания на их поверхности большего числа молекул воды.

Хотя исследование аэрозолей радоновых рядов не было предметом настоящей работы, тем не менее в ней удалось выявить эффект примерно десятикратного обеднения воздушной среды помещения 305/2 (в сравнении с помещением 304/3) аэрозолями, содержащими дочерние радионуклиды  $^{222}\text{Rn}$  ряда. Возможное объяснение этому - существование в период активной фазы аварии в части помещения 305/2 температур выше 1300 °С (температуры испарения находившегося в бетоне строительных конструкций помещения 305/2 изотопа  $^{226}\text{Ra}$ ).

## Выводы

Проведенное на протяжении пяти месяцев исследование распределения по размерам объемной концентрации радиоактивных аэрозолей в содержащих топливо помещениях 304/3 и 305/2 объекта «Укрытие» позволило установить следующее.

1. Помимо аэрозолей радоновых рядов, в помещениях существовала смесь аэрозолей содержащих долгоживущие альфа- и бета-излучатели. Среди них были аэрозоли, содержавшие только радионуклид  $^{137}\text{Cs}$ , и аэрозоли с альфа-излучателями, обязательно содержавшие в своем составе бета-излучатели, в том числе и  $^{137}\text{Cs}$ .

2. Измеренные объемные концентрации для трех групп размеров аэрозолей, содержавших альфа- и бета-излучатели и  $^{137}\text{Cs}$  как гамма-излучатель, существенно изменялись от отбора к отбору, но усредненные по выбранным временным интервалам значения соотношения между объемными концентрациями различных по размерам групп хоть и зависели от вида аэрозолей, но внутри видов изменялись мало.

3. В существовавшей смеси аэрозолей величина среднего значения отношения объемной концентрации аэрозолей, содержавших только  $^{137}\text{Cs}$ , к объемной концентрации аэрозо-

лей со всеми бета-излучателями существенно превышала расчетное значение для аварийного топлива с 23-летней выдержкой и составляла 0,58 для суммы групп 1 и 2 и 0,72 для группы 3. Причина различия - меньший вклад в смесь аэрозолей групп 1 и 2 (в сравнении с группой 3) от аэрозолей, содержавших только радионуклид  $^{137}\text{Cs}$ .

4. Величина среднего значения отношения объемной концентрации аэрозолей со всеми бета-излучателями к концентрации аэрозолей с альфа-излучателями была меньше расчетного значения для аварийного топлива с 23-летней выдержкой и составляла около 50 (для суммы групп 1 и 2) и 35 (для группы 3).

5. На основании экспериментально найденных, возрастающих во времени, усредненных значений концентраций аэрозолей группы 3 с долгоживущими альфа-излучателями определены скорости роста их концентрации, составившие в пересчете на месяц для помещения 305/2 величину, равную, примерно,  $2 \cdot 10^{-5}$  Бк/м<sup>3</sup> и на порядок большую для помещения 304/3. Значение для помещения 305/2 необходимо скорректировать в сторону увеличения из-за имевшейся утечки части мелкодисперсных аэрозолей за пределы помещения.

6. Если предположить, что причиной указанного в пункте 5 роста концентрации мелкодисперсной фракции аэрозолей, содержавших альфа-излучатели, были частицы, генерировавшиеся поверхностями ТСМ, то оцененное увеличение поступления в период отбора проб составляло, примерно,  $10^4$  част./м<sup>3</sup> объема помещения отбора в месяц при условии их равномерного распределения и отсутствия воздухопотоков

7. Усредненные экспериментальные значения распределения по размерам концентрации аэрозолей, содержавших альфа-излучатели, хорошо описываются двухмодальным лог-нормальным распределением с медианными АД микронного диапазона в районе 3,0 мкм и медианными АД для субмикронного диапазона 0,35 – 0,4 мкм (помещение 305/2) и 0,45 – 0,5 мкм (помещение 304/3). Расчетный вклад субмикронной фракции в результирующее распределение по размерам вырос на протяжении, примерно, двух лет от 20 до 40 – 50 %.

8. Воздушная среда помещения 305/2 в сравнении с помещением 304/3 была обеднена примерно на порядок аэрозолями, содержавшими дочерние продукты распада  $^{222}\text{Rn}$ . Возможное объяснение этому - существование в период активной фазы аварии в части помещения 305/2 температур выше 1300 °С (температуры испарения находившегося в бетоне строительных конструкций помещения 305/2 материнского изотопа  $^{222}\text{Rn}$  ряда  $^{226}\text{Ra}$ ).

Завершая настоящее рассмотрение, приходится признать, что большинство отборов проб в работе выполнено в условиях влияния не поддающейся простому учету или регулированию, изменявшейся во времени влажности воздушной среды помещений отбора. Следовательно, получение более обоснованных выводов требует больших сроков усреднения, а рассмотренные результаты можно считать лишь предварительными.

Авторы считают своим приятным долгом выразить благодарность сотрудникам ЧАЭС В. А. Каштанову, В. В. Андрееву, А. В. Дмитриенко, С. В. Сухоставскому за содействие в проведении настоящей работы и д-ру физ.-мат. наук А. В. Жидкову за предоставленные образцы осевших на подложки топливных «фрагментов».

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Бадовский В.П., Ключников А.А., Кравчук Т.А. и др.* Мониторинг аэрозольной обстановки в некоторых подреакторных помещениях объекта «Укрытие» // Проблемы безопасности атомных электростанций і Чернобиля. – 2008. – Вип. 10. – С. 99 – 110.
2. *Бадовский В.П., Кравчук Т.А., Меленевский А.Э.* Концентрация и распределение по размерам радиоактивных аэрозолей в некоторых подреакторных помещениях объекта «Укрытие» // Там же. – 2006. – Вип. 5. – С. 109 – 118.
3. *Хан В.Е., Огородников Б.И., Калиновский А.К. и др.* Контроль выбросов радиоактивных аэрозолей из объекта «Укрытие» // Там же. – 2008. – Вип. 9. – С. 48 – 53.
4. *Крышев И.И.* Радиозэкологические последствия чернобыльской аварии. – М.: Ядерное общество СССР, 1991. – 87 с.

5. *Baryakhiar 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.
6. *Богатов С.А., Боровой А.А., Дубасов Ю.В., Ломоносов В.В.* Форма и характеристики частиц топливного выброса при аварии на Чернобыльской АЭС // Атомная энергия. – 1990. – Т. 69, вып. 1. – С. 36 – 40.
7. *Огородников Б.И., Будыка А.К.* Мониторинг радиоактивных аэрозолей в объекте «Укрытие» // Там же. – 2001. – Т. 91, вып. 6. – С. 471 – 474.
8. *Створення приладу для моніторингу доз інгаляційного опромінення в умовах об'єкта «Укриття» з урахуванням субмікронних аерозолів: (Заключний звіт по НВР) / ІПБ АЕС НАН України; Керівник теми О. Е. Меленевський.- № ДР 0101U002572. – Чорнобиль, 2005.*
9. *Сухоручкин А.К.* Расчет дозового коэффициента аэрозоля произвольной дисперсности // Проблемы безопасности атомных электростанций и Чернобиля. – 2005. - Вып. 3, ч. 1. С. 98 – 101.

### ДОСЛІДЖЕННЯ ХАРАКТЕРИСТИК АЕРОЗОЛІВ В ОСНОВНИХ ПРИМІЩЕННЯХ ОБ'ЄКТА «УКРИТТЯ», ЩО ВМІЩУЮТЬ ПАЛИВО

**В. П. Бадовський, О. О. Ключников, Т. А. Кравчук, О. Е. Меленевський, В. М. Щербін**

У 2008 – 2009 рр. проведено моніторинг характеристик радіоактивних аерозолів у підреакторних приміщеннях 304/3, 305/2 об'єкта «Укриття». Досліджувався розподіл по трьох групах аерозолів з аеродинамічними діаметрами  $\geq 2,0$  мкм;  $\geq 0,6$ , але  $\leq 2,0$  мкм і  $\leq 0,6$  мкм та сумарні об'ємні концентрації радіоактивних аерозолів, що вміщують довгоіснуючі альфа-, бета-випромінювачі, окремо  $^{137}\text{Cs}$  та  $^{212}\text{Pb}$ . Відношення концентрацій аерозолів, що вміщують  $^{137}\text{Cs}$ , до концентрації аерозолів з усіма довгоіснуючими бета-випромінювачами для груп з діаметром  $\geq 0,6$  і  $\leq 0,6$  мкм становили 0,58 і 0,72 відповідно, а відношення концентрацій аерозолів з усіма довгоіснуючими бета-випромінювачами до об'ємних концентрацій аерозолів з довгоіснуючими альфа-випромінювачами для тих же груп - 110 і 300 відповідно. Виявлено тенденцію росту концентрації дрібнодисперсної фракції аерозолів з альфа-випромінювачами. Швидкість її від  $10^3$  до  $10^4$  паливних частинок об'ємом  $10^{-3}$  мкм<sup>3</sup> за місяць на 1 м<sup>3</sup> об'єму повітря, що аналізувалось. Двимодалний розподіл аерозолів по розмірах добре описує експериментальні дані.

*Ключові слова:* радіоактивні аерозолі об'єкта «Укриття», субмікронні аерозолі, віртуальний імпактор.

### AEROSOL CHARACTERISTIC RESEARCHING IN BASIC FUEL-CONTAINING PREMISES AT OBJECT "UKRYTTYA"

**V. P. Badovsky, O. O. Kluchnicov, T. A. Kravchuk, A. E. Melenevsky, V. M. Shcherbin**

During 2008 - 2009 years was made monitoring of radioactive aerosol (r/a) in under-reactor premises (p) No 304/3, 305/2 of object "Ukryttya". Researches were provided on distribution among three groups of sizes (aerodynamical diameter (AD)  $\geq 2,0$   $\mu\text{m}$ ,  $\text{AD} \geq 0,6$   $\mu\text{m}$  but  $\leq 2,0$   $\mu\text{m}$ , and  $\text{AD} \leq 0,6$   $\mu\text{m}$ ) and total volumetric concentrations (VC) of r/a which contained long-living (LL) alpha-, beta-emitters, separately  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{212}\text{Pb}$ . Ratio for VC of r/a which contain  $^{137}\text{Cs}$  to concentration of r/a with all LL beta emitters for groups with  $\text{AD} \geq 0,6$  and  $\leq 0,6$   $\mu\text{m}$  is 0,58 and 0,72 respectively and ratio VC r/a with all LL beta-emitters to r/a which contained alpha-emitters for same groups is 110 and 300 respectively. Tendency to increase of VC alpha-emitters fine r/a component is discovered. Increase speed is from  $10^3$  to  $10^4$  fuel particles in volume  $10^{-3}$   $\mu\text{m}^3$  per month from 1 m<sup>3</sup> of analyzed air. Aerosol dimensions' bimodal distribution characterize experimental data well.

*Keywords:* object "Ukryttya" radioactive aerosol, submicron aerosol, virtual impactor.

Поступила в редакцію 04.06.09