

РАДИОАКТИВНОЕ ЗАГРЯЗНЕНИЕ ЗОНЫ ОТЧУЖДЕНИЯ ЧАЭС ТОПЛИВНЫМИ ЧАСТИЦАМИ И ИХ РАДИОЛОГИЧЕСКАЯ ЗНАЧИМОСТЬ

В. А. Кашпаров

Украинский научно-исследовательский институт сельскохозяйственной радиологии, Киев

Дана оценка радиозэкологической значимости топливной компоненты чернобыльских радиоактивных выпадений. Изучены физико-химические свойства чернобыльских "горячих" частиц. Уточнено общее содержание радионуклидов в 30-сантиметровом почвенном слое 30-километровой зоны ЧАЭС на 1 января 2000 г. за пределами промплощадки: $^{90}\text{Sr} - 7,7 \cdot 10^{14}$ Бк; $^{137}\text{Cs} - 2,8 \cdot 10^{15}$ Бк; $^{154}\text{Eu} - 1,4 \cdot 10^{13}$ Бк; $^{238}\text{Pu} - 7,2 \cdot 10^{12}$ Бк; $^{239+240}\text{Pu} - 1,5 \cdot 10^{13}$ Бк; $^{241}\text{Am} - 1,8 \cdot 10^{13}$ Бк, что соответствует 0,4 – 0,5 % от наработки этих радионуклидов в реакторе и в три раза ниже общепринятых до этого величин. Оценена величина относительного выброса радионуклидов в составе топливных частиц во время аварии за пределы промплощадки ЧАЭС, составившая $1,5 \pm 0,5$ % от наработки радионуклидов в реакторе, что в два раза ниже ранее приводимых оценок. Изучена кинетика и получены зависимости скорости растворения топливных частиц как в естественных условиях, так и в модельных средах. Рассмотрена ресуспензия радионуклидов в естественных условиях, при техногенном воздействии на почву и лесных пожарах, а также ингаляционная опасность поступления топливных частиц в организм человека.

Введение

Чернобыльские радиоактивные выпадения представлены топливной компонентой – частицами мелкодиспергированного ядерного топлива (топливными частицами) и конденсационной компонентой, образовавшейся в результате конденсации на поверхности различных носителей летучих высокоподвижных продуктов деления (радиоизотопов йода, технеция, цезия и, в значительно меньшей, степени стронция и рутения), утечка которых происходила при высокотемпературном отжиге ядерного топлива [1 - 6]. Ближняя 30-километровая зона аварии (около 2000 км²) преимущественно была загрязнена топливными частицами, содержащими основную часть выброшенных из реактора нелетучих радионуклидов, включая такие биологически значимые, как ^{90}Sr , радиоизотопы плутония и америция. Топливные частицы были обнаружены и на значительном удалении от ЧАЭС во многих странах Европы [7].

Отсутствие знаний о поведении в окружающей среде радионуклидов, выпавших в составе матрицы частиц облученного ядерного топлива, не позволяло в полной мере корректно оценить радиологическую обстановку в ближней зоне во время аварии на ЧАЭС и спрогнозировать ее изменение в будущем, а также оптимизировать применяемые контрмеры.

В статье обобщены основные результаты работы по изучению свойств и поведения чернобыльских "горячих" частиц в окружающей среде [3].

Физико-химические свойства топливных частиц и механизмы их образования во время аварии на ЧАЭС

В 1987 - 1989г.г. путем сканирования дозиметром тонкого почвенного слоя было выделено более 1200 сравнительно крупных "горячих" частиц (и около 500 в период с 1989 по 1996 г.) размером > 10 мкм и активностью > 100 Бк, образовавшихся в результате аварии на ЧАЭС [1 - 5]. В ближней зоне аварии на ЧАЭС "горячие" частицы размером более 10 мкм представлены в основном (97 %) частицами мелкодиспергированного чернобыльского ядерного топлива – топливными частицами. Удельная активность этих частиц соответствует удельной активности топлива на момент аварии за исключением летучих высокоподвижных радионуклидов – $^{134,137}\text{Cs}$. Наличие делящегося материала в них подтвердил нейтронно-активационный анализ и электронно-зондовый микроанализ, а также лазерная масс-спектрометрия (обогащение по $^{235}\text{U} - 1 - 2$ %). Распределение топливных частиц размером более

10 мкм по глубине выгорания свидетельствует о том, что они были выброшены из локальной области реактора, имеющей меньшее выгорание по сравнению со средним выгоранием топлива в 4-м блоке ЧАЭС на момент аварии [2, 8, 9]. На основании экспериментальных данных получены соотношения между активностями ^{90}Sr , ^{95}Zr , ^{106}Ru , ^{125}Sb , ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{144}Ce , ^{154}Eu , ^{155}Eu и трансурановыми элементами (ТУЭ) в топливных частицах, что позволяет рассчитывать загрязнение территории основными радиологически значимыми радионуклидами в составе топливной компоненты выпадений. Полученная экспериментальная информация вошла в созданную в среде Microsoft Access базу данных "Горячие частицы". Данная база данных широко используется как в странах СНГ, так и в дальнем зарубежье и доступна для широкого круга пользователей. Дисперсный состав топливных частиц в первоначальных радиоактивных выпадениях на удалении 2 - 60 км от ЧАЭС описывается логнормальным законом распределения с медианным радиусом топливных частиц около 3 мкм [10]. Основная доля активности радионуклидов топливной компоненты чернобыльских радиоактивных выпадений приходится именно на топливные частицы микронного диапазона. Вклад крупных частиц размером более 10 мкм в плотность загрязнения территории на удалении более 2 км от ЧАЭС является незначительным. Слабо трансформированные топливные частицы могли образоваться на первой стадии Чернобыльской аварии при механическом разрушении топлива во время взрыва (26 апреля 1986 г.) и были выброшены преимущественно в западном направлении. Они представляют собой кусочки ядерного топлива с хорошо выраженной «зернистой» структурой либо отдельные зерна (кристаллиты) UO_2 , что обусловлено технологией производства топлива. Внешний вид слабо трансформированных во время аварии чернобыльских топливных частиц после достаточно длительного их нахождения в почве (до 15 лет) практически не отличается от частиц реального облученного ядерного топлива сразу после окончания его эксплуатации. Это указывает на крайне малую скорость растворения UO_2 -частиц в окружающей среде [11].

На последующих стадиях аварии происходило образование топливных частиц с высокой степенью трансформации их матрицы. Ядерное топливо при окислении на воздухе разрушалось по границам зерен. В результате диффузии кислорода в зерно поверхность UO_2 растрескивалась за счет различий плотности и кристаллических решеток разных окислов урана. При высокой аварийной температуре топливо могло частично оплавляться. Оно контактировало с различными конструкционными материалами и материалами засыпки реактора, что привело к образованию сложных химических соединений, особенно на поверхности топливных частиц. Как правило, крупные оплавленные топливные частицы содержат цирконий [11]. Поэтому значительная доля этих частиц приходится именно на оплавленные U-O-Zr-частицы, которые имеют больший размер по сравнению с «чистыми» частицами диоксида урана, преимущественно разрушившегося до исходных кристаллитов меньшего размера. Поэтому при изучении поведения топливных частиц в окружающей среде для получения репрезентативных данных необходимо использовать статистически достоверную выборку частиц (например, реально присутствующую в почве), а не отдельные выделенные крупные частицы.

Для лучшего понимания процессов, происходящих в аварийном блоке, и оценки дисперсного состава выброшенных во время аварии топливных частиц, были проведены эксперименты по моделированию их образования во время аварии. В модельных экспериментах было показано, что в результате окисления на воздухе при температуре 673 - 1173 К реального облученного чернобыльского ядерного топлива в течение 1 - 21 ч происходит его разрушение на мелкие частицы, дисперсный состав которых хорошо описывается логнормальным законом распределения [12] и соответствует дисперсному составу радиоактивных выпадений [10]. Получены параметры распределений дисперсного состава топливных частиц [12, 13]. Медианный радиус образующихся частиц не зависит от температуры отжига и уменьшается с увеличением времени до размеров зерен (кристаллитов) ядерного топлива (~6 мкм). Исходя из дисперсного состава и состава матрицы реальных чернобыльских топли-

вных частиц, можно сделать вывод, что окисление ядерного топлива было одним из основных механизмов их образования во время аварии на ЧАЭС.

При окислении на воздухе и диспергировании реального облученного оксидного ядерного топлива даже при температуре 673 К происходит утечка рутения в виде летучего RuO_4 с последующим его восстановлением на материалах группы железа. Окисление и утечка рутения происходит только с поверхности зерен и не превышает единиц процентов от его содержания в топливной матрице [12]. Показано, что никель и нержавеющей сталь можно эффективно использовать при высоких температурах для поглощения радиоизотопов рутения в аварийных ситуациях и при некоторых технологических операциях.

Экспериментальные данные по измерению динамики относительной утечки продуктов деления при высокотемпературном отжиге топливных частиц показали, что с увеличением температуры отжига реальных топливных частиц в инертной среде в диапазоне от 1273 до 2273 К растет относительная утечка радионуклидов в следующей последовательности: изотопы цезия > изотопы европия > изотопы церия > изотопы америция > изотопы рутения, плутония, кюрия [12].

На основании данных о коэффициентах фракционирования ^{137}Cs и ^{90}Sr в чернобыльских топливных частицах с учетом их выгорания и полученной зависимости эффективных коэффициентов диффузии от температуры сделана оценка эффективного времени и температуры отжига топливных частиц во время аварии. Полученные распределения эффективных значений температур (Т) и времен (t) изотермического отжига выброшенных из реактора топливных частиц (медианное значение $T = 2400$ К и $t = 3,5$ с соответственно) указывают на "взрывной" характер образования топливных частиц (размером >10 мкм) при быстром росте температуры отжига во время аварии. При неизотермических условиях для линейного и экспоненциального роста температуры получены близкие значения медианных максимальных температур отжига топливных частиц во время аварии ($T = 2630$ К и $T = 2640$ К соответственно) и несколько большие медианные времена отжига ($t = 17$ с и $t = 27$ с соответственно) [8, 9].

На основании данных о распределении топливных частиц и ядерного топлива в реакторе по глубине выгорания сделана попытка и показана возможность определения области их первоначального выброса из реактора во время взрыва на ЧАЭС [9].

Загрязнение территории радионуклидами топливной компоненты радиоактивных выпадений

Ближняя зона аварии (до 30 - 100 км) была загрязнена в основном топливной компонентой радиоактивных выпадений (топливными частицами) в виде четко выраженных следов: западного, северного и южного. Такие радионуклиды, как ^{95}Zr , ^{95}Nb , ^{99}Mo , $^{141,144}\text{Ce}$, $^{154,155}\text{Eu}$, $^{237,239}\text{Np}$, $^{238-242}\text{Pu}$, $^{241,243}\text{Am}$, $^{242,244}\text{Cm}$, были выброшены из аварийного блока только в составе топливных частиц. Более 90 % утечки активности $^{89,90}\text{Sr}$ и $^{103,106}\text{Ru}$ также приходилось на топливные частицы. В 1997 г. был проведен комплекс работ по уточнению загрязнения ближней зоны аварии на ЧАЭС [5, 6, 16]. В первую очередь работы были направлены на картирование 30-километровой зоны по ^{90}Sr и ТУЭ, что было связано с растворением топливных частиц и увеличением содержания мобильного радиостронция в почве.

Большая методическая работа по оптимизации процесса пробоотбора и измерений образцов почвы [14, 15] предшествовала началу работ по крупномасштабному пробоотбору. Пробы почвы отбирались в 30-километровой зоне ЧАЭС по регулярной сетке с шагом около 1 км (на участках с большими градиентами плотности загрязнения расстояние между точками отбор проб составляло 0,1 – 0,5 км). На основании измерений активности почвенных проб по $^{134,137}\text{Cs}$, ^{90}Sr , ^{154}Eu и ТУЭ (четыре параллельных образца в каждой точке) в среде Microsoft Access была создана база данных экспериментальной информации «Проба». На основании этого впервые были построены интегрированные карты плотности загрязнения 30-километровой зоны в масштабе 1:200000 радионуклидами топливной компоненты радио-

активных выпадений (^{90}Sr , ^{154}Eu , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am). Интегрирование поверхности загрязнения территории показало, что общее содержание радионуклидов в 30-сантиметровом почвенном слое 30-километровой зоны ЧАЭС на 1 января 2000 г. за пределами промышленной площадки (без учета мест захоронения радиоактивных отходов и пруда-охладителя) составляет: $^{90}\text{Sr} - 7,7 \cdot 10^{14}$ Бк; $^{137}\text{Cs} - 2,8 \cdot 10^{15}$ Бк; $^{154}\text{Eu} - 1,4 \cdot 10^{13}$ Бк; $^{238}\text{Pu} - 7,2 \cdot 10^{12}$ Бк; $^{239+240}\text{Pu} - 1,5 \cdot 10^{13}$ Бк; $^{241}\text{Am} - 1,8 \cdot 10^{13}$ Бк [5, 6, 16]. Суммарный запас радионуклидов топливной компоненты радиоактивных выпадений в поверхностном слое почвы 30-километровой зоны Украины соответствует 0,4 – 0,5 % от наработки этих радионуклидов в 4-м блоке ЧАЭС, что в три раза ниже общепринятых до этого величин, полученных еще в первые годы после аварии. Около 70 – 80 % запаса активности радионуклидов топливной компоненты чернобыльских радиоактивных выпадений в 30-сантиметровом поверхностном слое почвы сосредоточены всего на 10 % центральной части территории 30-километровой зоны ЧАЭС.

Было также оценено содержание радионуклидов топливной компоненты выброса в других объектах 30-километровой зоны и за ее пределами (таблица). Интегральный запас топливной компоненты чернобыльских радиоактивных выпадений за пределами промплощадки ЧАЭС по состоянию на 2000 г. составил (см. таблицу): $^{90}\text{Sr} - 3,0 \cdot 10^{15}$ Бк, $^{154}\text{Eu} - 3,8 \cdot 10^{13}$ Бк, $^{238}\text{Pu} - 2,0 \cdot 10^{13}$ Бк и $^{239+240}\text{Pu} - 4,30 \cdot 10^{13}$ Бк, что с учетом радиоактивного распада соответствует 1,4 – 1,8 % (для Украины около 1 %) от наработки этих радионуклидов в реакторе [16]. На основании полученных данных уточнена величина относительного выброса радионуклидов в составе топливных частиц во время аварии на ЧАЭС за пределы промплощадки ЧАЭС. Она составила $1,5 \pm 0,5$ % от наработки радионуклидов в реакторе и в два раза ниже ранее приводимых оценок. Две трети радионуклидов в составе матрицы топливных частиц выпало на территории Украины.

Абсолютное и относительное распределение активности (запаса) радионуклидов топливной компоненты чернобыльских радиоактивных выпадений за пределами промплощадки ЧАЭС по состоянию на 2000 г.

Объект	Запас радионуклидов, Бк		Соотношение запаса радионуклидов к их наработке в реакторе, %	
	^{90}Sr	^{238}Pu	^{90}Sr	^{238}Pu
Почвы 30-километровой зоны ЧАЭС Украины	$7,7 \cdot 10^{14}$	$7,2 \cdot 10^{12}$	0,45	0,52
Донные отложения пруда-охладителя ЧАЭС	$2,4 \cdot 10^{13}$	$2,4 \cdot 10^{11}$	0,01	0,02
Вынос радионуклидов р. Припять за 14 лет	$1,2 \cdot 10^{14}$	-	0,07	-
Все пункты временной локализации радиоактивных отходов в 30-километровой зоне и пункт захоронения радиоактивных отходов «Буряковка»	$5,0 \cdot 10^{14}$	$4,5 \cdot 10^{12}$	0,30	0,33
Почвы зоны отчуждения Беларуси	$6,0 \cdot 10^{14}$	$3,0 \cdot 10^{12}$	0,36	0,22
Почвы за пределами 30-километровой зоны ЧАЭС	$5,4 \cdot 10^{14}$	$4,3 \cdot 10^{12}$	0,32	0,31
(в том числе Украина)	$1,3 \cdot 10^{14}$	$1,1 \cdot 10^{12}$	0,08	0,08
Конденсационная составляющая радиоактивных выпадений	$4,5 \cdot 10^{14}$	-	0,27	-
(в том числе Украина)	$8,4 \cdot 10^{13}$	-	0,05	-
Всего	$3,0 \cdot 10^{15}$	$2,0 \cdot 10^{13}$	1,8	1,4
(в том числе Украина)	$1,6 \cdot 10^{15}$	$1,3 \cdot 10^{13}$	0,96	0,97

Кинетика растворения топливных частиц в почвах в естественных условиях и модельных средах

На основании измерений доли обменного чернобыльского ^{90}Sr и внесенного в почву в водорастворимой форме ^{85}Sr был разработан метод оценки степени растворения топливных частиц в почве и динамики перехода радионуклидов в мобильные формы в естественных условиях [10, 11, 17]. С помощью бета-спектрометрических измерений почвенных образцов, отобранных на различных направлениях и удалении от ЧАЭС, было установлено, что до настоящего времени до 20 % активности ^{90}Sr на узком западном следе и до 10 % в других направлениях не переходят в раствор даже при нагревании почвы в концентрированной азотной кислоте в течение нескольких часов в соответствии со стандартной радиохимической методикой вскрытия почвенных проб. По мере удаления от ЧАЭС доля активности ^{90}Sr , содержащаяся в химически сверхустойчивых частицах, монотонно уменьшается (на удалении 10 - 15 км составляет всего единицы процентов от валовой активности) [11]. Данные топливные частицы не будут растворяться в естественных условиях в обозримом будущем.

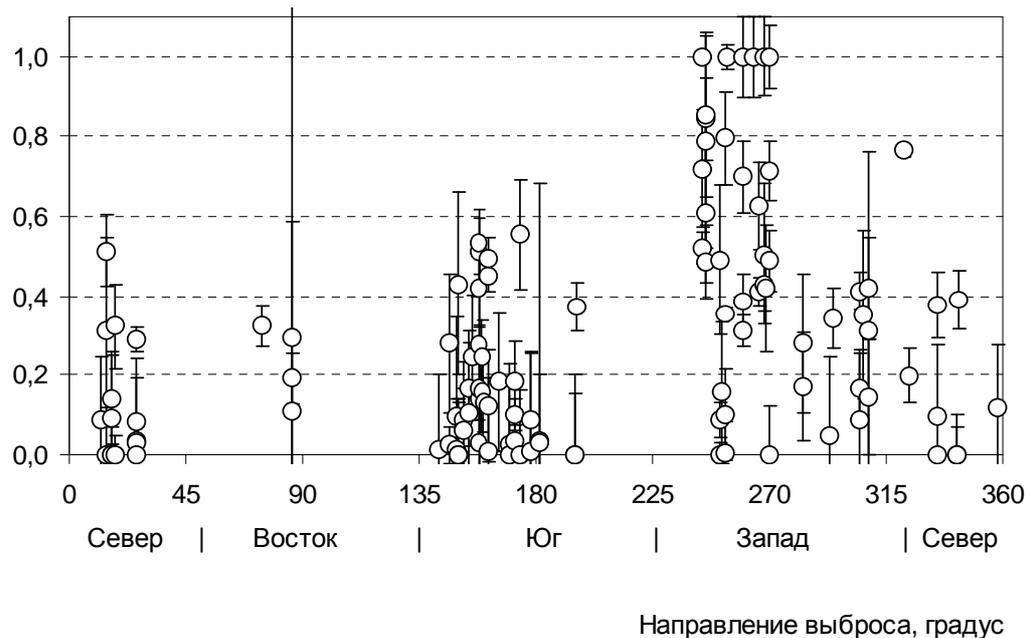
Полученные данные показали более высокую химическую устойчивость топливных частиц в почве на узком западном следе радиоактивных выпадений, образовавшемся в результате первого выброса во время аварии на ЧАЭС, по сравнению с частицами, выброшенными в других направлениях и образовавшимися в результате окисления ядерного топлива. Это указывает на то, что топливные частицы (отдельные зерна, кристаллиты окиси урана) с медианным диаметром порядка 4 - 6 мкм и их конгломераты можно условно разбить на три типа по скорости их растворения в естественных условиях [10, 11, 13]:

химически сверхустойчивые частицы (предположительно U-Zr-O, образовавшиеся в результате высокотемпературного сплавления конструкционного циркония оболочек твэлов в UO_2 [11]). Эти частицы образовывались в первый момент аварии 26 апреля 1986 г. и преимущественно выпали на узком западном следе;

не окисленные химически устойчивые топливные частицы (UO_2) первого выброса (26 апреля 1986 г.), образовавшиеся в результате механического разрушения ядерного топлива. Эти частицы выпали также преимущественно на узком западном следе (рисунок). Утечка продуктов деления из данного типа частиц во время аварии была минимальной, о чем свидетельствует постоянство соотношения в них продуктов деления;

химически слабо устойчивые частицы (UO_{2+x}), образовавшиеся в результате окисления ядерного топлива в период 26 апреля – 5 мая 1986 г. Эти частицы преимущественно выпали на северном и южном топливном следе (см. рисунок).

В реальных условиях в разных точках 30-километровой зоны ЧАЭС в первоначальных выпадениях имеем суперпозицию всех трех типов топливных частиц с различным их долевым вкладом в зависимости от направления и удаления от ЧАЭС. Разделение топливных частиц на три типа является условным, так как нет четких границ между разными типами частиц (степень окисления ядерного топлива и содержание в нем циркония (а также объемное распределение) могут изменяться в широком диапазоне). Анализ влияния физико-химических свойств почвы на растворение топливных частиц показывает, что скорость растворения однотипных частиц в наибольшей степени коррелирует с кислотностью водной вытяжки $\text{pH}_{\text{H}_2\text{O}}$. В наибольшей степени частицы сохранились в нейтральных почвах ($\text{pH}_{\text{H}_2\text{O}} > 6$) независимо от направления и расстояния от ЧАЭС. Так, даже на удалении на юг более 30 км в окультуренных нейтральных почвах ($\text{pH}_{\text{H}_2\text{O}}$ около 7), используемых в сельскохозяйственном производстве после аварии, в 1998 г. основная доля активности ^{90}Sr находилась в немобильной форме в составе топливных частиц (порядка 50 – 70 %) [11]. До настоящего времени в донных отложениях пруда-охладителя ($\text{pH}_{\text{H}_2\text{O}}$ около 7) более 90 % активности ^{90}Sr также содержится в составе топливных частиц, о чем свидетельствуют автораддиографические и радиохимические анализы образцов [18]. В многочисленных пунктах временной локализации радиоактивных отходов менее половины активности радионуклидов перешла из матрицы топливных частиц в почву за все послеаварийные годы [19].

Доля активности в UO_2 частицах

Доля первоначальной активности ^{90}Sr в составе UO_2 частиц (по отношению к суммарной активности в UO_2 и UO_{2+x} частицах) в ближней зоне аварии в зависимости от направления выброса.

Экспериментально показано, что скорость растворения топливных частиц в естественных условиях определяется как свойствами самих частиц - степенью окисления матрицы, так и кислотностью среды. Это же подтвердили модельные эксперименты по изучению кинетики растворения частиц облученного чернобыльского топлива разной степени окисления в растворах с pH от 3 до 9 [13]. Наименьшая скорость растворения топливных частиц наблюдалась в нейтральной среде. Неокисленные топливные частицы в нейтральной среде (pH около 7) практически не растворяются. Окисленные при температуре 670 К на воздухе топливные частицы в течение 1 - 21 ч имеют на порядок более высокие значения постоянных трансформации топливных частиц в растворах с pH = 4 - 9 по сравнению с неокисленными топливными частицами. Время окисления ядерного топлива в течение 1 - 21 ч не оказывает существенного влияния на скорость растворения топливных частиц.

В результате проделанной работы были получены параметры растворения топливных частиц в зависимости от их генезиса и кислотности среды [10, 11, 13, 16]. Это позволило на основании данных о доле активности ^{90}Sr в составе топливных частиц спустя 9 - 17 лет после их нахождения в почве, кислотности среды, постоянных трансформации частиц разной степени окисления оценить долю UO_2 и UO_{2+x} частиц в первоначальных радиоактивных выпадениях в зависимости от направления выброса (см. рисунок). Как и предполагалось, в среднем на долю UO_2 частиц приходилось около 60 ± 30 % активности ^{90}Sr на узком западном следе, образовавшемся в результате первоначального выброса 26 апреля 1986 г. Северный, восточный и южный следы радиоактивных выпадений, сформировавшиеся позднее, представлены в основном UO_{2+x} частицами, образовавшимися в результате окисления ядерного топлива (на долю UO_2 частиц здесь приходилось только 19 ± 10 , 23 ± 10 и 21 ± 17 % активности ^{90}Sr соответственно).

Скорость миграции радионуклидов непосредственно в составе матрицы топливных частиц соизмерима или значительно ниже скорости миграции ^{137}Cs , и тем более ^{90}Sr , на конденсационных следах радиоактивных выпадений. Топливные частицы являются своеобразной линией задержки вовлечения радионуклидов в процессы миграции в почве и перехода в корневую систему растений. Это приводит как к принципиально иным уровням, так и к

иной динамике содержания радионуклидов в биологически доступной форме в корнеобитаемом слое почвы и в растительности по сравнению с конденсационными выпадениями [3, 5, 10, 11, 16]. Динамика загрязнения ^{90}Sr растительности в первую очередь определяется кинетикой растворения топливных частиц и обусловленным этим изменением содержания мобильного ^{90}Sr в корнеобитаемом слое почвы. В зависимости от скорости растворения топливных частиц корневое загрязнение ^{90}Sr растительности в первые годы растет и достигает максимума только на 2 - 20 год. Наиболее поздно достигает максимума загрязнение растительности ^{90}Sr на нейтральных почвах (через 20 - 25 лет), при этом уровень загрязнения приблизительно в 2,5 раза ниже по сравнению с максимальным уровнем на конденсационных следах выпадений (в первые годы после выпадений различия достигают 10 раз). Учитывая динамику растворения топливных частиц в почве, можно сделать вывод, что радиологическая ситуация на топливных следах радиоактивных выпадений в настоящее время стабилизировалась. В составе матрицы топливных частиц (в малодоступной форме) находится менее 50 % активности радионуклидов от их общего запаса в почве. Учитывая радиоактивный распад ^{90}Sr , можно утверждать, что увеличение его абсолютного содержания в мобильной форме в нейтральных почвах будет наблюдаться в течение еще 10 - 20 лет, однако его максимальное содержание не превысит более чем на 20 % существующий в настоящее время уровень.

Вторичный перенос радионуклидов и ингаляционная опасность поступления топливных частиц в организм человека

Экспериментально установлено, что уже спустя два года после аварии не наблюдалось значимых различий во вторичном ветровом переносе радионуклидов, выпавших в составе топливных частиц и конденсационной форме, что обусловлено прочной фиксацией топливных частиц частицами почвы [20]. При нормальных метеоусловиях ветровой перенос радионуклидов даже при проведении сельскохозяйственных работ спустя несколько лет после аварии составляет десятые - сотые доли процента в год от запаса радионуклидов на единице площади и не может оказывать сколько-нибудь значимого влияния на вторичное радиоактивное загрязнение территории и дезактивированных населенных пунктов. Ветровой подъем усиливается при выполнении агротехнических мероприятий, особенно при культивации почвы, однако насыщение потока происходит на расстоянии 50 - 100 м от края поля. При лесных пожарах на загрязненных территориях концентрация радионуклидов в приземном слое воздуха может возрастать до 10^3 раз (с максимумом удаления на несколько километров от очага огня), однако это не приводит к значительному перераспределению активности и увеличению радиологической опасности за пределами 30-километровой зоны ЧАЭС [21].

Для корректной оценки дозовых нагрузок при ингаляционном поступлении топливных частиц в организм человека необходимо знание их дисперсного состава и класса растворимости. В модельных экспериментах с имитатором легочной жидкости показано, что радиоактивные черномыльские аэрозоли на топливных следах радиоактивных выпадений могут быть классифицированы как нерастворимые при рассмотрении их ингаляционного поступления в дыхательную систему человека [22], поскольку доля компоненты, имеющей период полураспада более 100 дней, составляет для различных радионуклидов 83,3 - 99,4 %. Коэффициент всасывания радионуклидов в желудочно-кишечном тракте из матрицы топливных частиц на два порядка величины ниже по сравнению с водорастворимыми формами [23].

Для различных видов тракторов и комбайнов, а также широкого набора агротехнических работ, была измерена концентрация и дисперсный состав радиоактивных аэрозолей непосредственно на рабочих местах механизаторов, являющихся критической группой населения [24, 25]. Показано, что даже для этой критической группы населения на территориях, загрязненных в результате Чернобыльской аварии топливными частицами, эффективные дозы от ингаляции радионуклидов (^{137}Cs , $^{238-240}\text{Pu}$, ^{241}Am) как минимум на порядок величины ниже дозовых нагрузок, обусловленных внешним облучением от ^{137}Cs в течение года.

Заклучение

В статье обобщены основные результаты работы по изучению свойств и поведения чернобыльских "горячих" частиц в окружающей среде. Рассмотрен весь комплекс главных факторов, определяющих радиологическую обстановку: загрязнение территории топливными частицами, их растворение и переход радионуклидов в мобильные формы, миграция в почве и загрязнение растительности, вторичный ветровой перенос, поступление в организм человека и сельскохозяйственных животных.

Каждая ядерная авария сама по себе уникальна по природе выброса и осаждения радиоактивных веществ. Однако несмотря на это полученные из опыта Чернобыльской аварии результаты могут быть использованы для оценки и прогноза радиологической обстановки в случае гипотетических ядерных аварий с выбросом частиц облученного ядерного топлива. Выявленные закономерности поведения топливных частиц в окружающей среде и оценка загрязнения ими ближней зоны Чернобыльской аварии являются основой для долговременного прогнозирования изменения радиологической обстановки в зоне отчуждения ЧАЭС и для рассмотрения возможности ее реабилитации.

По результатам работы в ближней зоне аварии на ЧАЭС для широкого круга специалистов, интересующихся проблемами последствий Чернобыльской катастрофы, был создан компакт-диск "Загрязнение 30-километровой зоны". Диск содержит (русская и английская версии): комплект карт радиоактивного загрязнения территории и свойств почвы (растровые изображения (*.jpg) и тематические слои в MapInfo (*.wor)); базы данных экспериментальной информации радиоактивного загрязнения территории "Проба" и ядерно-физических характеристик "Горячие частицы" (*.mdb); основные публикации УкрНИИСХР (*.pdf), запасы радионуклидов в 30-километровой зоне ЧАЭС и т.д.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Loshchilov N.A., Kashparov V.A., Yudin Ye.B. et al.* Experimental assessment of radioactive fallout from the Chernobyl accident // *Sicurezza e Protezione*. - 1991. - Vol. 25-26. - P. 46 - 49.
2. *Kuriny V.D., Ivanov Yu.A., Kashparov V.A. et al.* Particle Associated Chernobyl Fall-Out in the Local and Intermediate Zones // *Annals of Nuclear Energy*. - 1993. - Vol. 20/6. - P. 415 - 420.
3. *Kashparov V.A.* Hot Particles at Chernobyl // *Environmental Science and Pollution Research*. - 2003. - Vol. 10 Special (1). - P. 21 - 30.
4. *Лоцилов Н.А., Кашпаров В.А., Процак В.П., Юдин Е.Б.* Фракционирование радионуклидов в Чернобыльских топливных горячих частицах // *Радиохимия*. - 1992, № 5. - С. 125 - 135.
5. *Кашпаров В.А.* Формування і динаміка радіоактивного забруднення навколишнього середовища під час аварії на Чорнобильській АЕС та в післяаварійний період // *Чорнобиль. Зона відчуження*, - К.: Наук. думка. - 2001. - С. 11 - 46.
6. *Kashparov V.A., Lundin S.M., Khomutinin Yu.V. et al.* Soil contamination with ⁹⁰Sr in the near zone of the Chernobyl accident // *Journal of Environment Radioactivity*. - 2001. - Vol. 56/3. - P. 285 - 298.
7. *Pollanen R., Valkama I., Toivonen H.* Transport of radioactive particles from the Chernobyl accident. // *Atmospheric Environment*. - 1997. - Vol. 31/21. - P. 3575 - 3590.
8. *Кашпаров В.А., Иванов Ю.А., Хомутинин Ю.В., Пазухин Э.М.* Оценка эффективной температуры и времени отжига топливных частиц, выброшенных из Чернобыльского реактора во время аварии // *Радиохимия*. - 1996. - № 38/1. - С. 91 - 95.
9. *Кашпаров В.А., Иванов Ю.А., Процак В.П. и др.* Оценка максимальной температуры и времени отжига топливных частиц во время аварии на ЧАЭС // *Там же*. - 1997. - № 39/1. - С. 66 - 70.
10. *Kashparov V.A., Oughton D.H., Zvarich S.I. et al.* Kinetics of fuel particle weathering and ⁹⁰Sr mobility in the Chernobyl 30-km exclusion zone // *Health Physics*. - 1999. - Vol. 76/3. - P. 251 - 259.
11. *Kashparov V.A., Ahamdach N., Zvarich S.I. et al.* Kinetics of dissolution of Chernobyl fuel particles in soil in natural conditions // *Journal of Environmental Radioactivity*. - 2004. - Vol. 72/3. - P. 335 - 353.
12. *Kashparov V.A., Ivanov Yu.A., Zvarich S.I. et al.* Formation of Hot Particles During the Chernobyl Nuclear Power Plant Accident // *Nuclear Technology*. - 1996. - Vol. 114/1. - P. 246 - 253.

13. *Kashparov V.A., Protsak V.P., Ahamdach N. et al.* Dissolution kinetics of particles of irradiated Chernobyl nuclear fuel: influence of pH and oxidation state on the release of radionuclides in contaminated soil of Chernobyl // *Journal of Nuclear Materials.* - 2000. - Vol. 279. - P. 225 - 233.
14. *Kashparov V.A., Yoschenko V.I., Levchuk S.E. et al.* Application of the method of repeated mixing to non-uniformly contaminated bulky samples // *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry.* - 2000. - Vol. 246/1. - P. 165 - 172.
15. *Хомутинин Ю.В., Кашипаров В.А., Жебровская Е.И.* Оптимизация отбора и измерений проб при радиоэкологическом мониторинге. – К.: ВПОЛ, 2001. - 160 с.
16. *Kashparov V.A., Lundin S.M., Zvarich S.I. et al.* Territory contamination with the radionuclides representing the fuel component of Chernobyl fallout // *The Science of The Total Environment.* - 2003. - Vol. 317, Issues 1-3. - P. 105 - 119.
17. *Кашипаров В.А., Зварич С.И., Процак В.П., Журба М.А.* Кинетика растворения чернобыльских топливных частиц. II. Растворение топливных частиц в почве в естественных условиях // *Радиохимия.* - 2000. - № 42/6. - С. 542 - 549.
18. *Кашипаров В.О., Хомутинин Ю.В., Глуховский О.С. та ін.* Оцінка небезпечності вторинного вітрового переносу радіоактивних аерозолів після часткового осушення водойми-охолоджувача ЧАЕС // *Бюлетень екологічного стану зони відчуження та безумовного (об'язкового) відселення.* - Травень 2003. - № 1(21). - С. 67 - 74.
19. *Dewiere L., Bugai D., Grenier C. et al.* ⁹⁰Sr migration to the geo-sphere from a waste burial in the Chernobyl exclusion zone // *Journal of Environmental Radioactivity.* - 2004. - Vol. 74, Issue 1-3. - P. 139 - 150.
20. *Kashparov V.A., Protsak V.P., Ivanov Yu.A., Nicholson K.W.* Resuspension of Radionuclides and Contamination of Village Areas Around Chernobyl // *J. Aerosol Science.* - 1994. - Vol. 25/5. - P. 755 - 761.
21. *Kashparov V.A., Lundin S.M., Kadygrib A.M. et al.* Forest fires in the territory contaminated as a result of the Chernobyl accident: radioactive aerosol resuspension and exposure of fire-fighters // *Journal of Environmental Radioactivity.* - 2000. - Vol. 51. - P. 281 - 298.
22. *Кашипаров В.А., Йощенко В.И., Зварич С.И. и др.* Оценка класса растворимости чернобыльских радиоактивных аэрозолей при ингаляции // *Радиохимия.* - 1997. - № 39/1. - С. 77 - 79.
23. *Кашипаров В.А., Лазарев Н.М., Йощенко В.И.* Поведение топливных частиц в организме коров при их пероральном поступлении // *Радиационная биология. Радиоэкология.* - 1997. - № 37/5. - С. 804 - 811.
24. *Kashparov V.A., Protsak V.P., Yoschenko V.I., Watterson J.D.* Inhalation of Radionuclides During Agricultural Work in Areas Contaminated as a Result of the Chernobyl Reactor Accident // *J. Aerosol Science.* - 1994. - Vol. 25/5. - P. 761 - 767.
25. *Кашипаров В.А.* Вторичный ветровой перенос радионуклидов и их ингаляционное поступление в организм человека при проведении сельскохозяйственных работ // *Гигиена населенных мест.* - 2000. - Vol. 36/1. - P. 124 - 135.

Поступила в редакцию 25.10.04,
после доработки – 12.01.05.

10 РАДІОАКТИВНЕ ЗАБРУДНЕННЯ ЗОНИ ВІДЧУЖЕННЯ ЧАЕС ПАЛИВНИМИ ЧАСТИНКАМИ ТА ЇХ РАДІОЛОГІЧНА ЗНАЧИМІСТЬ

В. О. Кашпаров

Дано оцінку радіоекологічної значимості паливної компоненти чорнобильських радіоактивних випадінь. Вивчено фізико-хімічні властивості чорнобильських "гарячих" частинок. Уточнено загальний вміст радіонуклідів у верхньому 30-сантиметровому шарі ґрунту 30-кілометрової зони ЧАЕС станом на 1 січня 2000 р. за межами проммайданчика: $^{90}\text{Sr} - 7,7 \cdot 10^{14}$ Бк; $^{137}\text{Cs} - 2,8 \cdot 10^{15}$ Бк; $^{154}\text{Eu} - 1,4 \cdot 10^{13}$ Бк; $^{238}\text{Pu} - 7,2 \cdot 10^{12}$ Бк; $^{239+240}\text{Pu} - 1,5 \cdot 10^{13}$ Бк; $^{241}\text{Am} - 1,8 \cdot 10^{13}$ Бк, що відповідає 0,4 – 0,5 % від напрацювання цих радіонуклідів в реакторі та в три рази нижче від загальноприйнятих до цього величин. Оцінено величину відносного викиду радіонуклідів у складі паливних частинок під час аварії за межі проммайданчика ЧАЕС, яка склала $1,5 \pm 0,5$ % від напрацювання радіонуклідів у реакторі, що в два рази нижче від попередніх оцінок. Вивчено кінетику й отримано залежності швидкості розчинення паливних частинок як у природних умовах, так і в модельних середовищах. Розглянуто ресуспензію радіонуклідів у природних умовах при техногенному впливі на ґрунт і лісових пожежах, а також інгаляційну небезпеку надходження паливних частинок в організм людини.

RADIOACTIVE CONTAMINATION OF THE ChNPP EXCLUSION ZONE WITH FUEL PARTICLES AND THEIR RADIOLOGICAL SIGNIFICANCE

V. A. Kashparov

The radioecological significance of fuel components in the radioactive fallout at Chernobyl has been evaluated. The physical and chemical properties of Chernobyl hot particles including the fuel particles (FP) have been investigated. On January 1, 2000, the total content of radionuclides in the upper 30-cm soil layer of the 30-km zone was made up of: $^{90}\text{Sr} - 7,7 \cdot 10^{14}$ Bq; $^{137}\text{Cs} - 2,8 \cdot 10^{15}$ Bq; $^{154}\text{Eu} - 1,4 \cdot 10^{13}$ Bq; $^{238}\text{Pu} - 7,2 \cdot 10^{12}$ Bq; $^{239+240}\text{Pu} - 1,5 \cdot 10^{13}$ Bq; $^{241}\text{Am} - 1,8 \cdot 10^{13}$ Bq. The total inventory of the fuel component radionuclides in the surface soil layer of the this zone, within Ukraine, corresponds to 0,4 – 0,5 % of their amount in the ChNPP Unit 4 at the moment of the accident, which is 3 times less than earlier assessments. Outside the ChNPP industrial site, it is estimated that the release of radionuclides in fuel particles during the accident was $1,5 \pm 0,5$ % of their inventory in the reactor, which is two times less than previous assessments. The kinetics of fuel particle dissolution, in both natural and model conditions, have been studied to obtain the dissolution rates. Problems with the secondary transfer of radionuclides under natural conditions, due to technogenic action in soils and forest fires, as well as the significance of FP inhalation into the human body have also been considered.

Кашпаров Валерий Александрович

Доктор биологических наук, к.ф.-м.н., ст.н.с., заслуженный деятель науки и техники Украины

Директор, заведующий физико-химическим отделом

Украинский научно-исследовательский институт сельскохозяйственной радиологии (УкрНИИСХР)

08162 Украина,

Киевская обл., Киево-Святошинский р-н,

пгт. Чабаны ул. Машиностроителей 7

тел./факс.: (38044) 266-75-31, 266-45-02

e-mail: vak@uiar.kiev.ua