

Національний технічний університет України
"Київський політехнічний інститут"

На правах рукопису
УДК 539.08;539.09;621.039.542

ДЕМЧУК ВОЛОДИМИР ВАСИЛЬОВИЧ

Процеси трансформації та міграції часток ядерного
палива в водно-грунтових середовищах зони відчуження
ЧАЕС

спеціальність - 05.26.05 Інженерна екологія

АВТОРЕФЕРАТ

Дисертації на здобуття наукового ступеня
кандидата технічних наук

Київ-1996

Дисертація є рукопис.

Робота виконана в відділі дозиметрії та радіаційної гігієни Наукового центру радіаційної медицини АМН України.

Науковий керівник:

доктор біологічних наук
Лось Іван Павлович

Офіційні опоненти:

доктор фіз.-мат. наук
Литвинський Людвиг Леонідович

кандидат технічних наук
Репін Віктор Степанович

Ведуча організація:

Інститут сільськогосподарської радіології Міністерства сільськогосподарства України. Місто Київ.

Захист відбудеться "4" червня 1996р. о _____ на засіданні спеціалізованої вченої ради Д 01. 02. 01 НТУУ "КПІ" за адресою: 252057, м. Київ-57, проспект Перемоги 37, корп. 4, кімн. 118.

З дисертацією можна ознайомитись в бібліотеці НТУУ "КПІ".

Автореферат розісланий "____" _____ 1996р.

Відгуки на автореферат у двох примірниках за підписом, затвердженням печаткою, прохання надіслати за адресою: 252057, м. Київ-57, проспект Перемоги-37, НТУУ "КПІ", Вчена рада.

Вчений секретар спеціалізованої
Вченої ради

Срібний Л.Є.

ЛННБ України ім.В.Стефаніка



00740542 (M)

ЛННБ ім. В. Стефаніка
АН України

ЗАГАЛЬНА ХАРАКТЕРИСТИКА РОБОТИ.

Актуальність роботи. Унікальність аварії на 4-му блоці ЧАЕС полягає не тільки в масштабах забруднення місцевості та кількості викинутої активності, а також в тому, що радіоактивні елементи потрапили до навколишнього середовища, в основному, в складі диспергированого ядерного палива - радіоактивних частках, одержавших назву "гарячі" частки.

На сьогоднішній день викид оцінюється 3.5% всієї кількості палива, що знаходилось в реакторі.

Всестороннє дослідження форм викинутого палива, їх стійкість в природному середовищі та міграційна здатність важливі з багатьох причин. По - перше, паливна матриця є носієм багатьох довгоживучих радіонуклідів. Частки диспергированого палива є потенційним вторинним джерелом забруднення середовища зони впливу ЧАЕС. По-друге, вивчення часток палива може дати універсальну інформацію про процеси в аварійному реакторі як під час розвитку аварії, так і в наступний більш тривалий період. По- третє - в багатьох пост- чорнобильських задачах необхідно застосовувати як вихідні дані розподіл гарячих часток по розмірам та активності : (1) вивчення та прогноз міграції радіонуклідів в водно- ґрунтових середовищах ; (2) ретроспективна реконструкція інгалаційних доз населення; (3) верифікація сценаріїв розвитку аварії по даним ґрунтового картування дисперсного та радіонуклідного складів гарячих часток і т.д.

Частково відповіді на дані питання можуть дати дослідження форм та складу викинутих паливовмістких матеріалів (ПВМ), їх міграційні особливості та стійкість до трансформації в умовах природних водно-ґрунтових середовищ зони відчуження ЧАЕС.

Гарячі (радіоактивні) частки радіаційно небезпечні в двох основних аспектах :

1. радіобіологічний, визваний тим, що гарячі частки створюють навколо себе величезні потужності доз в локальному просторі ;
2. в гарячих частках зосереджені практично всі викинуті трансуранові елементи та продукти ділення (крім РБГ) і таким чином вони уявляють собою потужне потенційне джерело вторинного забруднення навколишнього середовища та надходження актинидів та продуктів ділення в ланцюжки біоценозу.

Мета роботи: 1) вивчення локального просторового та профільного розподілу гарячих часток в ґрунті та донних відкладах зони впливу ЧАЕС; 2) оцінка дисперсних і радіонуклідних характеристик гарячих часток; 3) оцінка стійкості паливних часток в умовах водно-ґрунтових середовищ в часі; 4) оцінка основних механізмів міграції та їх параметрів для паливних форм викидів в зоні відчуження ЧАЕС; 5) відпрацювання методик локалізації та ідентифікації гарячих радіоактивних часток в зразках зовнішнього середовища.

Для досягнення даних цілей вирішувались наступні задачі:

1. Відпрацювання методів реєстрації та ідентифікації дисперсного та радіонуклідного складів гарячих часток в зразках ґрунту рентенографічними

матеріалами та реєстрації на твердотільних трекових детекторах ядер (ТТДЯ) CR-39, LR-115, "Тастіас". Автоматизація обробки радіографічних зображень та треків на твердотільних трекових детекторах.

2. Дослідження форм випадів, дисперсного та радіонуклідного складів гарячих часток в ґрунтах ближньої зони ЧАЕС.
3. Дослідження процесів механічного руйнування та селективного вилутовування радіонуклідів з гарячих часток в часі.
4. Дослідження профільного розподілу гарячих часток в часі та порівняння з інтегральним профільним розподілом радіоактивності.
5. Оцінка та моделювання процесів міграції радіонуклідів чорнобильських випадів в ґрунті.

Наукова новизна. Розроблені та відкалібровані методики локалізації та ідентифікації гарячих часток Чорнобильської аварії в зразках ґрунтів та донних відкладів, що дозволило вперше:

- провести дослідження дисперсного та радіонуклідного складів гарячих часток в ґрунтах та донних відкладах по всьому діапазону фракційного складу (от 0.1мкм до 200-300мкм) для Північного та Західного слідів радіоактивних випадів;
- дати кількісну оцінку співвідношення форм випадів радіоактивності, щільності поверхневого та профільного розподілу гарячих часток в заплавах р. Прип'ять зони відчуження ЧАЕС;
- запропонувати гіпотезу, превалювання міграції активності в складі гарячих часток по механізму механічного біо-перемішування в ґрунтах;
- оцінити параметри механічного механізму міграції часток ядерного палива в ґрунтових середовищах;
- оцінити параметри трансформації часток ядерного палива в умовах природного середовища в часі;
- впровадити автоматизовані методи обробки радіографічних образів гарячих часток на рентгенівській плівці;

Наукове та практичне значення.

(1) Результати досліджень дозволять оцінити внесок гарячих часток в формування вторинного забруднення водно-ґрунтових середовищ в часі.

(2) Використання методичних наборок, відпрацьованих пошукувачем, дозволять проводити оцінки розподілу форм випадів радіоактивності в зоні відчуження ЧАЕС, проводити масові оцінки дисперсного та радіонуклідного складів гарячих часток в зразках ґрунтів, донних відкладів, аерозолей та органічних зразків.

(3) Результати можуть бути використані для параметризації моделей відновлення процесів розпилення радіоактивних матеріалів внаслідок аварії, моделей транспорту та міграції радіонуклідів з поверхневими водами і т. д..

(4) Давати прогностичні оцінки розповсюдження активності в водно-ґрунтових середовищах в залежності від розмірів та кількості гарячих часток, оптимізувати водоохоронні заходи в зоні впливу ЧАЕС.

(5) По даним ґрунтового розподілу гарячих часток можна проводити ретроспективне відновлення інгаляційних доз населення в початковий період розвитку аварії, відновлювати процеси проходження аварії, використовувати

дані дисперсного розподілу гарячих часток для розрахунків вторинного забруднення приземного шару атмосфери і т. д..

Положення, які виносяться на захист:

1. оцінка структури, форм, щільності радіоактивного забруднення заплавлених масивів р. Прип'ять;
2. дослідження дисперсного та радіонуклідного складу "гарячих" (радіоактивних) часток основних слідів випадіння - Північного та Західного;
3. структура просторово - часового, профільного розподілу гарячих часток в ґрунтах заплавлених ландшафтів;
4. методи реєстрації та ідентифікації дисперсного та радіонуклідного складів гарячих часток в арезках ґрунту рентгенографічними матеріалами та реєстрації на твердотільних трекових детекторах ядер (ТТДЯ) CR-39, LR-115, "Tactrac";
5. автоматизація обробки радіографічних зображень та треків на твердотільних трекових детекторах;
6. використання даних профільного розподілу активності та гарячих часток в часі для оцінки та моделювання процесів міграції радіонуклідів чорнобильських викидів в ґрунті.

Апробація роботи.

Основні положення роботи докладені на:

1. Всесоюзній нараді "Принципи та методи ландшафтно-геохімічних досліджень міграції радіонуклідів". (Суздаль, 1989г)
2. IV Конференції "Геохімічні шляхи міграції штучних радіонуклідів в біосфері". Гомель, 1990)
3. V Конференції "Геохімічні шляхи міграції штучних радіонуклідів в біосфері" (Пушино, 1991)
4. I Семінарі Радянського Відділення Міжнародного союзу радіоекологів "Радіоекологія та контрзаходи" (Київ, 1991)
5. Міжнародній конференції "Comparative Assessment of the Environmental Impact of Radionuclides Released during Three Major Nuclear Accidents: Kyshtym, Windscale, Chernobyl" (Люксембург, 1990)
5. Міжнародному симпозиумі радіоекологів "Chemical Speciation - Hot Particles" (Чехословаччина, Зноймо, 1992г)
6. II Міжнародній конференції Solid State Nuclear Track Detectors, March 24-27, E-7-93-61, IJNR (Dubna, 1992.)
7. П'ятій міжнародній науково-технічній конференції Чорнобиль - 96, "Підсумки 10 років робіт з ліквідації наслідків аварії на ЧАЕС" (Зелений Мис, 1996)
8. Міжнародній конференції "Десятиріччя аварії на Чорнобильській АЕС" (Мінськ, 1996)

Публікація результатів дослідження. По темі дисертації опубліковані 16 робіт, в тому числі: в міжнародних виданнях - 9, і вітчизняних виданнях - 7.

Структура та об'єм роботи. Дисертаційна робота викладена на 167 сторінках та складається з вступу, огляду літератури, шести глав, висновків та переліку цитованої літератури, включає 39 малюнків та 42 таблиці. Список літератури складається із 109 найменувань.

Основний зміст роботи

Проведено аналіз літературних джерел по напрацюванню і забрудненню навколишнього середовища радіоактивними аерозолями при експлуатації АЕС в нормальному режимі, а також в аварійних ситуаціях; забруднення довкілля в результаті Чорнобильської аварії. Значна частина роботи присвячена вивченню структури та специфічних форм радіоактивних випадінь при аварії на ЧАЕС. Представлені розрахунки співвідношення паливної та парогазової компонент радіоактивного забруднення по таким основним слідам викидів як Північний та Західний.

Основна направленість роботи полягала в вивченні поведінки специфічних форм викидів активності Чорнобильської аварії - "гарячих" часток в оточуючому середовищі. Для цієї мети зразки ґрунтів та донних відкладів відбиралась на полігонах зазначених слідов забруднення з перевагою в загальній активності долі активності в складі "гарячих" часток. З 1989р. на полігонах Північного сліду було закладено 6 реперних майданчиків з різними типами ґрунтів, режимами зволоження та максимальним паливним характером забруднення. Для вирішення основних задач - трансформація паливних часток в умовах оточуючого середовища, та їх міграційна спроможність було набрано статистичний ряд у часі 1) зміна дисперсного складу "гарячих" часток; 2) розрахунок долі активності локалізованої в "гарячих" частках відносно до інтегрального забруднення зразка. Таким чином були зроблені оцінки коефіцієнтів трансформації та міграції "гарячих" часток в водно-ґрунтових середовищах.

Специфічні форми забруднення потребували відпрацювання відповідних методик реєстрації активності локалізованої в "гарячих" частках. Крім традиційних спектрометричних та радіометричних приладів в роботі були використані методики макрорадіографії для локалізації та ідентифікації радіоактивних часток по бета компоненті випромінювання, та реєстрація чисто паливних часток по альфа випромінюванню на твердотільних трекових детекторах ядер (ТТДЯ).

Крім експериментальних методик були відпрацьовані аналітичні методи апроксимації експериментальних дисперсних гістограм розподілу "гарячих" часток, а також розроблена і відпрацьована методика автоматизованої обробки радіографічних зображень "гарячих" часток. Це дозволило обробляти знімки з вмістом до 100-200 тис. часток на зразок.

Результати власних досліджень

Обладнання. Під час дослідження радіонуклідного складу "гарячих" часток в зразках використовувались оригінальні методики реєстрації на рентгенівський плівці РМ-В, РМ-ІН, РТ-1 по бета-компоненті випромінювання та твердотільних трекових детекторах ІК-115, СР-39 по альфа-компоненті випромінювання "гарячих" часток.

Визначення складу та активності γ -випромінюючих нуклідів проводилось на низькофоновому спектрометрі "CANBERRA" з HPGe детектором та власним фоном менше 0.029Бк/зразок, а також на спектрометрі "ORTEC" з HPGe і NaI(Tl). Особлива увага була приділена визначенню сумарної β -активності часток-А_ц. З цією метою використовувався радіометр типу РКБ4-ІеМ, вміщений в свинцевий захист з товщиною стінок п'ять сантиметрів. Власний фон радіометра складає менше 0.05 імп./сек.

Визначення радіонуклідних характеристик гарячих часток.

Прямі методи виділення та ідентифікації можуть застосовуватись тільки для часток з розмірами більше 10-15 мкм. Тому методи радіографії та ТГДЯ є єдино можливими для всього діапазону дисперсності часток. Мінімумально детектована бета активність рентгенівської плівки складає 0.01-0.05Бк/час., а мінімумально визначаємий розмір 0.06-0.1мкм. при експозиції 14 діб.

В якості детектора використовувалась плівка рентгенографічна типу РМ-В і РМ-ІН, з чутливістю відповідно $S_{0,85}=800$ і $S_{0,85}=750$ і коефіцієнтом контрастності 2.5.

Активність часток в зразках визначалась по розмірам плям почорніння на радіографії. Залежність діаметру плями почорніння від сумарної бета активності апроксимувалась степеневою функцією виду:

$$A(Bq) \cong kD^{\alpha} \quad (1)$$

де k - розмірна константа, залежна від типу плівки та технології проявлення;
 α - лежить в межах від 2 до 2.5.

Ізотопний склад паливних часток, сформувавших забруднення зони досліджень, та процентний внесок кожного нукліду в формування сумарної бета-активності представлені в табл. 1 по рокам (з 1987 по 1995рр.). Склад розраховувався з "базового" середнього складу по загрузці 4-го блоку ЧАЕС на 26.04.1986р., що відповідає складу опроміненого палива 4-5^ї групи тепловиділяючих збірок.

Як видно з таблиці основний вклад в формування пляма почорніння на рентгенівській плівці, на 1995р, вносять два ізотопа: ^{137}Cs - 55% та ^{90}Sr - ^{90}Y - 45%.

Парціальні вклади бета- випромінюючих осколичних нуклідів та сумарна питома активність реакторного палива по рокам

Таблиця 1

Рік			$A(\text{Бк}/\text{г}_{\text{UO}_2}) \cdot 10^9$					$\Sigma\beta$
	^{90}Sr	^{90}Y	^{106}Rh	^{134}Cs	^{137}Cs	^{144}Ce	^{144}Pr	
1987	1.15	1.18	2.5	0.52	1.90	6.30	6.30	19.8
1988	1.14	1.17	1.79	-	1.82	4.10	4.10	13.7
1989	1.12	1.14	1.02	-	1.70	1.90	1.90	8.7
1990	1.08	1.11	0.45	-	1.50	0.68	0.68	5.5
1991	1.04	1.07	0.40	-	1.41	0.15	0.15	4.1
1995	0.92	0.945	-	-	1.14	-	-	3.0

Визначення дисперсних параметрів паливних часток.

Масове кількісне визначення дисперсного складу радіоактивних часток проводилось розрахунковим шляхом. Гарячі частки припускались правильної сферичної форми з щільністю відповідною щільності палива $UO_2 - 10.4 \text{ г/см}^3$. Радіонуклідний склад відповідає складу опроміненого палива "середнього" по загрузці з глибиною вигорання 11-12 Мит/доб. * кг_{UO_2} . Розрахунок діаметра проводився з розрахованої питомої активності одного граму "середнього" опроміненого палива на момент аварії, по формулі:

$$D(\text{см}) = \frac{6 A_i}{\pi \rho_0 A_0} \quad (2)$$

де: A_i - активність частки;
 A_0 - розрахована питома активність 1гр. UO_2 на момент вимірювання;
 ρ_0 - питома вага двоокису урану.

Активність гарячих часток розраховувалась по розмірам п'ятен почорніння на радіографічних зображеннях з (1). Якщо підставити (1) в (2) отримаємо:

$$D_{\text{част. (мкм)}} = K^* D_{\text{мм}}^{a^*} \quad (3)$$

де:
$$K^* = K \left(\frac{6 K}{\pi \rho_0 A_0} \right)^{1/3} \left(- \right)$$

$a^* = a/3$

Числові значення K^* для діапазонів п'ятен 0-0.8мм и 0.8мм та вище по рокам представлені в таблиці 2.

В розрахунках не враховувалась зміна розмірів часток диспергованого палива в результаті зміни стехеометричного співвідношення палива в післяреакторному відпаленні. Оцінки таких розрахунків показують, що розмір розпиленних часток палива може бути більше розрахованих на 30-40%. Реальні мікроскопічні дослідження показують, що співвідношення прямих вимірювань та розраховані значення розмірів часток складає від 2 до 10. Такий діапазон можливий в силу ряду причин: це - агрегування паливних часток з неактивними частками; реально меншій питомій вазі доокислених часток палива в післяреакторному відпаленні і т. п..

Метод макрорадіографії.

Метод радіографії дозволяє:

- локалізувати та ідентифікувати активність розподілену, в зразку в складі гарячих часток по бета-компоненті випромінювання;
- розрахувати кількісний склад часток в зразку;
- дослідити розподіл часток по активності та дисперсному складу;
- оцінити долю активності, локалізовану в гарячих частках відносно інтегральної активності в зразку.

Таблиця 2

Рік	$a^*=0.42$	$a^*=0.78$
	діапазон пятен 0-0.8мм	діапазон пятен >0.8мм
1987	2.08	2.21
1988	2.348	2.49
1989	2.72	2.89
1990	3.18	3.38
1991	3.51	3.73
1995	3.89	4.13

Метод має ряд важливих переваг: висока роздільна здатність, можливість вивчення просторового розподілу джерела випромінювання, довготривале зберігання зареєстрованих подій в вигляді зкритого зображення.

До основних недолігів авторадіографії слід віднести: сильні коливання чутливості і роздільної здатності, зчитування та вимірювання великого об'єму візуальної інформації проводиться оператором, відсутня єдина стандартна методика авторадіографічних досліджень.

Проведення калібровки радіографічних матеріалів по активності гарячих часток.

Залежність діаметра пятна почорніння d на авторадіограмі від активності часток A_p добре описується степеневою функцією виду:

$$A_p = kd^\alpha, \quad (4)$$

Показано, що в приміненні до "гарячих" часток Чорнобильської аварії, апроксимація функцією $A=kd^\alpha$ калібровочних даних має можливість отримати похибку не гірше 25%.

Відбір "гарячих" часток для калібровки проводився з аерозолей, відібраних на тканину Петрянова ФПП-15 за допомогою фільтро-вентиляційної установки "Тайфун" з потужністю біля 30 000 м³/добу. Для проведення калібровочних робіт були вибрані фільтри, відібрані 30.01.88г. та 11-13.03.95г. в м. Прип'ять, з концентрацією ¹³⁷Cs вище середньомісячної в 5-10 разів.

Експериментальні дані апроксимувались степеневою функцією виду $A=kd^\alpha$ за допомогою пакета прикладних програм статистичної обробки даних для ПЕВМ "STATGRAPHICS". Результати обробки (калібровочні криві) приведені на мал 1.

Отримані коефіцієнти апроксимації k та α для двох діапазонів розмірів: для області діаметрів авторадіографічних зображень менше 0.8мм:

$$k = 0.99 \pm 0.22$$

$$\alpha = 1.27 \pm 0.25.$$

для діаметрів вище 0.8мм:

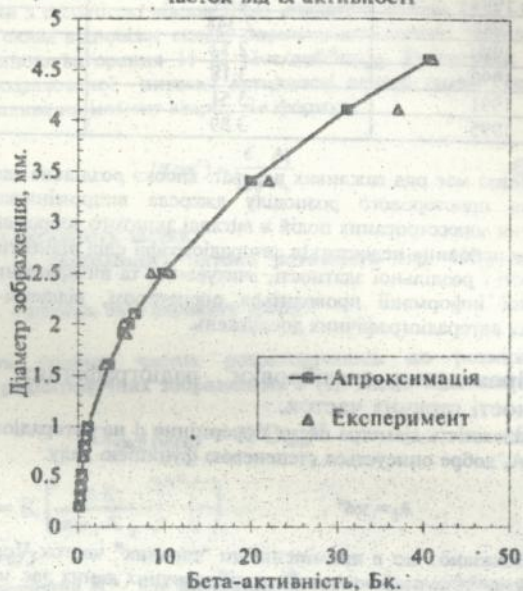
$$k = 1.16 \pm 0.10$$

$$\alpha = 2.33 \pm 0.12.$$

Середні відхилення експериментальних даних від розрахункових склали

менше 15%.

Залежність діаметра
радіографічного зображення
часток від їх активності



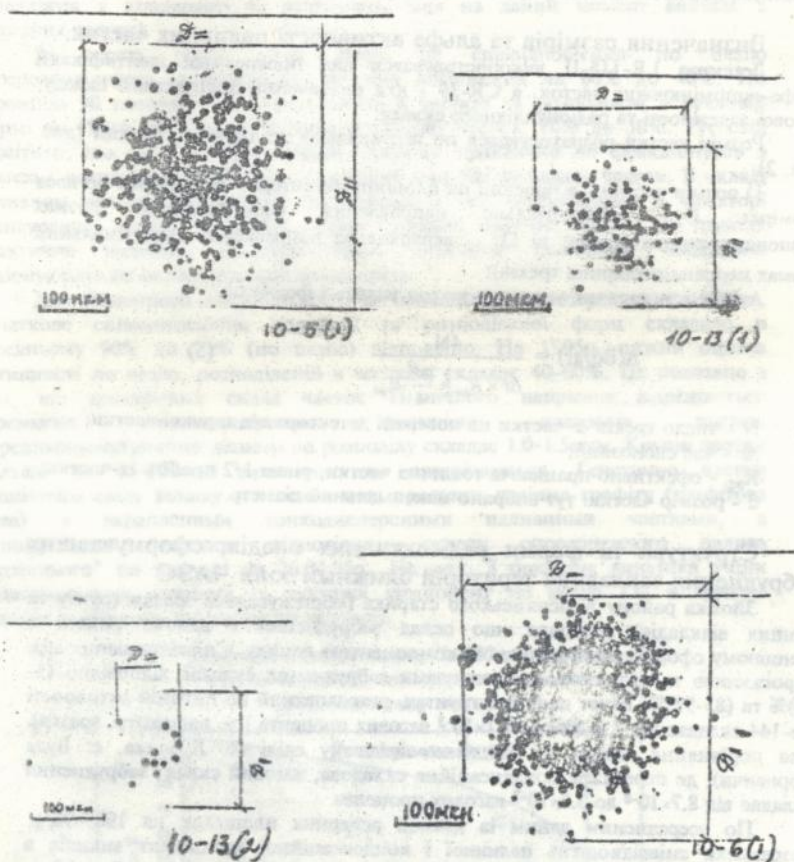
Мал. 1 Калібрівка залежності діаметра п'ятна почорніння від активності гарячих часток.

Альфа-радіографічний аналіз паливних часток за допомогою твердотільних трекових детекторів ядер (ТТДЯ).

Метод реєстрації альфа-компоненти випромінювання паливних часток на ТТДЯ використовувався в першу чергу для визначення розмірів часток по їх проекціях на площину детектора.

Метод реєстрації на ТТДЯ заснований на реєстрації альфа-компоненти випромінювання паливних часток і дозволяє:

- проводити нерозрушаючий прямий контроль зразків без довготривалих трудно та матеріалоемких радіохімічних та спектрометричних вимірювань;
- визначати просторову локалізацію активності в зразку;
- ідентифікувати валовий та радіонуклідний склад ТУЕ в паливовміщуючих частках;
- вивчати дисперсний склад радіоактивних часток як техногенного так і природного походження;



Мал.2 Розрахунок розмірів паливних часток по вертикальним трекам на CR-39

- проводити низькофонові вимірювання при паралельному експонуванні великої кількості зразків ($MDA - 2 \cdot 10^{-6}$ Бк/см² при місячній експозиції);

Визначення розмірів та альфа активності паливних часток.

Детектор LR-115-II використовувався для попередньої ідентифікації альфа-чипрмінюючих часток, а CR-39 - для визначення дисперсного складу, дозової залежності та радіонуклідного складу.

Розмір частки розраховувався по вертикально входляючим трекам (див. мал. 2):

1) розмір частки - в проекції на площину детектора - визначається по двох розмірах: D_{∞} - горизонтальне направлення (максимальний розмах перпендикулярних треків) та D_0 - вертикальне направлення (максимальний розмах перпендикулярних треків):

Активність гарячих часток розраховувалась з формули:

$$A(\text{Bq/gr}) = \frac{4N}{\Delta t \times R_{\text{эф}} \times \frac{\pi d^2}{4} \times E_{\alpha}} \quad (5)$$

- де: N - число треків α -частки на поверхні детектора від гарячої частки;
 Δt - час експозиції;
 $R_{\text{эф}}$ - ефективно працююча товщина частки, рівна 1/2 пробігу α -частки;
 d - розмір частки: тут вибрано максимальний діаметр.

Структура та форми радіоактивних опадів, сформувавших забруднення заправних територій ближньої зони ЧАЭС

Зімка району Краснянського старика (обстежувались зразки ґрунту та донних відкладів) показала, що склад забруднення в даному районі в основному сформований паливною компонентою викиду. Співвідношення між парогазовою та паливною компонентами забруднення складає відповідно (1-15)% та (85-99)%. Вміст палива в ґрунтах, розрахований по питомій активності Ce-144 складає від $2.5 \cdot 10^{-5}$ до $1.1 \cdot 10^{-3}$ вагових процента [гр. палива/гр. зразка]. Для порівняння, викид на Південно-західному сліді (с. Лубянка, с. Буда Ворочичи), де переважале конденсаційна складова, ваговий склад забруднення складає від $8.7 \cdot 10^{-8}$ до $3.8 \cdot 10^{-7}$ вагових процента.

По усередненим даним із зразків реперних площадок на 1989-90рр. розрахунки співвідношень паливної і конденсаційної компонент викидів в районі Краснянського старика заправи р. Прип'ять представлені в таблиці 3.

Таблиця 3

Точка відбору	Доля Cs в конденсаті (%)	Доля Cs в паливі, (%)
площадка 1,2,4,5	1-2	98-99
площадка 3 (пальмер)	9-11	89-91
донні відклади, пл. 4	10-14	86-90

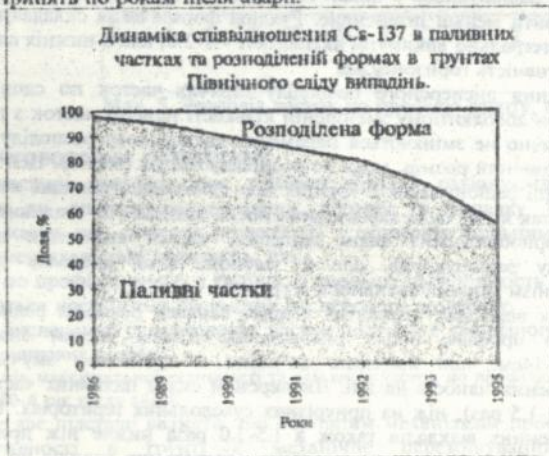
Динаміка форм розподілу активності в ґрунтах після аварії.

За визначенням:

1. Паливна форма - локалізація активності в паливних частках.
2. Розподілена форма - активність в мобільній та фіксованій формах (випадіння в конденсаті та активність, яка на даний момент вийшла з паливних часток).

За десять років після аварії це співвідношення по цезію перерозподілилось, в середньому, по зоні відчуження як 60% до 40%. По стронцію 90 розподіл між локалізацією в частках та розподілом в рухливій формі на 1995р. ще більше зсунуто в сторону часток: 70% до 30%. Тут слід відмітити, що ще з моменту аварії стронцій практично не фракціонував з палива і потрапив в оточуюче середовище в складі паливних часток. В складі паливних часток викинуті в середовище і всі напрацьовані в реакторі трансуранові елементи (ТУЕ). Тому міграція гарячих часток в ґрунтах практично визначає міграцію таких основних біологічно шкідливих радіонуклідів як цезій, стронцій та актиніди.

Для Північного сліду випадіння, де проводяться спостереження з 1989р., початкове співвідношення паливної та розподіленої форм складало в середньому 90% до 10% (по цезію) відповідно. На 1995р. нижня оцінка активності по цезію, розподіленої в частках, складає 40-60%. Це пов'язано з тим, що дисперсний склад часток Північного напрямку відрізняється переважно тонкодисперсною фракцією паливних часток. Середньогометричний діаметр по розподілу складає 1.0-1.5мкм. Крупні частки (більше як 15-20мкм) практично не зустрічаються. Генетично частки Північного сліду викиду - в основному продукти горіння графіту (графітова сажа) з вкрапленими тонкодисперсними паливними частками, з радіонуклідним складом відповідним складу опроміщеного палива "середнього" по затрузці на 26.04.86р.. На мал. 3 показана динаміка зміни співвідношення паливної та рухливої компоненти по цезію 137 в ґрунтах заплави р. Прип'ять по рокам після аварії.



Мал. 3

На Західному сліді викиду, де середній розмір часток більший (8-10мкм) доля активності в частках складає 80-90% за травень 1995р.. При такому складі забруднення навіть на 10-й рік після аварії міграція активності в ґрунті визначається переносом "гарячих" часток. Частки Західного сліду - дисперзоване ядерне паливо. Навіть на відстанях 20-30км. від ЧАЕС зустрічаються фрагменти палива розмірами 200-400мкм. Дисперсний та нуклідний склад однорідний практично по всій довжині сліду; з відстанню зменшується тільки питома щільність викидів.

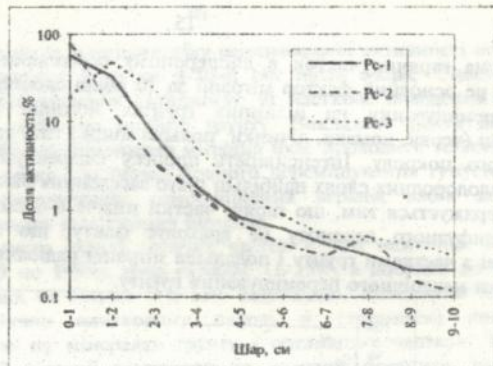
Міграція гарячих часток по профілю ґрунту.

Характерні епюри профільного розподілу інтегральної активності, кількості гарячих часток та активність локалізованої в складі гарячих часток по Північному сліду викиду представлені на мал. 4,5,6. Дані приведені на травень 1995р.. Колонка Рс_1 - суходольна ділянка, пісчаний ґрунт; Рс2_95 - аномально забруднена приурізна ділянка; Рс_3 - ґрунт водорозділу, зволожувана ділянка, торф'яно-гумусний ґрунт.

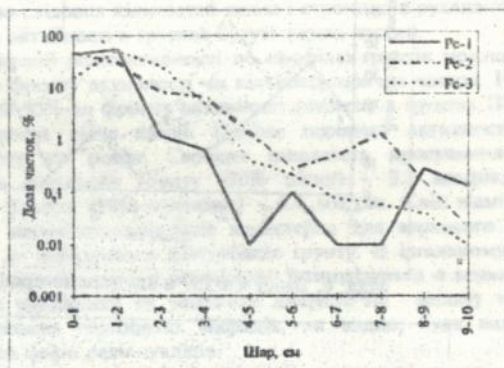
З епюр видно, що розподіл часток по профілю ґрунту практично повторює розподіл інтегральної активності. Це підтверджує припущення про міграцію активності в складі гарячих часток. 95% активності на 10-й рік після аварії зосереджено в верхніх 4-5см. На пісчаних ґрунтах активність менш рухлива (95% активності до 3см.), в торф'яно - гумусних ґрунтах відмічено розширення розподілу активності та часток (95% - до 5-6см.), і зменшення максимуму активності по профілю на 10-й рік після аварії до 2-3см. В нижніх шарах ґрунту відмічається підвищення долі активності в розподіленій формі відносно знаходження в частках. Це можливо пояснити вимиванням частини рухливих форм радіонуклідів в нижні горизонти, а проникнення самих часток в нижні горизонти менш інтенсивне. Рухливі форми цезія складають слідові кількості від інтегрально викинутої активності - 1-2%, але в нижніх слоях вони визначають активність горизонту.

Дослідження дисперсного розподілу гарячих часток по слоям ґрунту показує, що при абсолютному зменшенні кількості гарячих часток з глибиною (мал. 5) практично не змінюються параметри дисперсного розподілу часток - середньогогеометричний розмір, мода по розподілу часток (мал 7). Цей факт при вивченні міграції радіонуклідів в ґрунтах при глобальних викидах не міг бути зафіксований, так як не було характерних носіїв активності - паливних часток. В випадку чорнобильських форм випадіння, частки являються не тільки трасерами руху радіонуклідів, але й засобом, який дозволяє визначити основний механізм міграції активності в ґрунті.

В донних відкладах замкнутах водою заплави розподіл радіоактивних забруднень по профілю більш рівномірний. Гарячі частки знайдені до горизонтів 10-14см., що ймовірно зв'язано з процесами змучування та осадконакопичення наносів на дні. Дисперсний склад паливних часток більш крупний (в 1.3-1.5 раз), ніж на приурізних суходольних територіях. Щільність забруднення донних відкладів також в 1.5-3.0 раза нижче ніж прилягаючих територій. Це зв'язано з змивом початкових аерозольних викидів на приурізну берегову лінію.



Мал. 4. Розподіл активності ^{137}Cs по профілю ґрунту, в %.



Мал. 5. Розподіл часток по профілю ґрунту, в %.

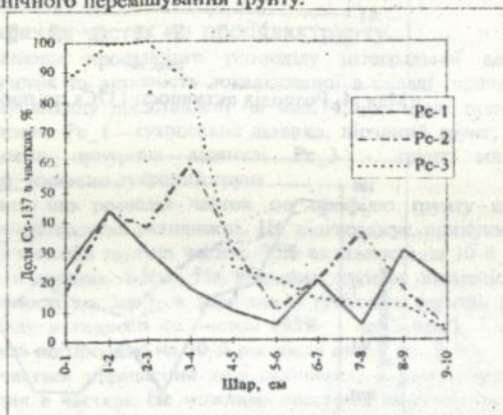
Обговорення результатів.

Класичні уявлення про процеси міграції радіонуклідів в ґрунтових системах як дифузно-конвективний перенос в випадку Чорнобильських викидів мають ряд суттєвих розходжень з експериментальними результатами. Експериментальні дані показують, що:

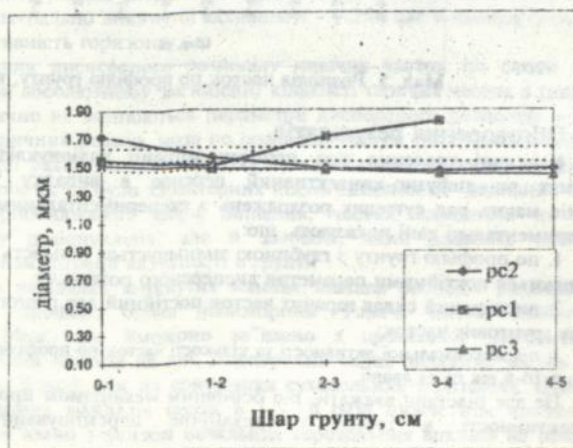
1. по профілю ґрунту з глибиною зменшується кількість часток, але залишаються постійними параметри дисперсного розподілу;
2. дисперсний склад гарячих часток постійний для різного фракційного складу ґрунтових часток;
3. пік максимальної активності та кількості часток по профілю зсунутий до 2-3 см на 8-10-й рік після аварії.

Це дає підставу вважати, що основним механізмом профільної міграції радіоактивності в ґрунті є механічне перемішування дисперсного

середовища гарячих часток в дисперсному середовищі ґрунту. В усякому випадку, це основний фактор міграції за 10 років спостереження після аварії. Таке перемішування на циліндричних ґрунтах можливе тільки біологічними об'єктами (черви, комахи, личинки, польові миші і т.п.) та корневою системою рослинного покриву. Інтенсивність процесу перемішування максимальна в верхніх плодородних шарах найбільш густо заселених біологічними об'єктами. Це підтверджується тим, що гарячі частки нижче 6-8 см не знайдені. Також, модель дифузійного переносу не враховує факту, що гарячі частки щільно агреговані з частками ґрунту і подальша міграція радіоактивності визначається процесами механічного перемішування ґрунту.



Мал. 6. Вміст Cs-137 в частках по профілю ґрунту, в %.



Мал. 7. Розподіл середньогометричних розмірів часток по глибині ґрунту.

Слід відмітити факт зміщення піку максімальної активності по профілю до 2-3 см, і розширення його на 8-10-й рік після аварії. Спостерігається активний процес вирівнювання активності, та часткове виведення з верхніх життєзосереджених слоїв, по глибині ґрунту. Викладені факти дозволяють припустити, що найбільш інтенсивно міграція буде проходити тільки в верхніх життєзосереджених слоях і за період повного перемішування гумусного слою. При цьому можливе часткове самоочищення верхніх слоїв за рахунок репродуктивного процесу відкладення біомаси.

Зміна дисперсного складу гарячих часток в часі незначна. За 8 років спостережень з 1989 по 1995р. вона складалася 15-25%, а добавки до мобільних форм цезію і стронцію не більше 5 и 15% відповідно. Невеликий процент по цезію (при приблизно однаковому виході зі стронцієм) пояснюється вторинною сорбцією на мінералах ґрунту і органічних частках. Тобто при розгляді профільної міграції активності за часовий проміжок після аварії паливну матрицю можна розглядати стійкою з точністю до 20-30% для трансуранових радіонуклідів і більшості продуктів ділення, і, якщо не враховувати міграцію слідових кількостей цезію і стронцію в рухливих формах, то основним носієм активності в ґрунтах будуть гарячі частки.

Швидкість міграції радіоактивності по профілю ґрунтів можна оцінити як міграцію 95%-го фронту активності чи кількості гарячих часток. На мал. 8 показане просування 95%-го фронту активності (часток) в ґрунтах Північного сліду викиду по роках після аварії. Процес переносу активності носить рівномірний характер по роках. Середня швидкість просування фронту активності: 1) для піщаного ґрунту (90% піску) - 3.2 мм/рік; 2) для торфово-гумусного ґрунту (90% органіки) - 4.4 мм/рік. Слід відмітити, що дана інтенсивність перемішування буде характерна для верхнього гумусно-вміщуючого шару, де відбувається біотурбація ґрунту. В ідеальному випадку активність в складі гарячих часток рівномірно розподіляється в верхньому 10-20см. шарі та буде працювати як вторинне джерело на відстані мобільних форм. В більш низьких горизонтах міграція, як видно, буде визначатися переносом мобільних форм радіонуклідів.

Розуміння основних механізмів міграції активності в зоні аерації в випадку Чорнобильської аварії дозволить корисним чином відкоректувати модельні підходи до прогнозу ґрунтової міграції.

Основні висновки

1. Забруднення Північного сліду радіоактивних випаділь (найближчі 20-25км від ЧАЕС) сформовано в основному тонкодисперсними твердофазними паливними формами з початковим співвідношенням між парогазовою та паливної компонентами відповідно (1-15)% и (85-99)%. Середня щільність забруднення в районі Краснянського старика складає 150-300 Ки/км² (локально по Cs-137 до 10 -20 тис. Ки/км²).

2. Вміст палива в ґрунтах (заплава р. Прип'ять - 8 км. від ЧАЕС) збережені на вищій активності Ce-144 складає від 2.5×10^{-5} до 1.1×10^{-3} вагових процента [гр. палива/гр. зразку].

3. Середній геометричний розмір по дисперсному розподілу гарячих часток Північного сліду складає 1.5-1.6мкм по даним 1995г.. В 1991-1992гг. він

дорівнював 1.0-1.1мкм.. Зміщення в сторону більших розмірів по розподілу вказує на розчинення дрібних фракцій часток за вказаний період часу.

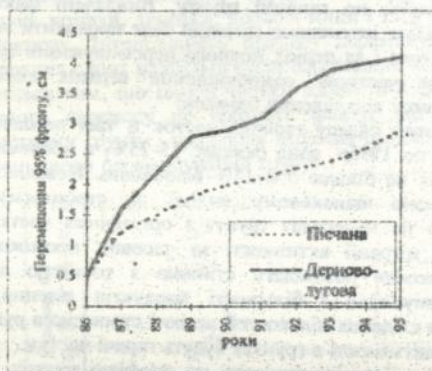


Рис. 8. Середні переміщення 95%-го фронту активності по профілю ґрунту зони відчуження ЧАЕС.

В абсолютних значеннях доля розчиненої дрібнодисперсної фракції часток складає 15-25% за 5-8 років.

4. В дольних відкладах замкнених водойм заплави розподіл радіоактивних речовин по профілю більш рівномірний. Гарячі частки виявляються до горизонтів 10-14см., що ймовірно зв'язане з процесами змучування та осадконакопичення наносів на дні. Дисперсний склад паливних часток більш крупний (в 1.3-1.5 раз) ніж на приузьких суходільних територіях. Щільність забруднення дольних відкладів також в 1.5-3.0 рази нижче ніж на прилеглих територіях. Це пов'язано зі зливом первинних аерозольних викидів на приузьну берегову лінію.

5. Західний слід радіоактивних викидів зформований також в основному паливними формами випадіння без накладення конденсаційних випадіння по довжині сліду. Співвідношення конденсаційної та паливної компонент викидів в даному напрямку практично не змінюється від відстані і складає 10-40% до 60-90% відповідно.

6. Середній геометричний розмір часток по Західному сліду більший ніж на Північному і складає 8-10мкм по всій довжині сліду (до границь зони - 30км.). Крупні частки 30-100мкм. зустрічаються до 32км по Західному сліду.

7. За десять років після аварії співвідношення між паливною і розподіленою формами цезію в ґрунті перерозподілилося в середньому по зоні відчуження як 60% до 40%. По стронцію 90 розподіл між локалізацією в частках і розподілом в рухливій формі на 1995г. складає відповідно 70% до 30%.

8. Швидкість трансформації часток (перерозподіл форм по цезію) для Північного сліду викиду вище ніж для Західного та складає, за дев'ять років після аварії, 40 до 30% відповідно.

9. Розподіл часток по профілю ґрунту практично повторює розподіл інтегральної активності. Це підтверджує припущення про міграцію не вилученої активності в складі гарячих часток. 97% активності на 9-й рік після аварії зосереджено в верхніх 4-5 см. В нижніх шарах ґрунтів відмічається підвищення долі активності в розподіленій формі відносно вмісту в частках. Рухливі форми цезію складають незначні кількості від інтегральної викинутої активності - 1-5%, але в нижніх шарах вони визначають активність горизонту.

10. Основним механізмом профільної міграції радіоактивності в ґрунті є механічне перемішування дисперсного середовища гарячих часток в дисперсному середовищі ґрунту. Таке перемішування на ділнних участках ґрунту можливе тільки в результаті біотурбації (черв'яки, комахи, личинки, коренева система рослинного покриву і т.д.). Гарячі частки нижче 6-8 см, за станом на 1995р., не виявлені.

11. Середня швидкість просування фронту активності: 1) для пічаного ґрунту (90% піску) - 3.2 мм/рік; 2) для торф'яно-гумусного ґрунту (90% органіки) - 4.4 мм/рік.

Основний зміст дисертаційної роботи викладений в публікаціях.

1. О.В.Войцехович, А.И.Шершевский, В.В.Демчук, В.В.Канивец " Гидрологические процессы как фактор миграции радионуклидов цезия в водоемах и речной сети, подверженной радиоактивному загрязнению в результате аварии ЧАЭС", Сб. "Геофизические аспекты Чернобыльской аварии", Гидрометеиздат, 1989г.

2. О.В.Войцехович, В.В.Демчук, Г.В.Лаптев "Анализ вторичных эффектов радиоактивного загрязнения р. Припять в результате обводнения пойменных территорий ближней зоны ЧАЭС", Сб. трудов УкрНИГМИ, вып. 240, 1990г.

3. О.В.Войцехович, В.В.Демчук, Г.В.Лаптев "Радиоактивное загрязнение поймы р. Припять, как основной потенциальный источник поступления стронция-90 в водохранилища Днепровского каскада", в кн. "Приципы и методы ландшафтно-геохимических исследований миграции радионуклидов", ГеоХИ, Москва, 1989г.

4. В.В.Демчук, Н.В.Викторова, В.В.Морозов, Е.Б.Ганжа "Исследование дисперсных и радионуклидных характеристик радиоактивных частиц Чернобыльских выпадений методами макрорадиографии", В кн. труды УкрНИГМИ, Москва Гидрометеиздат, вып. 245, 1993г., с. 151-167.

5. В.В.Демчук, Н.В.Викторова, С.П.Трегьякова, А.Б.Акопова "Использование твердотельных ядерных трековых детекторов для изучения дисперсного состава и альфа-активности топливных выпадений в водно-почвенных средах после чернобыльской аварии", В кн. труды УкрНИГМИ, Москва Гидрометеиздат, вып. 245, 1993г., с. 167-180.

6. V.V.Demchuk, O.V.Voiteckhovich, V.A.Kashparov, N.V.Victorova, G.V.Laptev " Analysis of Chernobyl's fuel particles and dispersion of their components in water and soil after accident", In: Proc. Seminar on Comparative assessment of the environmental impact of radionuclides released during three major nuclear accidents: Kyshtym, Windscale, Chernobyl, October 1-5, IUR 13574, Vol. 1, Luxembourg, 1990, p. 493-514.

7. V.V. Demchuk, O.V. Voitsekhovich, V.V. Morozov "The analysis of pathways of radionuclides migration from the closer zone of Chernobyl NPP for elaboration of water protection countermeasures", In: Proc. IUR Soviet Branch Seminar on the Radioecology and Counter-measures, April 27 - May 2, Kiev, 1991, p.145-160.

8. I.Ya. Billyi, V.V. Demchuk, O.V. Voitsekhovich "Two-component vertical migration of Chernobyl fallout", In: Proc. IUR Soviet Branch Seminar on the Radioecology and Counter-measures, April 27 - May 2, Kiev, 1991, p.181-188.

9. N.V. Victorova, V.V. Demchuk "Five years transformation of Chernobyl hot particles and recycling of radionuclides in Soil-plant systems in near zone Chernobyl NPP", Final Circular, XXVII-esr Pre-Symposium "Measurements of radionuclides after the Chernobyl Accident", Division of Analytical Chemistry Norwegian Chemical Society, Norway, 1991.

10. V.V. Demchuk, N.V. Victorova, V.V. Morozov, E.B. Ganja. On study of disperse and radionuclide characteristics of Chernobyl fall-out particles by means of macroradiography. In: Proc. II Intern. Workshop on Solid State Nuclear Track Detectors, March 24-27, E-7-93-61, JINR Dubna, 1992.

11. N.V. Victorova, V.V. Demchuk, S.P. Tretiakova. Usage of the soil-state nuclear detectors for study of the dispersity composition and fuel fallouts alpha-activity in the water-soil mediums after the Chernobyl accident. In: Proc. II Intern. Workshop on Solid State Nuclear Track Detectors, March 24-27, E-7-93-61, JINR Dubna, 1992.

12. V.V. Demchuk, N.V. Victorova, V.V. Morozov, E.B. Ganja "Migration and transformation of fuel particles in soil-water system in near zone NPP", In: Proc. of the International Symposium on Radioecology, Chemical Speciation - Hot Particles, October 12-16, 1992.

13. N.V. Victorova, V.V. Demchuk, E.B. Ganja, S.P. Tretiakova, A.N. Golovchenko. Nondestructive control of Chernobyl hot particles behavior and migration of radionuclides in soil-plant system. Nucl. Tracks Radiat. Meas., Vol. 22, Nos 1-4, pp. 885-888, 1993.

14. В.В. Демчук, Е.К. Гаргер, В.В. Токаревский, Н.И. Проскура, В.Е. Тепикин, Особенности механизмов миграции радиоактивных загрязнений черновыльской аварии в почвах зоны отчуждения ЧАЭС, Труды 5-й международной конференции "Итоги 10 лет работ по ликвидации последствий аварии на ЧАЭС", Зеленый мыс 1996, с.59.

15. О.А. Бондаренко, В.В. Демчук, В.Е. Тепикин, В.А. Нагорский, Hot particle factor in radiation dose formation after the Chernobyl accident, Труды Международной конференции, Минск, 18-23 марта, 1996.

16. В.В. Демчук, А.Н. Херувимов, С.И. Богатов "Исследование объемной активности радона 222 газовоздушной среды в помещении объекта "Укрытие", Отч. НИО КЭ при ИАЭ им. И.В. Курчатова, №11.07-06/13, Чернобыль, 1989г.

АНОТАЦІЇ

Демчук В.В. Процеси трансформації та міграції частинок ядерного палива в водно-ґрунтових середовищах зони відчуження ЧАЕС. Дисертація на соискание ученої ступеня кандидата технічних наук по спеціальності 05.26.05 - інженерна радіоекологія, НТУУ "КПІ". Київ 1996.

Защищается диссертационная работа, основные результаты которой опубликованы в 17 работах, которая содержит изложение экспериментальных материалов и расчетов по трансформации и миграции частиц ядерного топлива в условиях окружающей среды. Отработаны и откалиброваны методики автордиографии и регистрации на ТТДЯ по локализации и идентификации радиоактивных частиц Чернобыльской аварии в образцах окружающей среды. Сделаны выводы об основных механизмах миграции горячих частиц в почвах, рассчитаны коэффициенты трансформации топливных частиц и скорости миграции по профилю почв.

Demchuk V.V. Transformation and migration of dispersed fuel particles in water-soil systems near zone NPP. Dissertation to become scientific degree of candidate of technical sciences in 05.26.05 - engeneering ecologic, Kiev politechnical institute. Kiev, 1996.

Results of 16 papers present reseach pathway migration and transformation of the hot radioactive particles in water-soil systems near zone NPP.

Ключові слова:

Паливні частки, макрорадіографія, твердотільні трекові детектори (ТТДЯ), гарячі частки, міграція, трансформація паливних часток, водно-грунтові середовища, трансуранові елементи (ТУЕ), продукти ділення.

КОО 3ак. 212-100

11/16/10

AB 34.843
AB 34.843