

Академия наук Украины
Межотраслевой научно-технический центр «Укрытие»
Институт кибернетики имени В. М. Глушкова

Препринт 92-29



С. А. Богатов, А. А. Боровой, А. С. Евстратенко,
А. Н. Херувимов

**ДИНАМИКА ПОВЕДЕНИЯ ТОПЛИВНЫХ МАСС
В ОБЪЕКТЕ «УКРЫТИЕ»**

Киев 1992

УДК 621.039.5

Динамика поведения топливных масс в объекте «Укрытие» / Богатов С. А., Боровой А. А., Евстратенко А. С., Херувимов А. Н. — Киев, 1992. — 20 с. — (Препр. / АН Украины. Ин-т кибернетики им. В. М. Глушкова; 92-29).

Приводятся результаты исследований динамики разрушения основных форм топливосодержащих масс, находящихся внутри аварийного 4-го энергоблока ЧАЭС. Освещаются экспериментальные данные, полученные Комплексной экспедицией ИАЭ им. И. В. Курчатова и МНТЦ «Укрытие» при АН Украины.

Ил. 2. Библиогр.: с. 18—19 (10 назв).

Рецензент канд. физ.-мат. наук Б. И. Горбачев

Утверждено к печати научным советом АН Украины по проблеме «Кибернетика»

Топливосодержащие массы (ТСМ), находящиеся в настоящее время в «Укрытии», можно условно разделить на следующие типы:

- фрагменты активной зоны;
- мелкодиспергированное топливо (топливные частицы);
- лаваобразные ТСМ (ЛТСМ).

Фрагменты активной зоны, включающие отдельные топливные таблетки, ТВЭЛы, части (или целые) ТВС, активный графит, части технологических каналов (ТК) и т. п., находятся преимущественно в верхних помещениях, куда они попали в результате взрыва. Мелкодиспергированное топливо в той или иной степени присутствует во всех помещениях «Укрытия», будучи основным компонентом поверхностного загрязнения, и определяет аэрозольную активность. ЛТСМ являются продуктами высокотемпературного взаимодействия аварийного топлива с конструкционными материалами и, частично, материалами засыпки. ЛТСМ представляют собой стекловидные или пемзообразные расплавы, содержащие в силикатной матрице мелкодиспергированное топливо и другие микровключения.

Изучение устойчивости ТСМ является важным аспектом исследования радиационной безопасности объекта и оценки его как источника вторичного загрязнения окружающей среды. Исследования в данном направлении интенсивно проводились Комплексной экспедицией ИАЭ им. И. В. Курчатова и будут продолжены в дальнейшем в МНТЦ при АН Украины.

Приведенные ниже материалы являются обзором работ, приведенных КЭ при ИАЭ и ОЯРБ МНТЦ «Укрытие».

1. Устойчивость фрагментов активной зоны

Распространение радионуклидов вследствие саморазрушения фрагментов активной зоны — достаточно медленный процесс, поскольку материалы, из которых они состоят, были рассчитаны на эксплуатацию в экстремальных условиях работающего реактора. По-видимому, все мыслимые разрушения уже произошли в результате аварии и вряд ли подобные условия реализуются в дальнейшем. Возможно некоторое взаимодействие атмосферных воздуха и влаги с графитом, рассчитанным на эксплуатацию в азотной среде, и оголенными топливными таблетками, находящимися в ТВЭЛах в Ar — He смеси.

В порошкообразном состоянии окисление UO_2 наблюдается даже при комнатной температуре. Очевидно, оно интенсивнее, чем больше поверхность порошка, соприкасающегося с воздухом. Однако скорость окисления в таких условиях крайне мала: окисление при комнатной температуре достигает глубины 5,0 нм; далее окисел начинает играть роль защитного слоя. Количество абсорбированного кислорода составляет $0,8 \text{ см}^3$ на 1 м^2 поверхности [1]. Порошок с размером частиц 1 мкм окисляется за месяц до состава $UO_{2.02}$ [2]. Двуокись урана практически инертна по отношению к дегазированной воде при нейтральном или высоком значении pH [1].

2. Разрушение топливных частиц

Предполагается, что основными механизмами разрушения частиц могут быть их измельчение и растворение при взаимодействии с водой. Потенциальная опасность этого процесса заключается в увеличении респираторной фракции частиц (когда частицы в десятки микрон распадаются на микронные или еще меньшие частицы) и повышении проникающей способности содержащихся в частицах радионуклидов.

2.1. *Измельчение частиц.* Анализы дисперсного состава поверхностного загрязнения внутренних помещений «Укрытия», где отсутствует прямое механическое или химическое воздействие, показали неизменность параметров распределения размеров частиц. Однако, учитывая сильно развитую поверхность крупных «горячих частиц» (рис. 1), а также значительное содержание растворимых форм урана в матрице (см. ниже),



Рис. 1. Фрагмент поверхности крупной «горячей частицы».

можно предполагать, что они подвержены измельчению при механических воздействиях или прямом контакте с водой.

Дисперсный состав радиоактивных аэрозолей, определяющих воздушное загрязнение на «Укрытии», за период 1988—1991 гг. не претерпел значимых изменений.

2.2. *Растворение топливных частиц.* Согласно принятой в настоящее время модели [3], скорость потери массы частицы при растворении пропорциональна площади ее поверхности:

$$\frac{dm}{dt} = -k \cdot s = -k \cdot a_s \cdot D^2 = -\frac{k a_s m^{2/3}}{(\rho a_v)^{2/3}},$$

где m , s и D — соответственно масса, площадь поверхности и диаметр частицы во время t ; ρ — плотность частицы; k — константа растворения; $a_s = sD^2$, $a_v = m/\rho D^3$ — соответственно факторы формы поверхности и объема. Относительная скорость растворения

$$f = -\frac{dm/dt}{m} = \frac{k a_s}{\rho a_v D}.$$

Таким образом, скорость растворения обратно пропорциональна диаметру частиц и, при неизменности формы, будет возрастать со временем. Отсюда очевидно, что при условии одинакового состава частиц в ЛТСМ и поверхностном загрязнении последнее более опасно.

2.2.1. *Содержание растворимых форм урана в частицах поверхностного загрязнения* [4]. Попытка расшифровки химической структуры матрицы топливосодержащих частиц была предпринята в ИАЭ им. И. В. Курчатова с помощью метода рентгеновской фотоэлектронной спектроскопии (РФЭС) [5]. При исследовании образцов изучали интенсивность, структуру и положение линий спектра фотоэлектронов в диапазоне энергий связи 0—1000 эВ. Этот метод при наличии соответствующих калибровок позволяет получить информацию о количественном относительном элементном составе образца, степени окисления ионов. Параметры тонкой структуры спектров позволяют судить о характере химических связей. Подробное описание эксперимента мы предполагаем вскоре опубликовать. Пока же приведем лишь результаты исследования образцов поверхностного загрязнения из верхних помещений «Укрытия»:

1. Относительный (относительно урана) стехиометрический состав образца $U_1N_9C_{146}O_{41}$;

2. Содержание ионов урана всех формальных степеней окисления составляет 3.5 вес. %; углерод находится примерно в равных количествах в виде иона $(CO_3)^{2-}$ и карбида;

3. Относительное содержание ионов урана различной формальной степени окисления приведено (в процентах) в табл. 1.

Таблица 1

U(VI) (ион UO_2^{2+})	U(III)	U(IV) ($\sim UO_2$)	U(O) или UC_n
30.8	21.8	42.3	5.1

Это предварительные результаты, окончательная расшифровка химических соединений в образце не закончена. Пока же можно утверждать, что $\sim 40\%$ урана в образцах имеют первоначальную структуру ($\sim UO_2$), $\sim 30\%$ урана имеют формальную степень окисления VI, что характерно для хорошо растворимых соединений урана (UO_3 , иона UO_2^{2+} , ...). Около 30 % остальных могут относиться к частично восстановленному или металлическому урану и/или карбидам или нитридам урана.

2.2.2. *Определение растворимости топливных частиц в имитирующих средах.* До сих пор нет единого понимания понятия «растворимость» частиц. В задачах радиационной защиты большинство исследователей понимают под ним количество радионуклида, прошедшего через полупроницаемую мембрану, выраженное в процентах от исходного количества на фильтре. Наряду с истинными растворами повышенной проницаемостью в биологических средах могут обладать и субмикронные частицы. В работе [6] утверждается, что вещество в форме частиц с характерным размером частиц ≈ 0.1 мкм можно считать растворимым. С точки зрения прямого перехода в кровь через межклеточные промежутки при ингаляционном или пероральном поступлении в организм человека «растворимыми» можно считать частицы размерами ≤ 4 нм.

Обычное ядерное топливо реактора РБМК, состоящее из спрессованной UO_2 (размер зерна 5—10 мкм), не подвергнувшееся аварийным воздействиям, является плохо растворимым соединением. Однако ряд экспериментальных данных — фракционирование радионуклидов [7], радиальная неоднородность распределения радионуклидов по объему частиц с обогащением к поверхности [8], изменение стехиометрического состава [9] свидетельствуют о том, что начальное распределение радионуклидов в топливе сильно нарушено. Для выяснения форм нахождения радионуклидов необходима, вообще говоря, полная расшифровка как их соединений, так и соединений содержащей их матрицы.

Некоторую информацию можно извлечь из экспериментов по прямому определению перехода радионуклидов в растворимые формы при взаимодействии с имитирующими биологические среды агентами.

Образец поверхностного загрязнения из верхних помещений объекта обрабатывали 0.8 % раствором хлорида натрия при комнатной температуре. Образец помещали в достаточно большое количество выщелачивающего агента и встряхивали в течение 2—3 часов. Полученный раствор выдерживали ночь, центрифугировали и отделяли от осадка. Параметры центрифугирования выбирались так, чтобы удалить из раствора все топливные частицы, размер которых превышал 0.2—0.5 мкм. Операцию выщелачивания повторяли, обе вытяжки объединяли и использовали для дальнейшего анализа. Результаты определения перехода в раствор некоторых радионуклидов (примерно за 3 суток) приведены в табл. 2.

Таблица 2

Переход (%) в 0.8 % раствор хлорида натрия некоторых радионуклидов из образца поверхностного загрязнения

^{144}Ce	^{125}Sb	^{106}Ru	^{137}Cs	^{134}Cs	^{90}Sr	^{241}Am	$\sum \text{Pu}$	U
14 ± 5	20 ± 3	5 ± 2	48 ± 3	41 ± 4	9 ± 3	3 ± 1	3 ± 1	19 ± 5

Поскольку кроме определения радионуклидного состава раствора в нем также определялось содержание урана, можно сравнить удельную активность раствора для урана и удельную активность образца неразрушенного ТВЭЛа с глубиной выгорания, близкой к средней по зоне.

Таблица 3

Удельная активность имитирующего раствора для урана (середина матра 1989 г.)

Образец	Бк/г U в растворе					
	^{144}Ce	^{106}Ru	^{137}Cs	^{90}Sr	$\sum \text{Pu}$	^{241}Am
«Мазок»	$6.7+8^*$	6.1 ± 8	2.8 ± 9	4.4 ± 8	5.0 ± 6	8.6 ± 5
«Чистое топливо»	$7.7+8$	2.3 ± 8	1.3 ± 9	4.8 ± 8	7.0 ± 6	1.2 ± 6

Точность результатов, приведенных в табл. 3, оценивается в ± 30 —40 %. Поэтому можно утверждать, что полученный результат не противоречит гипотезе о механизме растворения урановой матрицы в составе частиц с содержащимися в ней радионуклидами. Наблюдается несколько повышенная растворимость радионуклидов цезия и рутения и пониженная — трансуранов.

Аналогичные результаты были получены при обработке образцов поверхностного загрязнения раствором бикарбоната натрия ($\text{pH}=7.8$). Образец представлял собой мазки на бумажном фильтре «синяя лента», взятые с закопченных стен на отметке ± 43 объекта. Имитирующий раствор, температура которого поддерживалась $37.0 \pm 0.5^\circ\text{C}$, по каплям поступал на бумажный фильтр с образцом. За один час расход выщелачивающего раствора составлял около 100 мл. Фильтрат собирали порциями через каждый час. Три порции фильтрата и остаток образца на фильтре анализировали на радионуклидный состав и по отношению их активности определяли процент перехода в раствор. Микроскопический анализ бумажного фильтра показал, что он способен уверенно задерживать частицы размерами ≤ 5 мкм. Более мелкие частицы было трудно идентифицировать с помощью применявшейся оптической техники. Следует отметить, что значения активности фильтратов соотносились между собой примерно как 10:5:1, т. е. процесс растворения замедлялся.

* Здесь и далее запись типа $6.7+8$ означает $6.7 \cdot 10^8$ и т. д.

Процент перехода в раствор некоторых радионуклидов приведен в табл. 4.

Таблица 4

Переход (%) радионуклидов в раствор бикарбоната натрия (рН=7.8.) при температуре 37°C за три часа

^{144}Ce	^{125}Sb	^{106}Ru	^{137}Cs	^{134}Cs	^{154}Eu	^{90}Sr
28 ± 8	69 ± 30	15 ± 7	58 ± 2	57 ± 3	23 ± 10	15 ± 9

Вышеизложенное позволяет заключить, что 20—30 % активности присутствуют в матрице частиц в растворимой форме, что связано, по-видимому, с окислением урана до шестивалентного состояния. Растворимость Cs примерно в два раза больше, что можно объяснить наличием абсорбированных форм или концентрацией этого элемента у поверхности частиц.

2.2.3. Растворимые формы радионуклидов в воде на объекте «Укрытие». В результате выпадения атмосферных осадков, а также применения воды в процессе бурения разведочных скважин в настоящее время в нижних помещениях объекта «Укрытие» находятся значительные объемы воды, общее количество которой оценивается примерно в 1000 м³. Поскольку на своем пути вода неизбежно контактирует со всеми формами ТСМ, определение в ней растворимых форм радионуклидов является лучшей проверкой предлагаемых выше механизмов.

В табл. 5 приведены результаты определения растворимых форм радионуклидов в воде нижних помещений объекта «Укрытие» с нормировкой на растворенный уран. Под «растворимой» формой радионуклида понимается его активность в фильтрате, полученном при пропускании исходного раствора через ядерный фильтр, размер которого составляет 0.1 мкм.

Точность единичного анализа составляет ± 100 %, кроме изотопов цезия и ^{90}Sr , активность которых определена с точностью лучше ± 30 %. Как видно из табл. 5, в пределах ошибок приводимые результаты не противоречат гипотезе о прямом растворении части урановой матрицы. Любопытно отметить, что ни в одной пробе фильтрата не удалось обнаружить радионуклиды плутония, хотя в лабораторных опы-

Таблица 5

Содержание растворимых форм радионуклидов в воде нижних помещений «Укрытия» (на 20.04.1991 г.)

Место пробо-отбора	Бк/г UO ₂					
	^{144}Ce	^{137}Cs	^{134}Cs	^{106}Ru	^{154}Eu	^{90}Sr
009/1	1.0 ± 9	1.3 ± 11	1.3 ± 10	3.1 ± 8	5.0 ± 7	5.3 ± 8
012/8	1.3 ± 8	1.6 ± 10	1.6 ± 9	2.3 ± 8	—	3.3 ± 8
061/2	2.6 ± 8	1.4 ± 10	1.5 ± 9	—	2.1 ± 7	3.9 ± 8
012/7	2.4 ± 6	8.6 ± 9	9.0 ± 8	5.5 ± 7	4.2 ± 6	1.1 ± 8
014/2	—	6.4 ± 10	6.4 ± 9	1.2 ± 9	—	6.4 ± 9
012/6	8.3 ± 6	3.1 ± 9	3.3 ± 8	3.0 ± 7	7.9 ± 5	2.0 ± 7
208/12	2.1 ± 8	5.9 ± 10	5.5 ± 9	7.8 ± 8	—	1.2 ± 9
208/10	—	5.3 ± 10	4.8 ± 9	—	4.5 ± 7	2.4 ± 8
208	—	2.8 ± 10	2.4 ± 9	—	2.0 ± 7	4.9 ± 8
012/3	3.0 ± 9	2.1 ± 11	2.3 ± 10	2.4 ± 9	—	3.4 ± 9
Среднее по пробам	6.6 ± 4.1 10^8	4.1 ± 1.3 10^{10}	5.9 ± 2.2 10^9	7.2 ± 3.2 10^8	2.3 ± 0.8 10^7	1.3 ± 0.6 10^9
«Среднее» топливо	2.8 ± 8	1.3 ± 9	1.6 ± 8	2.3 ± 8	—	1.1 ± 9

тах по растворению поверхностного загрязнения они идентифицировались. Последнее связано, наиболее вероятно, с тем, что в отличие от лабораторных условий, где принимались специальные меры по предотвращению сорбции радионуклидов, в естественных условиях плутоний после выхода из матрицы немедленно абсорбируется на окружающих материалах. Опыт показывает, что для сорбции первоначально растворенного плутония достаточна кислотность среды $pH \geq 3$.

В отличие от лабораторных опытов, где изучались практически чистые образцы «горячих частиц», растворимых в воде форм цезия примерно в 14 раз больше, чем ожидалось бы при растворении топлива. Это говорит о том, что в среднем около 85 % цезия в поверхностном загрязнении блока могут находиться вне топливной матрицы.

3. Динамика поведения ЛТСМ

Активные исследования динамики ЛТСМ, начавшиеся в 1990 г., показали наличие по крайней мере 3 процессов их изменения:

- разрушение поверхности лавообразных материалов и появление на ней топливной пыли;
- образование на поверхности лав новых соединений урана и выщелачивание радионуклидов при взаимодействии влаги с поверхностью ЛТСМ;
- образование микротрещин из-за внутренних напряжений, вызванных неоднородностью ЛТСМ.

Если предположить (по аналогии с обычным стеклом), что радиационное разрушение ЛТСМ начнется с дозы, соответствующей 10^{18} а частиц/см³, то такое (даже чуть меньше) количество α -распадов с учетом реальной композиции α -излучателей (242-, 244-См, 238-, 239-, 240-Ри, 241-, Ам) наберется лишь через миллионы лет после аварии, т. е. после практически полного распада нуклидов плутония. Однако может оказаться, что сравнение ЛТСМ со стеклами, полученными по стандартным технологиям, не правомочно.

3.1. Эрозия поверхности ЛТСМ и характеристики образующихся частиц [10]. Для изучения продуктов разрушения поверхности ЛТСМ в естественных условиях с одного из «языков» лавы, находящегося в двух метрах от юго-западного входа в ПРК (помещение 210/7), были взяты спиртовой мазок и мазок на беззольный фильтр. Параллельно проводили отбор проб воздуха с помощью воздуходувки

ППА-3, отбор фрагментов «языка» и мазков с внутренней поверхности входной двери. Результаты анализа образцов на гамма-спектрометре приведены в табл. 6.

Таблица 6
Результаты γ -спектрометрического анализа образцов из помещения 210/7 (20-23.03.90)

Образец	Нуклид, Бк				
	¹⁴⁴ Ce	¹³⁷ Cs	¹³⁴ Cs	¹⁵⁴ Eu	¹⁰⁶ Ru
Фрагмент «языка»	9.3+4	5.9+4	9.4+3	3.0+3	<4.0+3
Мазок на беззольный фильтр, 15 см ²	1.8+4	1.7+4	2.6+3	5.0+2	3.2+3
Мазок спиртовой, 50 см ²	3.1+5	2.6+5	4.5+4	—	1.7+4
Мазок с двери, 80 см ²	1.0+5	1.7+5	2.5+4	2.5+3	7.3+4
2 респиратора, 10 л	390	1000	170	—	—
Воздушный фильтр с языка, 1000 л	182	307	38.8	—	—
Воздушный фильтр 10м от входа, 1000 л	19.6	96	12.6	—	—

Дисперсный анализ частиц на спиртовом мазке показал присутствие частиц, размеры которых менялись от единиц до сотен микрон, а также плоских «чешуек» размерами в доли миллиметра, нуклидный состав которых идентичен макрообразцу «языка».

Соотношения идентифицированных радионуклидов показывают обеднение «языка» цезием ($\cong 3$ раза) и рутением (более чем в 20 раз); и наоборот, воздушные фильтры показывают более чем полуторное обогащение изотопами цезия относительно среднетопливного состава.

Предыдущие опыты с образцами из помещения 210/7 показали, что ТСМ в месте пробоотбора содержит около 10 % реакторного горючего. Отсюда в предположении, что большая часть топливного загрязнения поверхности «языка» связана с продуктами эрозии, пересчетом (активность ^{144}Ce) \rightarrow (количество топлива) \rightarrow (масса ТСМ) можно оценить, что легко снимаемая часть «языка» составила $\cong 0.2 \text{ мг/см}^2$ почти за 4 года с момента образования ($\cong 5 \cdot 10^{-5} \text{ г/см}^2 \times \text{год}$). Данная величина представляется довольно незначительной, однако по меньшей мере преждевременно предполагать в дальнейшем линейную скорость разрушения. ЛТСМ на объекте «Укрытие» — силикатные образования, содержащие диспергированное топливо и фрагменты конструктивных материалов, — представляют собой объекты с неизученными свойствами, и ускорение разрушения ЛТСМ вполне возможно.

Для определения характеристик продуктов разрушения ЛТСМ в лабораторных условиях проводили следующий эксперимент. Были отобраны несколько образцов различных ТСМ:

- ПРК (красная керамика) — № 1;
- ПРК (черная керамика) — № 2;
- бассейн-барбатор (серо-розовая керамика) — № 3;
- помещение 304 (черная пористая керамика) — № 4.

Каждый образец приклеивали силикатным клеем на специальную подставку и помещали в цилиндрический контейнер из нержавеющей стали, торцевые части которого закрывали сменными аэрозольными фильтрами. На одном из торцов располагался переходник, позволяющий подсоединять контейнер к воздуходувке. Фильтр на переднем торце контейнера служил для очистки входящего воздуха от аэрозолей, не связанных с эрозией исследуемого образца. «Сдуваемые» частицы осаждались на второй фильтр.

Микроскопический анализ показал, что среди частиц, «сдуваемых» с образцов, можно выделить 3 типа:

- частицы темного цвета с неровными краями;
- «капли» с металлическим блеском;
- фрагменты стекла и зерна кварца.

Первая группа представлена более мелкими частицами (1—15 мкм; среднее значение 3.7 мкм) по сравнению с второй и третьей (10—200 мкм; среднее значение $\cong 60$ мкм), многие мелкие частицы находятся на поверхности «стеклянных». Попытки определить относительную активность частиц методами автордиографии показали, что более 90 % активности содержится в отдельных частицах первой группы. Большинство частиц были практически «чистыми» (активность менее 0.1 Бк), что говорит об очень неоднородном распределении активности в ТСМ (при равномерном распределении активности частица с характерным размером 60 мкм имела бы активность 50 Бк).

Зная активность фильтров, удельную активность образцов и оценив площадь их поверхности, можно оценить скорость «ветровой» эрозии, учитывая, что после последнего полного «сдува» активности образцы находились в контейнерах 1 месяц. Результаты, полученные по активности ^{144}Ce и ^{137}Cs , сведены в табл. 7.

Константа разрушения для стронция получается такой же, как для цезия. Точность приводимых констант ± 100 %.

Максимальная скорость эрозии ожидается для образца из бассейна-барбатора, имеющего, по-видимому, наиболее хрупкую структуру поверхности. Заметно некоторое превышение константы эрозии для цезия, что связано, вероятно, с его частичным присутствием вне топливной матрицы в составе силикатных соединений.

Результаты табл. 7 примерно на два порядка ниже, чем величина, полученная в ПРК методом взятия «сухого мазка» с поверхности ТСМ. Однозначная интерпретация этого обстоятельства затруднена. Возможны следующие гипотезы:

- большая часть загрязнения поверхности ТСМ связана с посторонней пылью;
- «сдуваемая» часть активности существенно меньше механически снимаемой;
- скорость эрозии в лабораторных условиях ниже, чем в естественных.

Ввиду отсутствия ясности в данном вопросе, а также того, что в вопросах безопасности общепринят пессимисти-

Таблица 7

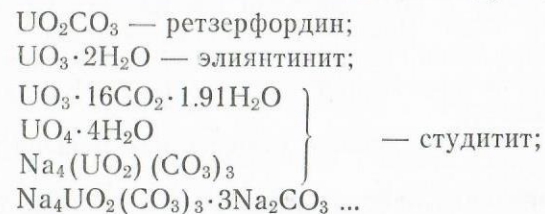
Скорость ветровой эрозии образцов ТСМ в лабораторных условиях,
г/(см²·год)

Образец	1	2	3	4
v(137-Cs, 90-Sr)	2.37—7	7.1—8	6.9—7	1.1—7
v(144-Ce)	1.3—7	3.8—8	6.3—7	1.1—7

ческий подход, было решено использовать оценку скорости эрозии $5 \cdot 10^{-5}$ г/(см²·год). Полученная по этой константе оценка топлива, перешедшего в «свободное» состояние вследствие эрозии ЛТСМ за 5 лет, составляет несколько сот грамм. Это количество пренебрежимо мало по сравнению с уже имеющимся в «Укрытии» и на промплощадке пылевым загрязнением, масса которого по топливу может составлять несколько тонн.

3.2. *Новые соединения на поверхности ЛТСМ.* В начале 1989 г. при проведении исследований в ПРК были обнаружены и зафиксированы с помощью фото- и видеосъемки вытекшие из паросбросного клапана и застывшие потоки лавы с блестящей черной поверхностью. В сентябре 1990 г. было обнаружено, что эта поверхность утратила блеск и на ней возникли ярко-желтые пятна и разводы.

Анализ новообразований проводили в ИАЭ им. И. В. Курчатова в НПО «Радиовый институт им. В. Г. Хлопина». Микросондовый анализ подтвердил наличие лишь одного тяжелого металла — урана. Рентгенофазовый и микроструктурный анализы показали наличие следующих соединений:



Для сравнения радионуклидных составов ТСМ и новообразования были отобраны образец ЛТСМ (№ 1) и два ви-

да новообразований: желто-рыжие кристаллы с инородными вкраплениями темных крупинки (№ 2) и лимонно-желтые кристаллы без заметных инородных включений (№ 3).

Содержание урана в пересчете на UO_2 в пробе № 1 составило 7.0 %, № 2 — 9.3 %, № 3 — 20.2 %. Результаты определения радионуклидного состава новообразований сведены в табл. 8. Пробы № 2 и № 3 характеризуются аномально низким содержанием Се, существенно ниже в них и содержание трансураниевых элементов. Так, в пробе № 3 плутония примерно в 300 раз меньше, чем в среднем в исследованных ЛТСМ. Характер растворения, существенное обогащение проб № 2 и № 3 цезием подтверждает наличие в новообразованиях двойных карбонатных соединений урана, где в состав комплексов входят элементы первой группы.

3.3. *Механическое разрушение ЛТСМ.* Данный вопрос сегодня наименее изучен. Первые попытки взять пробы с типичной ЛТСМ («слоновой нога») показали ее достаточную прочность — для отделения образца с поверхности ЛТСМ пришлось использовать стрелковое оружие. Повторное взятие образцов с края ТСМ в 1990 г. уже не потребовало значительных усилий.

Неожиданный результат был получен при попытке снять поверхностное загрязнение с поверхности все той же «слоновой ноги». Для «дезактивации» (с точки зрения снятия пыли) поверхности ЛТСМ был изготовлен марлево-поролоновый тампон размером $50 \times 100 \times 200$, который после пропитки связывающим составом накладывали на дезактивируемую поверхность. Для плотного контакта тампона и поверхности ЛТСМ поверх тампона накладывали груз (свинцовый кирпич тех же размеров). Опыт был проделан; однако при снятии тампона после полного засыхания связующего раствора легко отделился верхний слой ЛТСМ толщиной порядка 1—2 см. На рис. 2 приведена фотография слоя ТСМ, приклеившегося к тампону. Как видно из фотографии, данная ЛТСМ отнюдь не является монолитом, как может показаться при осмотре ее поверхности, а имеет внутри сильно пористую структуру.

Последнее обстоятельство настораживает, поскольку при нарушении целостности поверхностных слоев может резко возрасти скорость процессов, зависящих от площади контакта ТСМ и взаимодействующей среды — растворения, эро-

Радионуклидный состав новообразований
(январь 1991 г)

Образец	U, мг вс	Бк/г UO ₂							
		106Pu	125Sb	134Cs	137Cs	144Ce	154Eu	90Sr	
1	$\frac{8.7}{188}$	3.6+7	5.4+6	1.5+8	9.9+8	5.6+8	3.0+7	1.6+9	
2	$\frac{6.7}{81.4}$	<9.3+6	4.6+6	1.2+8	7.8+8	1.4+7	<9.3+5	5.0+7	
3	$\frac{1.6}{9.0}$	<2.7+6	8.1+5	3.5+7	2.3+8	5.4+5	<2.7+5	8.8+6	
		233Pu	239+240Pu	241Am	242Cm	244Cm			
1		1.2+7	2.1+7	1.4+7	5.0+5	2.5+6			
2		6.1+5	9.7+5	5.3+5	2.5+4	1.3+5			
3		3.0+4	4.6+4	2.1+4	1.2+3	6.6+3			

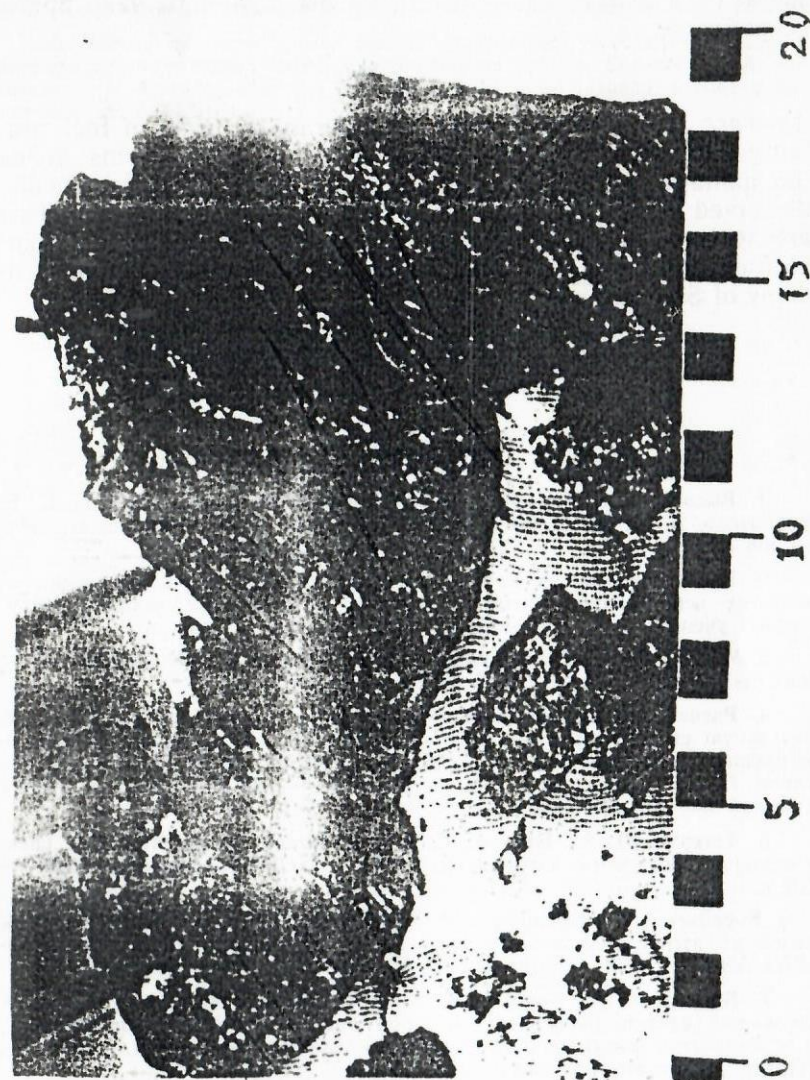


Рис. 2. Внутренняя структура ЛТСМ «слоновья нога».

зии и т. п. Однако данный результат является пока единственным, и делать какие бы то ни было выводы явно преждевременно.

Abstract. The results of studies of the main forms of fuel containing masses destruction are presented. Such forms inside the damaged 4-th Unit of the ChNPP are: core fragments, dispersed fuel (fuel particles) and lava-like materials. This article is a review of experimental data obtained by the Complex expedition of IAE and ISTC «Shelter» of Ukrainian Academy of Sciences.

Список литературы

1. **Высокотемпературное ядерное топливо** / Р. Б. Котельников, С. Н. Башлыков, А. И. Каштанов, Т. С. Меньшикова. — М.: Атомиздат, 1969. — 368 с.
2. **Робертсон Дж. А.** Труды второй международной конференции по мирному использованию атомной энергии // Избранные доклады иностранных ученых. — М.: Атомиздат, 1959. — Т. 6. — С. 464.
3. Mercer T. T. On the role of particle size in the dissolution of lung burdens // Health Phys. — 1967. — 13. — P. 1211—1221.
4. **Расчетно-экспериментальное определение дозовых нагрузок на дыхательную систему при ингаляции «горячих частиц» для персонала, принимавшего участие в работах по ЛПА на ЧАЭС** / А. С. Баев, С. А. Богатов, Л. И. Быховская и др. — М. 1992. — 20 с. — (Препр. / Ин-т атомной энергии; 5484/14).
5. **Тетерин Ю. А., Баев А. С.** Рентгеновская фотоэлектронная спектроскопия соединений актиноидов. — М.: ЦНИИатоминформ, 1986. — 102 с.
6. **Воробьев А. М., Ефимова А. Н.** Растворимость и радиоактивность аэрозолей на атомных электростанциях // Радиационная безопасность и защита АЭС. — 1980. — Вып. 4. — С. 66—69.
7. **Богатов С. А., Боровой А. А.** О некоторых свойствах топливосодержащих частиц, образовавшихся при аварии на Чернобыльской АЭС, и особенностях формирования топливного выброса. — М., 1991. — 30 с. — (Препр. / Ин-т атомной энергии; 5344/3).
8. **Исследование устойчивости наиболее радиологически опасных нуклидов в различных формах топливного выброса Чернобыльской аварии** / С. А. Богатов, А. А. Боровой, В. И. Дворецкий и др. — М., 1990. — 20 с. — (Препр. / Ин-т атомной энергии; 5022/3).

9. **Форма и характеристики частиц топливного выброса при аварии на Чернобыльской АЭС** / С. А. Богатов, А. А. Боровой, Ю. В. Дубасов, В. В. Ломоносов // Атомная энергия. — 1990. — 69, вып. 1. — С. 36—40.

10. **Оценка скорости эрозии топливосодержащих масс внутри «Саркофага» и характеристики образующихся частиц** / С. А. Богатов, А. А. Боровой, А. Н. Киселев и др. — М., 1991. — 21 с. — (Препр. / Ин-т атомной энергии; 5434/3).

Научное издание

Богатов Сергей Александрович
Боровой Александр Александрович
Евстратенко Александр Сергеевич
Херувимов Александр Николаевич

ДИНАМИКА ПОВЕДЕНИЯ ТОПЛИВНЫХ МАСС
В ОБЪЕКТЕ «УКРЫТИЕ»

Редактор М. И. Сахарова
Корректор Е. Л. Кулешова

Сдано в набор 18.08.92. Подп. в печ. 21.08.92. Формат 60×84/16. Бум.
кн. журн. Лит. гарн. Выс. печ. Усл. печ. л. 1,16. Усл. кр.-отт. 1,28. Уч.-изд.
л. 1,5. Тираж 100 экз. Заказ 1170. 60 к.

Редакционно-издательский отдел с полиграфическим участком
Института кибернетики имени В. М. Глушкова АН Украины
252207 Киев 207, проспект Академика Глушкова, 40