

25 РОКІВ ЕВОЛЮЦІЇ УЯВЛЕНЬ ПРО ПАЛИВОВМІСНІ МАТЕРІАЛИ ОБ'ЄКТА «УКРИТТЯ»: СЦЕНАРІЇ ЇХНЬОГО УТВОРЕННЯ ТА ФІЗИЧНІ МІРКУВАННЯ

© 2011 р. О. В. Жидков

Інститут проблем безпеки АЕС НАН України, Чорнобиль

Проведено огляд і критичний аналіз концепцій різних років, де ідентифікуються провідні фізичні чинники перебігу активної фази аварії 1986 р. на ЧАЕС, що спричинили утворення лаво-подібних паливовмісних матеріалів (ЛПВМ) та унікально сильні радіоекологічні наслідки в порівнянні з іншими відомими важкими ядерними аваріями. Стаття містить нові експериментальні й розрахунково-оціночні матеріали, на базі яких дістають несуперечливого фізичного пояснення як механізми утворення й розповсюдження ЛПВМ, так і відмінності у властивостях ЛПВМ різних видів.

Ключові слова: важка ядерна аварія, опромінене ядерне паливо, паливовмісні матеріали.

Наразі пройшло 25 років з моменту відомої запроектої аварії на ЧАЕС, безпрецедентної в мірілі її техногенних і радіоекологічних наслідків. Провідну роль у формуванні наслідків аварії відіграла поведінка палива в її активній фазі; наразі інтерес являє стан палива в об'єкті "Укриття" та прогноз поведінки техногенних продуктів, що утворилися в перебігу активної фази аварії – лавоподібних паливовмісних матеріалів (ЛПВМ) – силікатних композицій, що в помітній кількості містять опромінене паливо з притаманними йому компонентами. За більшістю оцінок, близько половини всього палива об'єкта «Укриття» міститься в них.

Перебіг активної фази аварії (після руйнування технологічних каналів і корпусу реакторної установки) був предметом детальних досліджень ще 10–15 років тому [1], а також нещодавніх узагальнень [2], проте й дотепер запропоновані сценарії видаються внутрішньо суперечливими й такими, що не пояснюють достатньою мірою як істотні риси картини, що спостерігається в зруйнованому реакторі, так і обсяг радіоекологічних наслідків аварії. Певні результати в цьому напрямку були отримані авторами [3], але наразі з'явилися деякі нові фактичні дані й концепції. Метою роботи є критичний аналіз концепцій, що існують, та спроба усунути певні прогалини й суперечності в пов'язаних з цим питаннях.

1. Деякі загально-фізичні аспекти важких аварій на ядерних реакторах

Фізичним підґрунтям для важкої ядерної аварії є різке зростання тепловиділення через втрату управління ланцюговою ядерною реакцією, або криза тепловіддачі, пов'язана з втратою теплоносія чи його недостатньою циркуляцією. Обидва механізми призводять до перегріву (плавлення) ядерного палива й оболонок твелів і, як наслідок, до втрати ними герметичності. У разі сильного (на порядки) зростання тепловиділення в паливі, можливе його диспергування, що носить вибуховий характер. У каналних реакторах (РВПК) існує додатковий шлях розвитку важкої аварії – при сильному підвищенні тиску теплоносія в каналах стає можливим їхній механічний розрив (не пов'язаний із плавленням), а в разі їхнього масового розриву за короткий проміжок часу може відбуватися різке й сильно понаднормове підвищення тиску в шахті реактора, що призведе до повного руйнування реакторної установки, позаяк конструкція РВПК на тиск не розрахована. Саме у такий спосіб відбувався початок розвитку активної фази аварії 1986 р. Фізичними чинниками цієї аварії була втрата управління ядерною реакцією, через що тепловиділення в твелах на короткий час перевищило нормативне в кільканадцять разів, та криза тепловіддачі. Як наслідок цих процесів, відбулася руйнація (розрив) багатьох технологічних каналів, масове проникнення пари високого тиску в шахту реактора (що не розрахована на великий тиск) і наступне

швидке руйнування реакторної установки, що носило характер вибуху. Паливовмісні матеріали (ПВМ) можуть утворюватися в ядерно-фізичних установках за умов важких ядерних аварій [1 - 4], коли порушується герметичність (цілісність) оболонок твєлів і розпечене до високої температури паливо та його компоненти вступають у безпосередню фізико-хімічну взаємодію не тільки з матеріалом оболонок твєлів і оточуючими їх матеріалами активної зони, а й з іншими матеріалами конструкції реакторної установки; особливо це стосується конструкції РВПК [5], що в нормі працює без тиску і, відповідно, не має міцної оболонки, що запобігала б її руйнації навіть за умови помірної механічної дії. Принципово, що фізико-хімічна взаємодія перебігає в умовах впливу дуже високих радіаційних полів, що змінює хімічну кінетику і уможлиблює перебіг реакцій, неможливих за рівноважних умов [6]. Продуктами таких реакцій є ПВМ та ЛПВМ: композиції, що містять ядерне паливо, високорадіоактивні продукти його поділу та радіонукліди, напрацьовані при опроміненні палива нейтронами в реакторі; за умов аварії 1986 р. до складу ЛПВМ входять сполуки матеріалів конструкції РВПК.

На перший погляд, основна маса палива мала бути зосереджена в шахті реактора, але, як виявили детальні обстеження, шахта реактора порожня, на відміну від інших відомих важких ядерних аварій, коли паливо залишалось в активній зоні.

2. До питання про утворення ЛПВМ

Щодо сценарію утворення ЛПВМ, спробу дослідити цей процес (що відбувався після вибуху) було зроблено в [1]. Відповідно до [1, с. 122] ядерне паливо, що знаходиться в твєлах, нагрівалося до температури плавлення цирконієвих оболонок через залишкове тепловиділення. Далі йдеться, що цирконієва оболонка твєлів зсередини плавиться, розчиняючи в собі паливні таблетки з утворенням уран-цирконієвої евтектики і, таким чином, «ядерне паливо без досягнення точки плавлення переходить в рідкий стан (!) і стікає...». Такого стибу пояснення не можна вважати прийнятним через наступні обставини:

1. Розігрів оболонок твєлів до дуже високих температур, згідно з цією схемою, мав би носити універсальний характер для всіх твєлів з достатнім вигоранням палива. У той же час у зруйнованому блоці спостерігається багато фрагментів твєлів з безсумнівно великим вигоранням (велика інтенсивність γ -випромінювання від них), оболонки яких не тільки не розплавлені, а й взагалі не мають слідів високотемпературного впливу. Матеріальні докази на користь тієї концепції також відсутні – за умов численних досліджень стану палива в об'єкті "Укриття" не виявлено фрагментів оболонок твєлів, що мали б свідчення їхнього підплавлення.

2. Для підплавлення оболонок твєлів, що вільно лежать, потрібна температура біля 1900 °С, і потужність їхнього розігріву зсередини має компенсувати помітну при цій температурі втрату енергії в навколишній простір за рахунок хоча б теплового випромінювання; у той же час потужність залишкового тепловиділення палива РВПК (≈ 200 Вт/кг) для цього явно (на декілька порядків) недостатня [3].

Модифікація згаданого сценарію була запропонована в [7], де за додаткове джерело тепла вважалось високотемпературне окислення графіту активної зони; але й тут можливість досягнення високих температур є сумнівною: хоча енергія, що виділяється при окисненні графіту, значна, проте ця реакція не може забезпечити великої теплової потужності, зважаючи на недостатню її інтенсивність навіть за високих температур [8]. У [7], як і в [1], значна роль у тепловиділенні відводилась пароцирконієвій реакції; проте оцінки, базовані на результатах кількісного визначення інтенсивності такої реакції за умов, що виникали в перебігу цієї аварії [11, 12, 20], показують, що її теплова потужність надто мала, щоб помітно вплинути на загальний тепловий баланс. Нарешті, в [17] було визнано, що внесок теплової потужності від згаданих хімічних реакцій не перевищував 30–35 % загальної теплової

потужності в активній фазі аварії, з чого випливає, що перебіг цих реакцій (окислення графіту та пароцирконієвої) не є визначальним для утворення ЛПВМ чинником.

2.1. Спроби оцінок температури утворення ЛПВМ

Температура формування ЛПВМ оцінюється в [1, с. 233] як $1600 \div 1700$ °С і приблизно на тому ж рівні оцінюється температура розповсюдження лавових потоків. Як основний аргумент висувається збіг оцінок теплового балансу при утворенні ЛПВМ, що виглядає дивним, зважаючи на нехтування (безумовно значними) втратами теплової енергії на випромінювання за таких температур і прийнятими помилковими значеннями для питомої теплоти виділення кристалізаційної води з серпентиніту при його плавленні [1, с. 142] – насправді ця теплота на порядок менша, ніж теплота звичайного випаровування води, що використовувалась для оцінок в роботі. З огляду на це, збіг оцінок теплового балансу в [1] можна вважати радше випадковим.

У [7], на основі експериментів по плавленню суміші деяких окисів, було зроблено висновок, що температура утворення ЛПВМ становить 1500 °С. Цей результат, однак, видається сумнівним через ідейну хибу поставлених експериментів: хоча багатокомпонентна кисневмісна система за своїм хімічним і елементним складом завжди формально може бути представлена як хімічне з'єднання низки окисів, видається очевидним, що поведінка багатофазної силікатної системи в цілому і поведінка механічної суміші окремо взятих її формальних хімічних складових – далеко не одне й те ж саме. Таким чином, підхід до моделювання процесу утворення ЛПВМ шляхом високотемпературної дії на суміш тугоплавких окисів (CaO , MgO , ZrO_2), що не існували як вихідні матеріали для утворення ЛПВМ, є докорінно хибним; істотною хибою є також обставина, що сплавлені в [7] «ЛПВМ», взагалі не містили урану (!). З огляду на ті хиби, результати моделювань [7] не можна вважати придатними для обґрунтованих оцінок.

Процес лавоутворення був також предметом розгляду в минулорічній монографії [2], де розгляд базувався на щойно обговорених концепціях [1, 7, 9]. Модель, запропонована там [2, с. 92], як і в [1], включала стадію того, що перед руйнуванням ядерної установки «оболонка твелів зсередини розплавилась і почала розчиняти в собі паливні таблетки з утворенням рідкої уран-цирконієвої евтектики». Щодо такого штибу сценарію є заперечення, нумеровані на початку розділу. Доцільно зазначити, що деякі гіпотетичні твели, або ТВЗ (тепловиділяючі збірки) РВПК, розігріті навіть до температури 3000 °С, швидко б охолодились хоча б через втрату ними тепла за рахунок теплового випромінювання в оточуюче середовище: відповідну оцінку з диференціального рівняння, що базується на законі Стефана – Больцмана, наведено на рис. 1, з якого видно, що поодинокий твел чи ТВЗ (навіть без втрат тепла на конвекцію) охолодяться до температури нижче за 1000 °С (1273 К) уже за $1 - 2$ хв; вочевидь, того часу явно недостатньо для утворення ЛПВМ згідно з [2].

У недавньому дослідженні [9], на відміну від [1, 7], уже не говориться про можливість розігріву окремих ТВЗ до температури плавлення цирконію (уперше неможливість такого, з огляду на втрати тепла шляхом теплового випромінювання, було відзначено в [3]). Автор [9] цілком слушно розглянув єдину можливість розігріву ТВЗ до дуже високих температур – це можливо тільки тоді, коли ТВЗ зі значним залишковим тепловиділенням ізольовані від навколишнього середовища шаром серпентиніту (або піску), що у великій кількості використаний у конструкції РВПК [5], – при цьому практично блокується втрата ними теплової енергії через випромінювання. Одночасно автор [9] дотримується думки про необхідність виникнення дуже високих температур ($> 1500 \div 2000$ °С) при формуванні ЛПВМ, для досягнення яких він закладає дуже штучне припущення про наявність геометричного утворення в кількадесят досить щільно упакованих ТВЗ, що, до того ж, мають лежати паралельно. З огляду на те, що руйнування ядерної установки супроводжувалося механічним розривом, у кінцевому рахунку, усіх технологічних каналів, існування в активній

фазі аварії згаданої конфігурації ТВЗ видається практично неймовірним. Урешті-решт, можливість квазістаціонарного розігріву одиночного твела (ТВЗ) з відомим залишковим тепловиділенням, оточеного шаром теплоізоляційного матеріалу певного радіуса (у вигляді серпентиніту або піску), підлягає коректній оцінці в елементарних функціях, позаяк (у разі довжини фрагмента твела, значно більшої за його діаметр) така задача підпадає під 2D клас і для цього випадку розв'язується точно. Надійну оцінку знизу для стаціонарної температури оболонки, що досягається, можна отримати, виходячи з граничної умови, що температура на периферії теплоізолюючої оболонки близька до кімнатної (300 K). Результат таких оцінок наведено на рис. 2, звідки видно, що одиночний твел (крива 2), при розумних припущеннях щодо товщини теплоізолюючого шару, не може розігрітись вище ≈ 900 K і, таким чином, сам по собі не може бути осередком утворення ЛПВМ. З одиночною ТВЗ (крива 1) ситуація радикально відрізняється: уже за товщини теплоізолюючого шару 0,1 – 0,2 м, що видається більш ніж реальним, досягаються температури, завідомо достатні для утворення ЛПВМ за будь-яким сценарієм. Реально, обмеженням для досягнення при цьому дуже високих температур є засипання ТВЗ не по всій довжині, через що відбуватиметься помітний тепловідвід через її кінці, а також плавлення прилеглого матеріалу, що значно підвищує його теплопровідність. З оцінок рис. 2 випливає, що утворення ЛПВМ може носити локальний характер, коли окремий осередок містить усього кілька десятків кілограмів палива. У такий спосіб, либонь, утворились ЛПВМ на верхніх відмітках, які автор свого часу назвав поліхромними [4, 13] через їхню багатобарвність. Справді, на рис. 3 – 6 можна бачити фрагменти поліхромної ЛПВМ, барвистість яких вочевидь обумовлена походженням цих лав з кількох локальних осередків (з різним хімічним складом), що дуже швидко утворились і дуже швидко застигли у вигляді сталактита, не встигнувши гомогенізуватись у лавовому потоці. З викладеного зрозуміло, що штучне припущення автора [9] про необхідність укладання в паралельний штабель щонайменше кільканадцяти ТВЗ для утворення ЛПВМ немає рації, а зроблений на підставі того висновок про те, що «для здійснення процесу утворення поліхромних ЛПВМ... було необхідно близько 1 т палива», є необґрунтованим. Можливою причиною помилки автора [9] є застосування ним [14, с. 55, 57] завідомо (на порядок) завищених параметрів теплопровідності, характерних для монолітного мінералу серпентиніту та кристалічного кварцу, у той час як реальні насипні матеріали (серпентинітова засипка й пісок) значно менш теплопровідні [21] (див. підпис до рис. 2).

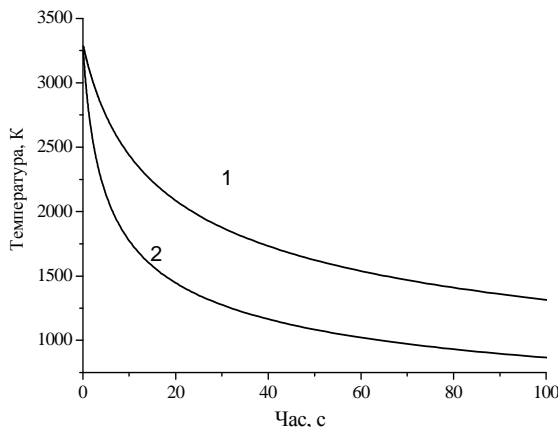


Рис. 1. Застигання одиночної ТВЗ (1) і твела (2), попередньо розігрітих до гіпотетичних 3000 °С, за рахунок теплового випромінювання їхніми оболонками. Ураховано інтегральну випромінюючу здатність цирконію (0,53) в околі точки плавлення.

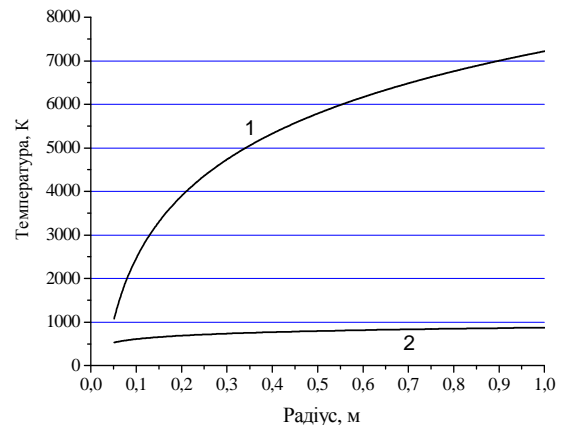


Рис. 2. Розрахункова залежність стаціонарної температури оболонки одиночної ТВЗ (1) та твела (2) з тепловиділенням 200 Вт/кг, оточених шаром теплопровідністю 0,3 Вт/(м·К), від його радіуса. Теплопровідність сухого серпентиніту 0,25 Вт/(м·К), а піску – 0,33 Вт/(м·К).

Про локальність й вибірковість процесу утворення ЛПВМ при загальній невисокій температурі в зруйнованому реакторі незалежно свідчать спостереження дослідників [15], де констатується, що «резкая граница расплавленных или сожженных участков металлоконструкций и сохранившейся окраски характерна для подреакторного помещения после аварии», а також дані перших вимірювань температури повітря в шахті й руїнах центрального залу, що показали 24 – 50 °С [16], у той час як температура зовнішнього повітря (травень 1986 р.) була 25 – 30 °С. У [16] же наведено спостереження, згідно з якими «краска фрагментов железобетонных конструкций, оказавшихся в шахте реактора, цела, не обгорелая, не закопченная, как и краска стальной облицовки тепловой защиты помещений барабанов-сепараторов и металлоконструкции схемы "Е"(верхньої плити)».

2.2. Про можливість утворення уран-цирконієвої евтектики

Усталена для багатьох (навіть фахівців) думка про сценарій утворення ЛПВМ, викладена в [1, 2, 7, 9] і розтиражована в інших працях й офіційних документах, не враховує всі вищевикладені аргументи й оцінки, до того ж, як щойно проілюстровано, містить багато внутрішніх протиріч і суперечностей. Ключовим моментом генезису ЛПВМ є відповідь на питання, чи реально утворювалась уран-цирконієва евтектика, що потім взаємодіяла з силікатами, як те вважається в цитованих роботах, або ж сама хімічна взаємодія розігрітих силікатів з оболонками твелів спричинила утворення ЛПВМ без плавлення ядерного палива та цирконію? Вочевидь, спроба відповіді на це запитання може лежати лише на шляху отримання кількісних характеристик інтенсивності високотемпературної хімічної взаємодії матеріалів активної зони між собою та з конструкційними матеріалами РВПК, елементи яких увійшли до хімічного складу ЛПВМ. Без втрати загальності, динаміка фізико-хімічної взаємодії допускає опис простим диференціальним рівнянням на кшталт

$$dm = \alpha \cdot S(t) \cdot dt, \quad (1)$$

де dm – зменшення маси фази, що взаємодіє, за проміжок часу dt ; $S(t)$ – площа межі розділу фаз у поточний момент часу t ; α – коефіцієнт пропорційності, що саме й характеризує інтенсивність міжфазної взаємодії за конкретних температурних й інших чинників. Параметр α при цьому визначається природою (властивостями) матеріалів, що взаємодіють та зовнішніми умовами. У низці складних експериментів [3], методику яких обґрунтовано в [18], вдалося отримати оцінки зверху й знизу для параметрів взаємодії палива з силікатами та силікатів з конструкційними матеріалами РВПК за різних зовнішніх умов. Основні результати зведено до табл. 1.

Таблиця 1 Оцінки α для різних матеріалів і умов в експерименті

№	Матеріали, що взаємодіють	α , кг/(м ² ·год)	Умови взаємодії
1	уранове паливо – цирконій	< 0,2	$T \approx 1800$ °С (Zr твердий)
	уранове паливо – цирконій	< 0,5	$T \approx 1900$ °С (Zr рідкий)
2	силікати – цирконій	> 22	$T \approx 1100$ °С (атм. повітря)
3	силікати – уранове паливо	> 6	$T \approx 1600$ °С (вакуум)
4	силікати – уранове паливо	> 14	$T \approx 950$ °С (атм. повітря)
	силікати – уранове паливо	> 30	$T \approx 1020$ °С (атм. повітря)
5	силікати – вуглецева сталь	> 24	$T \approx 1150$ °С (атм. повітря)
6	силікати – неіржавіюча сталь	> 1,1	$T \approx 1150$ °С (атм. повітря)

З попереднього аналізу даних табл. 1 випливає як важливий параметр надзвичайна стійкість цирконію до високотемпературної хімічної взаємодії з паливом, що узгоджується з незалежними результатами інших досліджень. Зокрема, в узагальненій праці [19] було

констатовано, що режим ушкодження оболонок твेलів, що супроводжується утворенням рідких змішаних фаз цирконію з паливом, тільки починається в області температур $1800 \div 2000$ °С. Далі, можна поставити задачу про оцінку *знизу* часу, необхідного для розповсюдження межі розділу фаз можливої взаємодії $UO_2 - Zr$ на відстань D . Якщо мати на увазі, що оболонка твела є тонкою в порівнянні з його іншими розмірами, тоді площа міжфазної взаємодії практично стала з часом ($S(t) \approx \text{const}$) і розв'язком диференціального рівняння (1) буде проста лінійна залежність

$$D(t) = (\alpha/\rho) \cdot t, \quad (2)$$

де параметр α/ρ є нижньою оцінкою для швидкості розповсюдження фронту міжфазної взаємодії в оболонці твела; окремий інтерес являє оцінка *знизу* часу, необхідного для того, щоб цей фронт пройшов оболонку твела наскрізь, зруйнувавши ту оболонку й утворивши, таким чином, уран-цирконієву евтектику, про яку наголошувалось у [1, 2, 7, 9, 14] й низці інших робіт. Оцінка з рівняння (2) швидкості розповсюдження фронту дає $\approx 0,031$ мм/год при 1800 °С та $\approx 0,077$ мм/год при 1900 °С. Далі, враховуючи, товщину оболонки твела за $0,95$ мм [5], з рівняння (2) випливає, що оцінка *знизу* часу повної руйнації оболонки твела (при 1900 °С) становить більше 12 год, а при 1800 °С (цирконій не розплавлений) – понад 32 год. Існування таких високих температур протягом такого тривалого часу видається неможливим, навіть якщо припустити можливість розігріву ТВЗ до таких температур під час аварійного розгону реактора (див. рис. 1). Експертне ж дослідження фрагментів оболонок зруйнованих твелів, вилучених з "Укриття", показало, що вони не мають слідів підплавлення; більше від того, із зовнішнього боку немає видимих слідів окислення цирконію (кольорів мінливості), характерних після перебування цирконієвих сплавів у повітрі за умов високих температур. Зсередини оболонки збереглися характерні (для суцільнотягнутих труб) сліди протягування, що беззаперечно свідчить про відсутність взаємодії фаз $UO_2 - Zr$. З наведеного, як висновок, випливає, що в перебігу активної фази аварії інтенсивністю реакції $UO_2 - Zr$ можна знехтувати, а поширена думка про уран-цирконієву евтектику як джерело утворення ЛПВМ [1, 2, 7, 9, 14] є, вочевидь, докорінно хибною.

2.3. Умови й обставини утворення ЛПВМ

Навіть початковий аналіз даних табл. 1 наводить на думку, що за відсутності високо-температурної взаємодії з іншими конструкційними матеріалами оболонки твелів в основному б зберегли свою цілісність. Як йшлося вище, видається ймовірним виникнення високих локальних температур оболонок твелів у місцях, де вони (повністю або частково) опинилися під шаром малотеплопровідних матеріалів конструкції реактора (див. рис. 2), що в основному являють собою складні силікати. Відомо, що розплавлені силікати за високих температур є хімічно агресивним агентом по відношенню до низки металічних сплавів та окисів [22] (при цьому саме паливо належить до класу окисів). Силікатами ж є цементний камінь з бетону (гідросилікат кальцію), пісок (SiO_2 з домішками сполук натрію) і, нарешті, серпентиніт, що в умовах аварії ($T > 500$ °С), як відомо, стає хімічно нестабільним і розкладається за реакцією



з утворенням олівін-форстериту та двоокису кремнію. Термодинамічний аналіз процесів взаємодії SiO_2 й інших силікатів з металами показує, що їхніми домінуючими етапами (стадіями) є дисоціативне випаровування окису кремнію з утворенням молекулярного кисню та наступним хімічним розкладом того кисню на атоми, що призводить до подальшого ефективного окислення металу атомарним киснем. Металічний окис, що при тому утворився, бере участь у формуванні складу силікатного скла і часто сам є склоутворюючим [10]. Така ситуація має місце для більшості тугоплавких металів, зокрема таких як залізо, молібден,

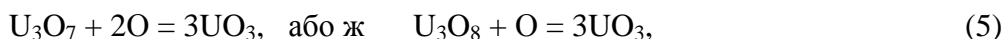
реній, тантал, титан, вольфрам, цирконій та деяких інших; досить стійкими до розплавлених силікатів є лише метали платинової групи через їхню надзвичайну стійкість до окислення взагалі. Дослідження по визначенню константи міжфазної взаємодії фрагментів натурних цирконієвих оболонок з силікатами в повітряній атмосфері (другий рядок табл. 1) виявило оцінку *знизу* $\alpha > 22$ кг/(м²·год), причому ця інтенсивність настільки швидко зростає з температурою, що вже за $T > 1150$ °С її практично неможливо визначити в експерименті через швидкоплинність процесу. Якщо ж з рівняння (2) провести оцінку швидкості поширення фронту міжфазної взаємодії того ж штибу, що й для цирконію з паливом, то відповідна оцінка *зверху* часу, необхідного для повного розчинення оболонок твелів у силікатах при 1100 °С становить усього близько 15 хв. З простого зіставлення умов взаємодії й оцінок абсолютних швидкостей реакцій (рядки 1 і 2 табл. 1) випливає, що умовах важкої ядерної аварії взаємодія оболонок твелів з силікатами (у разі контакту з ними) протікає значно раніше (по температурі) і відбувається набагато швидше, ніж гіпотетична взаємодія цирконієвої оболонки з паливом [1, 2, 7, 9, 14]. Отже, домінуючим процесом, що започаткував утворення ЛПВМ, було локальне наскрізне розчинення оболонок твелів (ТВЗ), що опинилися в контакті з серпентинітом та іншими силікатними матеріалами (пісок, бетон). Уран-цирконієва евтектика при цьому не утворюється.

Існує додаткова теплотехнічна обставина, що може значно уповільнювати початок утворення ЛПВМ: ефективна теплопровідність вологих силікатів велика; так, зокрема, відомо, що теплопровідність насипного будівельного піску з вологістю 15 – 20 % становить 1,8 Вт/(м·К), а такого ж сухого піску – лише 0,33 Вт/(м·К), себто в 5,5 рази менше. Висихання силікатів потребує часу, до того ж, уже за кілька годин після аварії тепловиділення палива спадає приблизно вдвічі, що додатково уповільнює процес, але необхідні температури в будь-якому разі досягаються навіть для одиночної ТВЗ (див. рис. 2). Це міркування підтверджується іншими відомими обставинами: чорні й коричневі ЛПВМ, утворені на нижніх відмітках, де води, вочевидь, було більше, утворювались й розтікались повільно, устигнувши добре гомогенізуватися за своїм хімічним складом (видно з даних елементного аналізу та з однорідності їхнього кольору). Цим видам ЛПВМ притаманні як макроскопічні порожнини, що утворилися через пару, так і об'ємна мікропористість через ультрамікропори, утворені молекулами води, вбудованими в силікатні цикли [4, 23]. На відміну від них, поліхромні ЛПВМ утворювались й розповсюджувались на верхніх відмітках, де води було значно менше, що мало наслідком швидке їхнє утворення й швидке застигання. Поліхромні ЛПВМ через те не мають газових порожнин, а доступна пористість для них нульова [4, 23]. У той же час, потоки поліхромних ЛПВМ, що утворились з декількох осередків, не встигли гомогенізуватися за складом через швидкоплинність процесу. Позаяк кожному хімічному складу притаманний свій колір, на око можна вирізнити щонайменше 6 – 7 кольорів – осередків утворення поліхромних ЛПВМ (рис. 3 – 6 див. на обкладинці, с. 2 та 3).

Після швидкого руйнування оболонок твелів за описаним механізмом настає етап високотемпературної взаємодії палива з силікатним розплавом, що вже містить цирконій. Експериментальне дослідження такої взаємодії у вакуумі, де розчинявся стехіометричний UO_2 дає (див. табл. 1, рядок 3) $\alpha > 6$ кг/(м²·год), що, з огляду на температуру, уже на порядки більше інтенсивності взаємодії палива з цирконієм (рядок 1 табл. 1). Визначення ж динаміки розчинення палива в силікатах у перебігу аварії потребує врахування процесу швидкого [24] високотемпературного доокислення UO_2 в повітрі [24, 25], що проходить за реакцією



після чого вищі окиси розчиняються в силікаті. У ході цього в реакцію вступає атомарний кисень, через що настає доокислення урану з утворенням значної кількості його найвищого окису за реакціями на кшталт



а вже далі перебігає дифузія цього найвищого окису в розплавленому склі; така реакція специфічна саме для окислення атомарним киснем, позаяк при окисненні в повітрі найвищий ступінь окислення урану, як відомо [25], не досягається. На підтвердження цієї тези, на рис. 7 (див. обкладинку, с. 3) ілюстровано проміжну стадію процесу розчинення палива в розплавленому силікатному склі, коли можна візуально спостерігати зону навколо фрагмента палива, що має дуже специфічне криваво-червоне забарвлення, добре відоме фахівцям як характерна ознака появи UO_3 . З табл. 1 (рядок 4), видно, що атмосферне повітря радикально впливає на динаміку взаємодії уранового палива з силікатами; уже при $T \approx 950$ °C оцінка знизу для швидкості взаємодії дає $\alpha > 14$ кг/(м²·год) і ця швидкість сильно зростає навіть при невеликому підвищенні температури (експериментальна оцінка енергії активації дає ≈ 6 еВ).

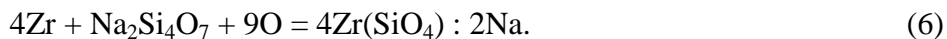
Далі, являє інтерес оцінка можливої швидкості розчинення циліндричного стрижня з палива, що має геометрію реального твела (у повітряній атмосфері) за наявності достатньої кількості розплавленого силікату. Для такої оцінки рівняння (1) можна переписати для зразка циліндричної форми та безпосереднім інтегруванням віднайти оцінку зверху, що при $T \approx 1000$ °C фрагмент твела повністю розчиняється в розплавлених силікатах за 20 хв. З огляду на енергію активації цього процесу (6 еВ), можна оцінити, що вже при $T \approx 1200$ °C таке розчинення потребує менше 1 хв. Реальність швидкого високотемпературного доокислення палива в умовах аварії, однак, заперечувалась у [26, с. 99] посиленням на те, що «...атмосфера в зоні була чисто восстановительной: горел графит, шла парациркониевая реакция...», але тезу, за якої в зруйнований блок не надходить атмосферне повітря (й кисень) протягом годин (!), навряд чи можна сприймати серйозно, хоча б через неможливість у такому разі окислення графіту без надходження кисню.

Як впливає з викладеного, для утворення ЛПВМ зовсім не потрібно попереднього утворення уран-цирконієвої евтектики; така модель, на якій донині наполягають у [1, 2, 7, 9, 14] потребує довготривалого існування дуже високих температур (понад 2500 °C), недосяжних в умовах аварії, що аналізується; крім того, за цієї моделі порушувалися б фундаментальні термодинамічні принципи: у разі наявності декількох компонент і принципової можливості перебігу декількох типів реакцій (фазових переходів), завжди домінуватимуть саме ті реакції, що відбуваються при найнижчих можливих температурах і яким притаманна найбільша інтенсивність міжфазної взаємодії α (див. табл. 1). З аналізу сукупності експериментальних даних випливає, що температури порядку 1100 ÷ 1200 °C абсолютно достатні для утворення ЛПВМ, осередком утворення яких принципово може бути навіть одинична ТВЗ. Ключовою обставиною в процесі лавоутворення є невдалі конструктивні особливості РВПК, коли за умов важкої ядерної аварії легко може трапитись теплоізоляція твелів (ТВЗ) сипучими силікатами.

2.4. Розповсюдження лавових потоків: оцінка можливих температур

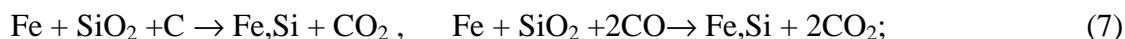
Поширеною є точка зору [1, 7, 9, 14, 17, 26], що винайдення в об'ємі ЛПВМ кристалів деяких тугоплавких сполук, зокрема тетрагонального ZrO_2 , високоуранового циркону $U_xZr_{1-x}(SiO_4)$, уран-кисневих фаз UO_x та інших, беззастережно свідчить про існування в процесі утворення та розповсюдження ЛПВМ значно вищих температур, зіставних із температурою плавлення, або прямого синтезу таких сполук з їхніх компонентів. Основною фундаментальною системною хибою тих міркувань є неврахування відомих у хімії шляхів отримання багатьох хімічних сполук шляхом їхньої кристалізації з розчинника. Наприклад, широковідомими є промислові технології низькотемпературного (до 1200 °C) вирощування тугоплавких кристалів рубінів та корунду, вирощування водорозчинних кристалів з водних розчинів, електролізу алюмінію з його тугоплавкого окису та ін. Крім того, не враховується, що деякі мінерали вже містилися в конструкційних матеріалах РВПК до аварії. Так, на думку авторів [1, 26], кристалічні включення силікату цирконію з домішками урану, що існують в об'ємі ЛПВМ, не могли утворитися за температури нижче за 1600 °C. З цього приводу

доцільно зазначити, що циркон є одним зі звичайних мінералів, що в помітних кількостях міститься в гранітному щебені [27, 28], частина якого брала участь в утворенні складу ЛПВМ. Те, що такий циркон (названий в [1] як «чернобылит») містить помітну кількість урану, є логічним, позаяк в умовах формування ЛПВМ дифузійні процеси були значущим чинником. До того ж, циркон за помірних температур утворюється при розчиненні цирконію в силікатах, входячи при цьому до структури стекел, коли (якщо йдеться про лужні силікатні стекла), вихід продуктів реакції формально може бути представлений у вигляді



Можливі й інші шляхи утворення циркону та інших сполук уже згодом у твердій фазі, коли відбувається кристалізація компонент стекел із часом під дією опромінення електронами [29, 30]; тут йдеться про самоопромінення ЛПВМ через власну β -активність [4]. У будь-якому разі факт виявлення мікроскопічних включень тугоплавких сполук в ЛПВМ, не є надійним чинником, на базі якого можна робити висновки про температуру їхнього утворення.

У деяких роботах [2, 14, 26] основним аргументом на користь існування високої температури в лавових потоках є наявність всередині об'єму ЛПВМ маленьких фрагментів (кульок) металу, що нібито був розплавлений. У [26] наполягають, що тим металом була сталь, яка, як відомо, має температуру плавлення близько 1500 °С, в [14] наявна спроба вирахувати склад розплавленого металу, базуючись на кількості навколишніх металокопструкцій, але при цьому ніхто не робив спроби визначити точку плавлення тих металічних включень. Для дослідження цього питання, з об'єму зразків (коричневих і чорних) ЛПВМ автором було вилучено кілька металічних кульок розмірами від 0,5 до 2,5 мм, які було піддано переплаву. Винайдена температура їхнього плавлення варіювалася від зразка до зразка в межах 1025 ÷ 1050 °С, похибка не перевищувала ± 15 К. Оціночний елементний аналіз складу цих металічних включень показав, що, крім заліза, вони в помітній кількості містять кремній, а також такі лужноземельні компоненти, як магній та кальцій; останні, либонь, й спричиняють помітне зниження температури плавлення порівняно з чистим залізом. Можливий фізико-хімічний механізм утворення таких металічних кульок того ж кшталту, що використовується у промисловому доменному виробництві феросиліцію, коли ця сполука утворюється при нагріванні суміші залізної стружки з піском у присутності вуглецю: при цьому йдуть реакції відновлення кремнію й одночасного утворення його сполук із залізом на кшталт



температура до 1200 °С достатня для таких процесів [31] і значно нижча за присутності лужних (лужноземельних) елементів. З огляду на наявність значної кількості розпеченого графіту в активній фазі аварії, перебіг реакцій кшталту (7) видається більш ніж імовірним.

Щодо температури лавових потоків, у деяких роботах [1, 2, 14, 26] повідомляється про існування в об'єкті "Укриття" цілих «калюж» переплавленого металу, що, на думку авторів тих робіт, свідчить про існування в лавових потоках температур понад точку плавлення того металу. Важливим тут є застереження про «уявне» переплавлення металів, спостережуване на фрагментах металокопструкцій, що деякий час перебували в розплавлених силікатних стеклах. Так, з табл. 1 (рядок 5) можна бачити, що розплавлені силікати досить інтенсивно взаємодіють з вуглецевою сталлю при помірній температурі за реакцію на кшталт (6). Якщо ж вдатись до аналізу деяких практичних спостережень, то зразок сталі кубічної форми (5 мм) приблизно через 10 – 15 хв перебування в розплавленому силікатному склі ($T \approx 1050$ °С) набуває абсолютно сферичної форми з блискучою поверхнею. Аналогічна картина за тих же умов спостерігалась з кубічним зразком цирконію (3 мм). Такі металічні кульки на вигляд неможливо відрізнити від кульок переплавленого металу. Нескладно уявити, що фрагмент сталеві конструкції після перебування в лавовому потоці легко

деформується, набуваючи заокруглих форм, і за результатами зовнішніх спостережень може бути прийнятий за «калюжу» переплавленого металу, що іноді дозволяє емоційно стверджувати [26, с. 94] про «...свидетельства очевидцев, которые в 1987 г. держали в руках большие капли расплавленного и застывшего металла...». У таких випадках навіть відбирання зразків цих металів з наступним визначенням їхньої температури плавлення не дасть однозначної відповіді на питання, а дуже спеціальне експертне дослідження виявиться надто трудомістким. З останнього, принаймні, випливає, що ані наявність в об'ємі ЛПВМ кульок металу, ані наявність «калюж» металу, що візуально спостерігаються в об'єкті «Укриття», не дає підстави для висновку про наявність у лавових потоках температур, зрівняних із температурою плавлення сталі (≈ 1500 °C).

Насправді узагальнену температуру розповсюдження лавових потоків можна оцінити, базуючись на даних про параметри їхньої високотемпературної плинності, позаяк плинність склоподібних утворень експоненціально залежить від температури з високою енергією активації процесу [10]. За цієї умови навіть значні довільні варіації в оцінках можливого часу протікання й застигання лавових потоків (у межах розумного) не дадуть великої похибки в оцінці ефективної температури їхнього розповсюдження. Залежність динамічної в'язкості коричневих ЛПВМ від температури в околі температури склування було визначено в [32], причому енергії активації процесу були визначені надійно, позаяк діапазон змін величини в'язкості сягав 3 – 4 порядки. Остання обставина дозволила надійно розрахувати параметри в'язкої плинності до досить високих температур, позаяк згаданий активаційний закон не має фундаментальних температурних обмежень, за винятком дуже високих температур, коли в принципі може відбуватися селективне випаровування окремих компонент розплаву [10]. Експериментальні дані й деякі оцінки наведено в табл. 2.

Таблиця 2. Експериментально визначені та розраховані параметри в'язкої плинності ЛПВМ

Вид ЛПВМ	Коричневі ЛПВМ	Поліхромні ЛПВМ
Температура склування T_g	758° C	800 °C
Енергія активації плинності	6,8 еВ	3,1 еВ
В'язкість при 800 °C, Па·с	$4 \cdot 10^{10}$	10^{12}
В'язкість, оцінена з енергії активації, Па·с	$T = 900$ °C	$7 \cdot 10^7$
	$T = 1000$ °C	$4 \cdot 10^5$
	$T = 1100$ °C	1500
	$T = 1200$ °C	30
	$T = 1300$ °C	0,35
	$T = 1400$ °C	0,03

З даних табл. 2 видно, що поліхромним ЛПВМ притаманна помірна плинність навіть за високих температур, а плинність коричневих ЛПВМ дуже висока; вибіркові вимірювання показують, що T_g для чорних ЛПВМ ще нижча, а плинність вища, ніж для коричневих. В [9] є спроба моделювання плинності ЛПВМ (без експерименту) шляхом напівемпіричного розрахунку з даних по в'язкості вулканічних лав (таких, що не містять урану й цирконію(?)). Оминаючи детальну критику такого підходу, можна констатувати його недоречність хоча б через «результат» (для 1250 – 1450 °C), де отримано практично лінійне й незначне падіння в'язкості ЛПВМ зі зростанням температури (рис. 8 в [9]), що завідомо суперечить твердо встановленим фундаментальним закономірностям процесу течії стекл.

Далі, можна поставити задачу про оцінку часу витікання одиниці об'єму лави у вертикальному потоці. Базуючись на відомому співвідношенні Гагена – Пуазейля [33] для

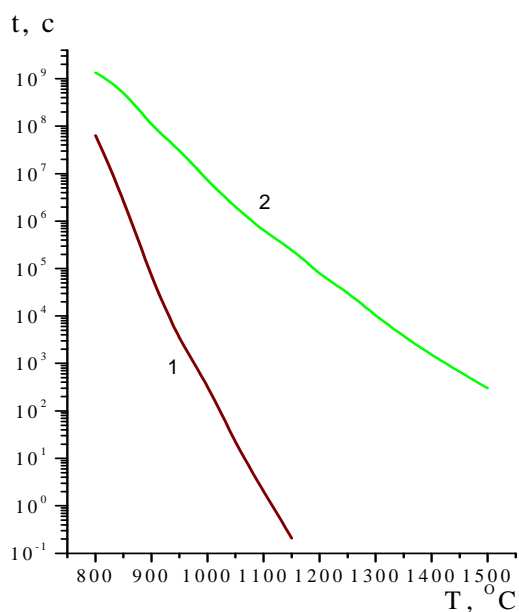


Рис. 8. Оцінка залежності часу повного витікання 1 м^3 ЛПВМ через вертикальну трубу діаметром 1 м від температури для коричневих ЛПВМ (1) та оцінка залежності часу витікання 1 л ЛПВМ в сталактиті діаметром 0,17 м для поліхромних ЛПВМ (2).

ламінарної течії, було оцінено час повного витікання 1 м^3 коричневої ЛПВМ через вертикальну трубу діаметром 1 м та його залежність від температури. Аналогічно для поліхромних ЛПВМ, де інша геометрія вертикальних потоків, був оцінений час витікання 1 л лавового струменя діаметром 17 см. Результати тих оцінок представлено на рис. 8, з якого можна бачити, що час, потрібний для витікання коричневих (і чорних) ЛПВМ, дуже сильно скорочується з підвищенням їхньої температури, а при $T > 1100 \text{ °C}$ уже б мало місце не витікання, а практично вільне падіння. Якщо при цьому припустити, що широкі можливі (у межах розумного) часові границі для витікання лавових потоків (об'єм потоку від декількох до кільканадцяти кубометрів) становлять не менше кільканадцяти хвилин (10^3 с) і ніяк не більше кільканадцяти діб (10^6 с) то з нижньої кривої рис. 8 випливає, що середня ефективна температура розповсюдження лавових потоків, про які йшлося, є в межах $870 - 980 \text{ °C}$. Далі, якщо врахувати явище

терморадіаційної в'язкості [34] (його фізика й оцінка внеску в процес викладені в [3, 32]), що значно підвищує плинність лави в сильних радіаційних полях, то реальними видаються температури не більше за $850 - 950 \text{ °C}$; себто ефективна температура розповсюдження лавових потоків чорних і коричневих ЛПВМ становить $900 \pm 50 \text{ °C}$.

Дещо інша ситуація виникає при аналізі температур розповсюдження потоків поліхромної ЛПВМ, що, утворившись з декількох осередків на верхніх відмітках, застигли у вигляді сталактита [14]. З одного боку, розумні часові межі витікання ЛПВМ (див. рис. 8) потребують припущень про дуже високі температури лавового потоку ($> 1500 \text{ °C}$) протягом значного часу (десятки хвилин), що навряд чи можливо з огляду на швидке охолодження сталактита в такій геометрії через теплове випромінювання (див. рис. 1). З іншого боку, припустити дуже повільне (протягом багатьох днів) утворення сталактита при помірних (до 1100 °C) температурах також неможливо, позаяк у такому разі його застигла й уже нерухома нижня частина відірвалася би від верху, де лава ще зберігала б плинність. Фізично несуперечлива можливість утворення сталактита, що вбачається автором, полягає в такому:

1. На верхній відмітці, де води мало, фрагменти ТВЗ (або декількох ТВЗ) було присипано серпентинітом з плитного настилу центральної зали та/або піском. Зважаючи на низьку теплопровідність сухих матеріалів, температура дуже швидко підвищилася (див. рис. 2), що спричиняло утворення плинної ЛПВМ у декількох локальних осередках.

2. З кожного осередку утворений струмок ЛПВМ знаходить собі шлях донизу, тужавіючи на ходу через великі теплові втрати; з наступним струмком процес повторюється (одночасне витікання декількох струмків малоімовірно), у результаті чого відбувається нарощування сталактита за механізмом, схожим на формування крижаних бурульок.

3. У разі невеликого проміжку часу між окремими струмками відбувається їхнє «зварювання» (як стекло) по межі розділу; у разі, коли проміжок часу значний, такого не відбувається, і фрагменти зберігають свою структуру як окремі утворення. Дослідження питання шляхом аксіального та радіального розпилювання фрагментів поліхромних ПВМ показує, що обидві ситуації мали місце однаково часто: у випадках, коли окремі потоки

зберегли свою структуру, зразок без зусиль розпадається на окремі фрагменти, кожний свого кольору, без будь-яких слідів контакту між ними (див. підписи під рис. 3 – 6 на обкладинці). Колористичні здібності автора дозволили вирізнити щонайменше сім різних кольорів (осередків утворення поліхромних ЛПВМ) при обстеженні зразків у натурі, частину з тих кольорів можна чітко вирізнити з рис. 3 – 6 (див. обкладинку).

З вищеописаного випливає, що поліхромні ЛПВМ не вдається (і було б некоректно) характеризувати певною температурою розповсюдження лавового потоку через складний і неодномоментний у часі характер їхнього утворення.

3. Чинники екологічних наслідків аварії 1986 р. та деякі інші важкі аварії

До Чорнобиля траплялася низка важких ядерних аварій, різних за своїм мірилом і наслідками; інтерес являє порівняльний аналіз з важкою аварією, що трапилась 1957 р. у Windscale (Велика Британія). Ядерною установкою був уран-графітовий реактор з газовим охолодженням, призначений для виробництва плутонію. Під час регламентного відпалу графітової кладки з метою вивільнення вігнеровської енергії з графіту, через неочікуване енергійне його окислення трапився перегрів активної зони, унаслідок чого температура частини твелів досягла 1300 °С і вони розплавилась. Кількість реально розплавленого урану при цьому становила 6 – 8 т [35], і основні продукти поділу було втримано шаром окисів на поверхні урану. На відміну від конструкції РВПК графітова кладка й твели були розташовані горизонтально [36], а фундамент установки мав систему охолодження на випадок аварії. Вміст розплавлених твелів, проте, залишився в графітовій кладці. Оцінка викидів показала, що фракціонування палива при аварії не трапилось, а основна активність викидів була обумовлена короткоіснуючими ізотопами та ^{131}I . Вихід інших продуктів поділу (крім ^{137}Cs) становив значно менше 1 % від напрацьованої кількості. Основною причиною виходу деякої кількості цезію (до 2 %) у навколишнє середовище є обставина, що сполука CsI була значущою хімічною формою викиду йоду в активній фазі аварії [35]. Переважна ж кількість лужноземельних елементів, зокрема стронцій, були сорбовані графітом. Побутові наслідки аварії в основному обмежились кількатижневою забороною вживання молока на навколишніх територіях (50 км). Британці прискіпливо порахували (невелику) ефективну колективну дозу, що отримало населення Британії внаслідок того інциденту; цікаво що доза, отримана населенням Британії через аварію на ЧАЕС, виявилася в півтора рази більшою.

На відміну від описаної аварії при утворенні ЛПВМ трапилось фракціонування палива через його доокислення з наступним розчиненням у силікатах. Цим було зламано такий чинник безпеки, як здатність палива (до певної межі) утримувати довгоіснуючі уламки поділу в своєму об'ємі [37], що є практично останнім запобіжним бар'єром на шляху розповсюдження високорадіоактивних продуктів у випадку важких ядерних аварій. Як відомо [38], у ході аварії $\frac{1}{3}$ всього ^{137}Cs була викинута в навколишнє середовище, з ЛПВМ же випарилось до $\frac{2}{3}$ цезію, що містився в них. Викид інших небезпечних радіонуклідів наразі складний для відповідальних оцінок. Лабораторні ж експерименти показують, що чорні й коричневі ЛПВМ за високих температур стають плинними й летючими: уже при 1500 °С за 10 хв практично весь цезій випаровується з них; останнє додатково свідчить, що реальна температура розповсюдження основних потоків ЛПВМ була значно нижчою, про що йшлося. З огляду на відомий склад ЛПВМ зрозуміло, що основними його складовими, крім власне урану й цирконію, є такі матеріали як серпентиніт, цементний розчин (в основному Ca_2SiO_4 з домішками натрію й заліза), будівельний пісок (SiO_2 з домішками сполук натрію). Можливість безпосереднього контакту цих силікатних матеріалів з оболонками твелів, навіть за важкої аварії, є серйозною конструктивною вадою ядерної установки, яку, вочевидь, елементарно прогавили на етапі її розробки. Отже, наразі маємо...

4. Основні висновки

1. Температура утворення чорних і коричневих ЛПВМ не перевищувала 1200 °С. Уран-цирконієва евтектика за цих умов не утворювалась.

2. Руйнування оболонок твелів шляхом їхнього розчинення в розплавлених силікатах матеріалів конструкції реакторної установки суть початкова стадія й провідний механізм утворення ЛПВМ. Формування ЛПВМ завершилося стадією швидкого доокислення палива в повітрі з наступним розчиненням найвищого окису урану в тому ж силікатному розплаві.

3. Поодинокий твел не міг бути осередком утворення ЛПВМ в умовах цієї аварії. При засипанні ж навіть поодинокі ТВЗ шаром силікату (серпентиніту чи піску) > 0,15 м, створюються температурні умови, достатні для утворення осередку формування ЛПВМ.

4. Висока теплопровідність вологих силікатів на нижніх відмітках унеможливила швидке досягнення температур, достатніх для формування ЛПВМ, через що формування ЛПВМ (чорних і коричневих) потребувало часу на попереднє випаровування вологи, що обумовило однорідність їхнього складу й кольору, а також наявність численних об'ємних порожнин та ультрамікропор, утворених молекулами води, вбудованими в силікатні цикли.

5. Ефективна температура розповсюдження лавових потоків чорних й коричневих ЛПВМ становила 900 ± 50 °С.

6. Поліхромні ЛПВМ складаються з декількох (> 7) неодномоментних у часі лавових струменів, що утворювались локально з поодиноких ТВЗ. Через малу вологість на верхніх відмітках це відбувалось швидко, а поліхромним ЛПВМ не притаманні ані порожнини, ані об'ємна мікропористість.

7. Тяжкість радіоекологічних наслідків аварії обумовлена руйнуванням паливної матриці з наступним фракціонуванням палива при його розчиненні в розплавлених силікатах. Відомим (з вивчення ЛПВМ [4]) наслідком є практично повний вихід з паливної матриці й подальше розчинення в ЛПВМ ізотопів плутонію. Лабораторні спостереження показують, що при $T > 1500$ °С практично весь ^{137}Cs може бути випарений з ЛПВМ за кільканадцять хвилин. Частка викиду цезію в навколишнє середовище (згідно з даними [38]) у цій аварії в десятки разів перевищує таку для іншої відомої ядерної аварії на уран-графітовому реакторі без конфайнмента [35].

8. Можливість безпосереднього контакту силікатних матеріалів з оболонками твелів в умовах важкої аварії є невиправною конструктивною вадою реактора РВПК, через яку ця конструкція не відповідає нормативним вимогам з безпеки, що пред'являються до конструкцій реакторних установок.

СПИСОК ЛІТЕРАТУРИ

1. *Пазухин Э.М.* Лавообразные топливосодержащие массы 4-го блока Чернобыльской АЭС: физико-химические свойства, сценарии образования, влияние на окружающую среду: Дис. ... д-ра техн. наук / МНТЦ «Укрытие» НАН Украины. – Чернобыль, 1999. – 293 с.
2. *Арутюнян Р.В., Большов Л.А., Боровой А.А. и др.* Ядерное топливо в объекте «Укрытие» Чернобыльской АЭС. – М.: Наука, 2010. – 240 с.
3. *Гончар В.В., Жидков А.В.* Динамика высокотемпературного взаимодействия аварийного ядерного топлива с конструкционными материалами РБМК // Проблемы Чернобиля. – 2002. – Вип. 9. – С. 25 – 33.
4. *Жидков А.В.* Топливосодержащие материалы объекта «Укрытие» сегодня: актуальные физические свойства и возможности прогнозирования их состояния // Проблемы Чернобиля. – 2001. – Вип. 7. – С. 23 – 40.
5. *Доллежалъ Н.А., Емельянов И.Я.* Канальный ядерный энергетический реактор. – М.: Атомиздат, 1980. – 208 с.
6. *Бугаенко Л.Т., Кузьмин М.Г., Полак Л.С.* Химия высоких энергий. – М.: Химия, 1988.
7. *Рудя К.Г.* Дослідження процесів розвитку аварії та утворення лавоподібних паливовмісних матеріалів зруйнованого реактора 4-го блока Чернобыльської АЕС: Автореф. дис... канд. техн. наук: 21.06.01 – екологічна безпека / МНТЦ «Укриття» НАН України. – Чернобыль, 2003. – 24 с.

8. *Гремячкин В.М., Дудкин В.А., Рухин В.Б.* Исследование процессов окисления углерода в высокотемпературной печи // Физико-химическая кинетика в газовой динамике. - М.: 2002. - С. 1– 6 .
9. *Лагуненко О.С.* Пошук та дослідження прихованих скупчень паливовмісних матеріалів зруйнованого 4-го блока Чорнобильської АЕС: Автореф. дис.... канд. техн. наук / ПБ АЕС НАН України. – К., 2008. – 24 с.
10. *Фельц А.* Аморфные и стеклообразные неорганические твердые тела / Пер. с нем. – М.: Мир, 1986. – 556 с.
11. *Dzhusov Yu.P., Efanov A.D., Khoruzhii O.V. et al.* The effect of droplet sprinkling on the oxidation kinetics of zirconium cladding in steam // Nuclear engineering and design. – 1999. – Vol. 192, No. 2.
12. *Ballinger R.G., Dobson W.G., Biederman R.R.* Oxidation reaction kinetics of Zircaloy-4 in an unlimited steam environment // Journal of Nuclear Materials. – 1976. – Vol. 62. Iss.2-3. – P. 213 – 220.
13. *Исследование* некоторых физических свойств лавообразных топливосодержащих материалов объекта «Укрытие»: Отчет о НИР (промежуточный). Книга 2 / МНТЦ «Укрытие» НАН Украины; Руководитель А. В. Жидков. – Арх. № 3650. – Чернобыль, 1997. – 46 с.
14. *Лагуненко О.С.* Пошук та дослідження прихованих скупчень паливовмісних матеріалів зруйнованого 4-го блока Чорнобильської АЕС: Дис... канд. техн. наук / ПБ АЕС НАН України. – К., 2008. – 148 с.
15. *Черкашов Ю.М., Новосельский О.Ю., Чечеров К.П.* Исследование развития процессов при аварии на Чернобыльской АЭС в 1986 году // Атомная энергия. – 2006. – Т. 100, вып. 4. – С. 243 – 258.
16. *Чечеров К.П.* Немирный атом Чернобыля // Человек. – 2006. - № 6; 2007. - № 1.
17. *Богатов С.А., Боровой А.А., Лагуненко А.С. и др.* Образование и растекание чернобыльских лав // Радиохимия. – 2008. – Т. 50, № 6. – С. 565 – 568.
18. *Определение* основных параметров высокотемпературного взаимодействия ядерного топлива с лавообразными топливосодержащими материалами объекта «Укрытие»: (Звіт про НДР) / МНТЦ «Укриття» НАН України; Керівник О. В. Жидков. – № ДР 0101U002568 – Инв. № 3832. – Чернобыль, 2001.
19. *Основные* экспериментальные результаты испытательной программы CORA / П. Хофман, З. Хаген, Г. Шанц и др.: Пер. с англ. // Атомная техника за рубежом. – 1995. – № 4. – С. 12 – 20.
20. *Wang C.H., Dhir V.K.* An experimental investigation of multidimensional quenching of a simulated core debris bed // Nuclear Engineering and Design. – 1988. – 110. – P. 61 – 72.
21. *Физические* величины: Справ. / Под ред. И. С. Григорьева, Е. З. Мейлихова. - М.: Энергоатомиздат, 1991.
22. *Мархольц Т. П., Юдин Б. Ф., Воронин Н. И.* О взаимодействии тугоплавких металлов с глиноземом и кремнеземом // Химия высокотемпературных материалов: Тр. II Всесоюз. сов. по химии окислов при высоких температурах (Л., 1965). – Л.: Наука, 1967. – Т. 14. – С. 205–208.
23. *Доступная* пористость и молекулярно-ситовые свойства лавообразных топливосодержащих материалов объекта «Укрытие»: (Звіт про НДР) / МНТЦ «Укриття» НАН України; Керівник О. В. Жидков. – № ДР 0195U003875 – Инв. № 3723. – Чернобыль, 1998.
24. *Данилевич А.Г., Чемерский Г.Ф.* Окисление облученного топлива РБМК в воздушной среде // Проблемы безопасности атомных электростанций і Чернобиля. – 2004. – Вип. 1. – С. 136–142.
25. *Ракитская Е.М., Панов А.С.* Поведение диоксида урана в различных газовых средах // Атомная энергия. – 2000. – Т. 89, вып. 5. – С. 372–376.
26. *Пазухин Э. М., Краснов В. А.* По поводу «грубого инженерного просчета», допущенного при проектировании реактора РБМК-1000, а также необходимости «существенной корректировки сценария протекания активной фазы аварии 1986 г.» // Проблемы Чернобиля. – 2004. – Вип. 15. – С. 93–102.
27. *Энциклопедия* неорганических материалов / Отв. ред. И. М. Федорченко. – К., 1977. – Т. 1. – 840 с.
28. *Преображенский И. А., Саркисян С. Г.* Минералы осадочных пород. – М.: Гостоптехиздат, 1954.
29. *Шевякова Э.П., Зеленский В.Ф., Неклюдов И.М. и др.* Кристаллизация стекла под влиянием электронного облучения и газостатирования // ВАНТ. Сер. ФРП и РМ. – 1994. – № 1. – С. 65–69.
30. *Шевякова Э.П., Лифшиц Е.В., Березняк Е.П.* Влияние электронного облучения на структуру и состав слоистых силикатов // Там же. – С. 70 – 73.
31. *Энциклопедия* неорганических материалов / Отв. ред. И. М. Федорченко – К., 1977. – Т. 2. – 815 с.
32. *Жидков О.В.* Електронні процеси в опромінених діелектриках та властивості композицій, що містять ядерне паливо: Дис. ... д-ра фіз.-мат. наук / ПБ АЕС НАНУ. – Чернобыль, 2006. – 442 с.

33. Яворский Б. М., Детлаф А. А. Справочник по физике. – М.: Наука, 1965. – 848 с.
34. Нуритдинов И., Машарипов К. Ю. Изменение вязкости стеклообразных материалов, облученных при высокой температуре // Атомная энергия. – 1999. – Т. 87, вып. 2. – С. 161–164.
35. Chamberlain A.C. Radioactive Aerosols // Series 3 – Cambridge University Press, 2004.
36. Особисте обстеження автором активної зони однотипного реактора в Harwell (декомісія). – 2005.
37. Ластман Б. Радиационные явления в двуокиси урана / Пер. с англ. - М.: Атомиздат, 1964. – 296 с.
38. Боровой А.А Выброс ядерного топлива и продуктов деления из реактора 4-го блока ЧАЭС при аварии. – Чернобыль, 2000. – 14 с. – (Препр./ НАН Украины. МНТЦ «Укрытие»; 00-10).

25 ЛЕТ ЭВОЛЮЦИИ ПРЕДСТАВЛЕНИЙ О ТОПЛИВОСОДЕРЖАЩИХ МАТЕРИАЛАХ ОБЪЕКТА «УКРЫТИЕ»: СЦЕНАРИИ ОБРАЗОВАНИЯ И ФИЗИЧЕСКИЕ СООБРАЖЕНИЯ

А. В. Жидков

Представлен обзор и критический анализ концепций разных лет, в котором идентифицируются основные физические факторы протекания активной фазы аварии 1986 г. на ЧАЭС, обусловившие образование лавообразных топливосодержащих материалов (ЛТСМ) и уникально тяжелые радиоэкологические последствия в сравнении с другими известными тяжелыми ядерными авариями. Статья содержит новые экспериментальные и расчетно-оценочные материалы, на основании которых, по мнению автора, достигается непротиворечивое физическое объяснение как механизмов образования и распространения ЛТСМ, так и различия в свойствах ЛТСМ разных видов.

Ключевые слова: тяжелая ядерная авария, облученное ядерное топливо, топливосодержащие материалы.

25 YEAR-EVOLUTION OF “SHELTER” OBJECT FUEL-CONTAINING MATERIALS COMPREHENSION: LFCM FORMATION SCENARIOS AND PHYSICAL CONSIDERATIONS

O. V. Zhydkov

25 years passed since the known heavy nuclear accident held on Chornobyl NPP facility in 1986. The paper contains critical review analysis of known concepts purposed on identification of physical mechanisms responsible for lava-like fuel-containing materials (LFCM) formation and includes a comprehensive analysis of existing data, involving new author's experimental data on both a quantitative accounting of high-temperature interaction of overheated nuclear fuel with design materials of channel reactor construction and LFCM fluidity on temperature dependence data. As a result, it was established, that long-year wide-disseminated concepts based on the picture of preliminary uranium-zirconium eutectic formation in active stage of accident are fundamentally flawed because of extremely low uranium dioxide with zirconium chemical interaction intensity, even at high temperatures. Leading chemical-physical mechanism responsible for LFCM formation was dissolving of zirconium-made fuel envelopes in melted silicates became feasible because of such materials in channel reactor construction design as serpentine and sand filling. The temperature level just below 1200 °C turned out to be sufficient for black and brown LFCM formation; an effective temperature for main lava streams dissemination was estimated as 900 ± 50 °C as well. High intensity of uranium fuel with melted silicates interaction (when in air atmosphere, even at moderate temperatures) was a key moment, which led to irradiated fuel fractioning accompanied with further wide dissemination of its high-radioactive components into the environment. The heavy radio-ecological consequences of the accident, comparing with other known nuclear accidents, are mainly caused by crucial faults in the USSR channel reactor design. The non-contradictive concept, explaining the main features of processes, which dominated in the active stage of accident, is also discovered.

Keywords: heavy nuclear accident, irradiated nuclear fuel, fuel-containing materials.

Надійшла до редакції 21.03.11