

**В. П. Бадовский, А. А. Ключников, А. Э. Меленевский, Ю. В. Морозов,  
И. А. Ушаков, В. Н. Щербин**

*Институт проблем безопасности АЭС НАН Украины, ул., Кирова, 36а, Чернобыль, 07270, Украина*

### **ГЕНЕРАЦИЯ ТОПЛИВОСОДЕРЖАЩЕЙ ПЫЛИ ЛАВООБРАЗНЫМИ МАТЕРИАЛАМИ ОБЪЕКТА «УКРЫТИЕ»**

В период с сентября 2011 по октябрь 2012 г. проведены измерения радиоактивности пыли с альфа-активными радионуклидами (ААР), накопленной на участке  $1020 \text{ см}^2$  поверхности лавообразных топливосодержащих материалов (ЛТСМ) помещения 304/3 объекта «Укрытие» за отрезки времени от 1 до 288 сут. Средняя скорость генерации альфа-активности радионуклидов пыли составила около  $1,1 \cdot 10^{-3} \text{ Бк}/(\text{см}^2 \cdot \text{сут})$  или  $3,9 \text{ кБк}/(\text{м}^2 \cdot \text{год})$  (по данным накопления 670 сут). Для образования годового количества ААР в пыль должен был превратиться наружный слой выделенного участка ЛТСМ толщиной около 2 мкм. В приближении бимодального логнормального распределения найдены значения медианных аэродинамических диаметров для мелкодисперсной части регистрировавшихся частиц.

*Ключевые слова:* генерация радиоактивной пыли; топливные аэрозоли; поверхность ЛТСМ; деструкция ЛТСМ

#### **Введение**

Вопрос скорости разрушения лавообразных топливосодержащих материалов (ЛТСМ) имеет, прежде всего, практическое значение, так как в значительной степени определяет стратегию обращения с ними и степень радиационной опасности при этом обращении. Первые, и по сути единственные на протяжении длительного периода, экспериментальные результаты по оценке «эрозии топливосодержащих масс» дали обнадеживающе низкие значения скорости их разрушения [1, 2]. Примерно через десятилетие появился цикл работ со значительно худшими прогнозами относительно стабильности ЛТСМ [3, 4].

Настоящее исследование предпринято для частичного устранения указанного пробела. Результаты получены в ходе цикла измерений, проведенных в период с 19 сентября 2011 г. по 16 октября 2012 г. Стимулом к их выполнению послужили частично отраженные в публикациях [5, 6] данные предварительных исследований (декабрь 2009 и 2010 г.), указывавшие на большое количество радиоактивной пыли на открытой поверхности ЛТСМ помещения 304/3.

#### **Оборудование и методика измерений**

Основная часть оборудования, использовавшегося при отборе проб для оценки концентрации и дисперсного состава содержащей альфа-активные радионуклиды (ААР) пыли, генерировавшейся поверхностью ЛТСМ помещения 304/3 объекта «Укрытие», располагалась в помещении 318/2 (рис. 1). В состав его входили узлы системы для подъема в воздух пыли с выделенного участка поверхности ЛТСМ и системы подготовки образцов-фильтров с осажденной на них заданной частью указанной пыли. Анализ образцов выполнялся в лабораторных условиях в Чернобыле. Подъем пыли осуществлялся с помощью разработанного авторами устройства отрыва и подъема пыли (УОПП), принцип действия которого основан на комбинации пневматического и механического способов отрыва пыли, удерживаемой на поверхности ЛТСМ силами адгезии [7]. Устройство приводилось в действие потоком воздуха, подводившимся через скважину В12.76 от нагнетателя, состоявшего из двух турбин типа STIHL BR 200-1 (см. рис. 1) производительностью до  $0,4 \text{ м}^3/\text{мин}$ , создававших в системе избыточное давление  $0,05 \text{ МПа}$ .

Расчетная скорость потока воздуха на выходе из сопел УОПП составляла около  $41 \text{ м/с}$ . Согласно работе [7], при такой скорости минимальный диаметр частиц, способных оторваться от поверхности ЛТСМ, равен  $0,2 \text{ мкм}$ , а максимальный - более  $2,5 \text{ мм}$ . (Плотность материала частиц с ААР (топливных частиц) полагалась равной принятой плотности материала ЛТСМ в помещении 304/3 -  $2,8 \text{ г}/\text{см}^3$ .)

Отбор проб воздуха, содержавшего часть поднятой пыли, производился также через указанную выше скважину. Входное отверстие воздуховода системы отбора запыленного воздуха (СОЗВ)

© В. П. Бадовский, А. А. Ключников, А. Э. Меленевский,  
Ю. В. Морозов, И. А. Ушаков, В. Н. Щербин, 2013

располагалось в помещении 304/3 над конусной направляющей, формировавшей поднимающийся поток запыленного воздуха с очищавшейся части поверхности ЛТСМ.

На пути отобранной части запыленного воздушного потока в помещении 318/2 поочередно устанавливался один фильтр из имеющегося набора фильтров с двумя слоями ткани Петрянова. В



Рис. 1. Оборудование для отбора проб пыли: 1 - турбины УОПП; 2 - подающая кассета; 3 - приемная кассета; 4 - побудитель ВИ.

качестве входного слоя использовалась ткань ФПП-70-03, характеристики которой исследовались нами ранее [8]. Согласно им, при имевшейся скорости прохождения воздушным потоком этой ткани (около 2 м/с), в ней оседало примерно 50 % аэрозолей с аэродинамическим диаметром (АД) 0,8 мкм. (Для простоты изложения эту величину АД в дальнейшем будем условно называть граничной для аэрозолей, задерживаемых в ткани ФПП-70-03.) В качестве второго слоя использовалась ткань ФПП-15-1,5, обеспечивавшая полное торможение аэрозолей прошедших первый слой.

В герметично уплотняемое рабочее положение фильтры подавались из кассеты 2, а после аспирации складировались в кассету 3 (см. рис. 1). Для аспирации запыленного воздуха использовался побудитель виртуального импактора (ВИ) 4 (см. рис. 1) измерительной системы АСИМА [8]. Скорость откачки проходившей через фильтр части запыленного воздуха составляла 0,5 м<sup>3</sup>/мин.

Радиоактивность накопившейся на фильтрах пыли оценивалась отдельно для каждого слоя сцинтилляционными детекторами альфа-частиц системы АСИМА.

В ходе стендовых испытаний УОПП было установлено, что при подъеме с модельной шероховатой горизонтальной поверхности цементной пыли с АД частиц 5 мкм загрязненная пылью часть объема воздушной среды имела форму, близкую к полусфере с радиусом около 1,2 м. Площадь постепенно очищавшейся от пыли поверхности составляла 1020 см<sup>2</sup>. Увеличение толщины исходного слоя цементной пыли, вплоть до 2 – 3 мм, существенно не влияло на размеры и форму очищавшейся поверхности, а время, затрачиваемое на ее очистку, росло медленнее толщины снимавшегося слоя. Переход от горизонтально расположенной подстилающей поверхности к наклонной приводил к уменьшению площади и изменению формы очищавшегося участка, не влияя заметно на размеры заполненной пылью части объема воздуха.

Для уменьшения ошибки при оценке величины альфа-активности радионуклидов пыли (ААРП) в условиях стенда были отработаны меры, обеспечившие вовлечение в отбираемый объем пробы максимально возможной части воздуха, участвовавшего в процессе ее сдува. С этой целью производительность СОЗВ выбрана превышающей производительность УОПП и побудитель СОЗВ вступал в работу на 3 с раньше турбин УОПП, а выключался на 3 с позже. В условиях стенда это вело к трансформации загрязненной пылью части объема воздушной среды из полусферы в направленный, с минимальными потерями, поток загрязненного пылью воздуха от сопел УОПП к входному отверстию СОЗВ.

В реальных условиях большое количество проходившей через фильтр пыли влияло на его осадительные характеристики. Ослабление влияния достигалось тем, что в зависимости от выбранного времени накопления пыли (режима пролонгирования) для ее осаждения использовались 2 (для одно- и шести-суточных накоплений) или 3 – 5 (для 27, 55 и 188 сут) последовательно аспирировавшихся фильтров. (Экспозицией 288-суточного накопления настоящая работа начиналась и, как позднее выяснилось, использование в ней 5 фильтров оказалось недостаточным.)

В каждом измерительном цикле рассмотренная последовательность аспираций завершалась продувом двух дополнительных фильтров – первого через 1 мин после окончания работы УОПП и второго – через 20 мин после ее завершения. Отношение зарегистрированной ААРП на заднем слое первого из этих фильтров к аналогичной величине на ранее аспирировавшемся фильтре служило ин-

дикатором эффективности захвата пыли в СОЗВ. Практически величина его не превышала 0,04 и являлась критерием корректности захвата поднятой пыли. В существовавших условиях время аспирации каждого из фильтров составляло 3 мин. Смена фильтра занимала 1 мин.

В ходе работы через сутки после завершения предыдущего пролонгированного цикла осаждения проводили обязательные измерения степени запыленности выделенной площадки. Этими измерениями, перед проведением очередного пролонгированного цикла, контролировалось отсутствие на площадке значительных количеств не удаленных ААР пылевых загрязнений от предшествовавшего цикла или от неуправляемого оседания пыли.

Для получения информации о пылегенерирующих возможностях различных по составу ЛТСМ в работе также проведены сравнительные измерения концентрации и дисперсного состава радиоактивных аэрозолей. Измерения проводились в двух помещениях аварийного блока: 304/3 (место начала растекания горизонтального потока ЛТСМ) и 210/5 (одно из смежных помещений парораспределительного коридора – места нахождения основной массы ЛТСМ вертикального потока). Отбор проб воздуха из помещения 210/5 осуществлялся через скважину Ю9Г с помощью устройства отбора проб АСИМА по применявшейся для помещения 304/3 методике, описанной в работе [5].

### Результаты измерений и их обсуждение

На рис. 2 в качестве примеров представлены распределения по времени найденных суммарных ААРП, собиравшейся на обоих слоях фильтров в измерительных циклах различной длительности. Видно, что высокая производительность использовавшегося УОПП позволила в ходе 15-минутной аспирации на 5 фильтров очистить выделенный участок ЛТСМ от пыли, накапливавшейся 188 сут.

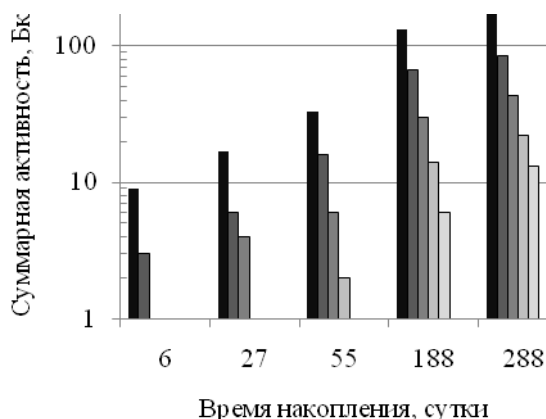


Рис. 2. Суммарная ААРП при различных временах ее накопления в наборе из 2 - 5 фильтров.

Аналогичная тенденция спада ААРП, осевшей на набор последовательно аспирированных фильтров одного цикла, характерна и для других сроков накопления. Исключение составил первый из исследовавшихся интервалов (с 9 декабря 2010 г. по 19 сентября 2011 г.), для которого был характерен более медленный спад измеренных активностей на последних фильтрах (см. рис. 2, 188 сут). Доказательством незавершенности процесса сдува радиоактивной пыли в этой экспозиции явилась и наблюдавшаяся завышенная ААРП в фильтре последовавшего за ним суточного измерительного цикла (табл. 1).

Таблица 1. Суммарная ААРП в фильтрах для односуточных экспозиций

Дата отбора	2011 г.					2012 г.					
	19.09	26.09	21.11	28.11	26.12	20.02	27.02	26.03	02.04	08.10	15.10
Активность, Бк	14,35	1,45	1,4	1,7	1,65	1,05	1,75	1,8	0,4	2,05	2,15

В табл. 1 представлены найденные значения суммарной ААРП, осевшей на обоих слоях фильтров в проведенных измерительных циклах с суточной экспозицией. При этой экспозиции отношение ААРП из заднего слоя фильтра к ААРП из переднего слоя мало изменялось от цикла к циклу и среднее значение его составило  $0,082 \pm 0,009$ .

Как видно из табл. 1, величины суммарной односуточной ААРП были незначительными. Большинство из них проявили тенденцию роста во времени. Исключение составили измерения от 19 сентября 2011 г. (после незавершенного процесса сдува) и от 2 апреля 2012 г. Вероятной причиной последнего стало присутствие во время измерения на поверхности ЛТСМ конденсационной влаги. Конденсация возникла из-за наблюдавшегося в тот период существенного повышения температуры наружного воздуха.

Коэффициент корреляции во временной зависимости найденных суммарных односуточных альфа-активностей во всем исследованном временном диапазоне от 19 сентября 2011 г. до 16 октября 2012 г. составил 0,54, что свидетельствует о существовании в этом массиве помимо общей тенденции роста активности со временем еще и искажающих факторов, проявлявших себя по-разному в различные периоды исследованного временного интервала.

Существенно лучший результат получен после разделения всего массива данных на два под-массива, охвативших близкие по продолжительности временные интервалы, различавшиеся по объективно устанавливавшимся внешним условиям. Первым из них явился интервал 20 сентября 2011 г. – 27 марта 2012 г., для которого характерными были слабо влиявшие на состояние поверхности ЛТСМ и свойства отрыва частиц пыли от поверхности малые изменения влажности и температуры в помещении 304/3. Вторым оказался промежуток времени 3 апреля 2012 г. – 16 октября 2012 г., начавшийся со 100 %-ной влажности в помещении 304/3 и завершившийся восстановлением условий, близких к типичным для предыдущего интервала. Для первого из интервалов получено большое значение коэффициента корреляции (0,91), а для второго выполнена линейная экстраполяция между имевшимися данными трех измерений. Коэффициент при линейном члене в уравнении регрессии для первого интервала оказался почти в 1,6 раза меньше эквивалентной ему величины для второго.

Большее значение последнего указывает, что начиная со времени обводнения поверхности ЛТСМ конденсационной влагой и вплоть до ее высыхания (или в некотором промежутке времени внутри его) сложились условия, приведшие к росту интенсивности образования содержащей топливо пыли.

В циклах, отвечавших большим временам пролонгирования, ААРП, собиравшаяся на фильтры, росла как в начальные минуты отборов, так и в последующем, но, как видно из рис. 2, максимальный прирост приходился на первые трехминутные интервалы каждого из циклов. (В цикле 27 марта 2012 г.– 2 апреля 2012 г. выявилось нарушение этой закономерности, связанное, вероятно, с началом процесса оседания влаги на поверхность ЛТСМ.)

В табл. 2 представлены найденные суммарные значения ААРП, осевшей на фильтры в измерительных циклах со временем накопления пыли более суток (столбец 2). За ними следуют рассчитанные средние суточные загрязнения частицами с ААР для каждого из этих циклов (столбец 3). Расчет производился с использованием предположения, что суммарная ААРП, накопившаяся в первые сутки того или иного пролонгированного цикла измерений, не отличалась от суммарной ААРП в односуточном цикле, предшествовавшем рассматриваемому пролонгированному. Разность между суммарной ААРП соответствующего пролонгированного цикла (столбец 2) и предшествовавшего ему суточного цикла нормировалась на длительность цикла. Полученные средние значения активности альфа-радионуклидов суточных загрязнений для каждого из пролонгированных циклов представлены в столбце 3. При таком подходе эти значения не содержали искажений за счет ААРП, оставшейся от предыдущего цикла или успевшей осесть за сутки после завершения предыдущего цикла.

Оценить относительный вклад указанных составляющих можно на основании данных столбца 4 табл. 2. В нем представлены отношения активностей из столбца 3 к экстраполированным к тем же временам значениям ААРП в суточных циклах. Экстраполяция для первого интервала производилась с помощью уравнения регрессии, а для второго – с использованием найденного ранее коэффициента линейной экстраполяции.

Таблица 2. Суммарная ААРП в фильтрах пролонгированных экспозиций

Дата начала экспозиции, продолжительность, сут	Общая активность, Бк	Средняя активность (Аср), Бк/сут	Отношение Аср/Аодносут
09.12.10; 288	238	0,82	---
20.09.11; 6	4,75	0,95	0,66
27.09.11; 55	52,4	0,97	0,69
22.11.11; 6	5,15	1,03	0,61
29.11.11; 27	27,3	1,05	0,64
27.12.11; 55	59,4	1,1	0,59
21.02.12; 6	5,65	1,13	0,65
28.02.12; 27	29,9	1,15	0,64
27.03.12; 6	2,25	0,45	---
03.04.12; 188	256,2	1,37	0,67
09.10.12; 6	8	1,6	0,74

Среднее значение этого отношения составило  $0,66 \pm 0,05$ . Величина его указывает на соизмеримый с эффектом искажающий вклад погрешностей в измеряемые суммарные активности запыленностей, накапливавшихся в суточных циклах. Тем не менее на фоне этого вклада проявилась тенденция роста во времени измерявшихся суммарных ААРП для суточных запыленностей. Объяснить это можно ростом количества пыли, образовывавшейся в единицу времени на выделенном участке поверхности ЛТСМ. Используя данные табл. 1 и 2, находим, что суммарная ААРП, образовавшаяся на выделенном участке поверхности ЛТСМ за периоды 9 декабря 2010 г. – 19 сентября 2011 г. и 20 сентября 2011 г. – 16 октября 2012 г., составила соответственно 252 и 462 Бк (из-за ранее отмеченного неполного сбора пыли первый из результатов, вероятно, несколько занижен). Около 75 % радиоактивности во втором случае пришлось на период после 27 марта 2012 г.

При площади выделенного горизонтального участка поверхности ЛТСМ  $1020 \text{ см}^2$ , плотности ЛТСМ  $2,8 \text{ г/см}^3$  и 4 %-ном содержании в них усредненного по выгоранию аварийного ядерного топлива с 26-летней выдержкой найденная величина ААРП могла образоваться из слоя ЛТСМ толщиной соответственно 0,9 и 1,5 мкм (при наклонном расположении выделенного участка толщина слоя окажется больше).

Средняя по всему периоду настоящих исследований (670 сут) альфа-активность радионуклидов в возникавшей пыли составила около  $1,1 \cdot 10^{-3} \text{ Бк/(см}^2 \cdot \text{сут)}$  или  $3,9 \text{ кБк/(м}^2 \cdot \text{год)}$ .

Оцененная величина ошибки полученных результатов может достигать 50 %. Естественно, нельзя говорить и о представительности результатов, характеризующих только выделенный участок поверхности черной ЛТСМ в заданном помещении.

Для сравнения укажем, что в работе [9] по усредненным данным для различных ЛТСМ пылеобразование с ААР оценивается всего лишь в  $35 \text{ Бк/(м}^2 \cdot \text{год)}$ , а по отмечавшейся работе [3] в  $5 - 15 \text{ Бк/(см}^2 \cdot \text{сут)}$ . При имеющихся столь противоречивых результатах найденные в настоящей работе значения, к сожалению, не могут указать на ошибочность только одного из них, так как примерно одинаково удалены от обоих. Единственное, на что можно указать, не вдаваясь в детали, так это на методическую ошибку авторов работы [1]: при использованной ими скорости обдува фрагмента ЛТСМ имел место не полный отрыв пыли от образца, что, безусловно, привело к некоторой недооценке ими уровня пылеобразования. Кроме того, за время, прошедшее между измерениями авторов [1] и настоящими исследованиями, вероятно, могли несколько измениться и пылегенерирующие свойства ЛТСМ. Следуя логике работы [9] и цитируя ее (с. 176), укажем, что на основании полученных нами результатов, суммарное годовое пылеобразование в объекте «Укрытие» в настоящее время должно составлять не менее  $0,9 \cdot 10^{14} \text{ Бк}$  по альфа-активности и ежегодно в пыль должно превращаться до полутонны топлива.

Оставаясь на высказанной ранее в работе [5] позиции, авторы считают, что среди причин диспергирования материала ЛТСМ самой существенной является причина, предложенная в работе [10]. Связана она с реализацией разрывных напряжений, возникающих при объемном расширении входящего в состав лавы аварийного топлива -  $\text{UO}_2$ . За счет кислорода воздуха, диффундировавшего к  $\text{UO}_2$ , может происходить его постепенное доокисление до высших оксидов  $\text{U}_3\text{O}_7$  и  $\text{U}_3\text{O}_8$  с итоговым уменьшением плотности от  $10 - 11$  до  $7 - 8,4 \text{ г/см}^3$  и соответствующим увеличением занимаемого объема почти на 30 %.

Существенно заниженное значение найденной нами толщины диспергированного за год слоя ЛТСМ (по сравнению с предсказывавшимся в [10]) частично может быть объяснено использованным в теоретических расчетах приближением равномерного распределения  $\text{UO}_2$  в лаве. По современным представлениям [9], более 60 % его сосредоточено в микровключениях черной лавы, составляющих только 10 % ее массы. С другой стороны, если учесть перспективу освобождения от воды капиллярной структуры ЛТСМ после их высыхания в условиях нового конфайнмента, то возникшая в результате этого существенная интенсификация процесса доокисления  $\text{UO}_2$  в лаве значительно повысит и найденную нами интенсивность пылеобразования.

Перейдем теперь к вопросу о размерах генерировавшихся частиц пыли. Деформации растягивающего напряжения в участках ЛТСМ, «разбухших» при доокислении  $\text{UO}_2$  реализуются путем упруго-хрупких отрывов. Спектр размеров возникающих при этом частиц (фрагментов) описывается локальным бимодальным законом [11]. Асимптотически он переходит в логнормальное распределение для мелких частиц и распределение Розина – Раммлера для крупных. Так как реализация упруго-хрупкого отрыва сопровождается снятием существовавших до этого на данном участке напряжений [12], то следовало бы ожидать, что указанные распределения должны характеризовать и распределение частиц по размерам, полученное в настоящей работе.

Строка 2 табл. 3 содержит найденные средние значения отношения измеренных ААРП, осевших на заднем и переднем слоях фильтров в пролонгированных циклах измерений.

**Таблица 3. Средние значения отношений ААРП в слоях фильтров для различных сроков накопления пыли**

Время накопления пыли, сут	6	27	55	188
$\Sigma_i (A_{i \text{ зад}}/A_{i \text{ пер}})$	0,083	0,11	0,12	0,2
$A_{1\text{пер}}/A_{2\text{пер}}$	0,13	0,11	0,1	0,08

Характерным для них оказалось постепенное, по мере удлинения циклов накопления пыли, увеличение этого отношения, указывающее на появление в более длинных циклах все большей доли частиц пыли с ААР, имевших АД меньше 0,8 мкм. Источником ее могли стать «разламывавшиеся» уже после откола от поверхности более крупные частицы, содержавшие ААР.

Предположение о постепенно «разламывавшихся» после откола более крупных частицах подтверждают и данные строки 3 табл. 3. Здесь представлены средние значения найденных относительных содержаний более крупных частиц в циклах накопления пыли с различными временами для пыли, собиравшейся на передние слои обоих дополнительных фильтров.

Процедуру выделения вклада крупных частиц в данном случае можно представить как нахождение относительного значения разностной величины ААРП, осевших на передний слой первого (после завершения процесса подъема пыли) фильтра и аналогичной активности частиц с ААР на втором (после завершения процесса подъема пыли) фильтре. Согласно расчету [13], к 20-й минуте после аспирации первого фильтра доля оставшихся в воздухе частиц с АД 20 мкм не превысит 20 % их исходного количества, еще меньше останется более крупных частиц.

Как видно из табл. 3, максимальное относительное содержание крупных частиц отвечает шестисуточным циклам оседания. (Среди исследованных они содержали наибольшую долю самых «свежеоторванных» частиц большого размера.) Для циклов с более пролонгированным накоплением содержание крупных частиц достоверно уменьшалось. За 182 сут относительное количество их уменьшилось примерно в 1,7 раза. Таким образом, еще на протяжении продолжительного времени, оторванные от лавы крупные частицы служили потенциальным источником мелких частиц, содержавших ААР.

Выявившийся эффект пролонгированного развала крупных частиц следует, вероятно, связывать с гетерогенной природой ЛТСМ, приводившей к оголению на поверхности сколов слабосвязанных с силикатной матрицей более твердых образований - мелкодисперсных частиц отожженного аварийного топлива. (В качестве фонового при этом, безусловно, протекал и приводящий к логнормальному распределению процесс, при котором вероятность дробления любой из частиц не зависит от ее размеров, истории и присутствия соседних частиц [11].)

Подчеркнем, что отмеченные закономерности выявлены у сравнительно «молодых» (до 288 сут) продуктов диспергирования поверхности ЛТСМ. Согласно нынешним представлениям [5], с течением времени на поверхности возникших в ходе аварии ЛТСМ сформировался слой диспергированных частиц, внешнее положение в котором заняли частицы, ранее других оторвавшиеся от поверхности, успевшие ко времени проведения настоящих исследований несколько измельчиться и войти в аутогезионный контакт с соседними частицами. (Сказанное не относится к выделенному участку поверхности ЛТСМ, с которого, как следует из работы [5], еще до выполнения настоящего исследования проводился тщательный двукратный, с годичным интервалом, сдув пыли.)

Подтверждением имевшего место измельчения находившихся на поверхности ЛТСМ частиц пыли, содержавших в своем составе ААР, явились результаты измерения

концентрации и дисперсного состава радиоактивных аэрозолей в воздушном пространстве указанных ранее помещений. На рис. 3 представлены в относительных единицах усредненные по проведенным в период с октября 2011 г. по март 2012 г. семи измерениям распределения по АД аэрозолей с ААР в помещении 304/3. Сравнение настоящего распределения с усредненным распределением, полученным для этого же помещения на основании работ [5, 6], демонстрирует тенденцию к уменьшению за время, прошедшее между двумя периодами измерений, расчетных средних размеров аэрозолей с ААР (изображены стрелками на рис. 3). Аналогично работе [5] оптимальное описание распределения по размерам аэрозолей с ААР требует бимодальности со значениями медианных АД

3,2 и 0,53 мкм и несколько большим (на уровне 6 %) парциальным вкладом мелкодисперсной фракции. Возможным источником их могли быть отмеченные выше частицы отожженного в окислительной среде аварийного топлива [14].

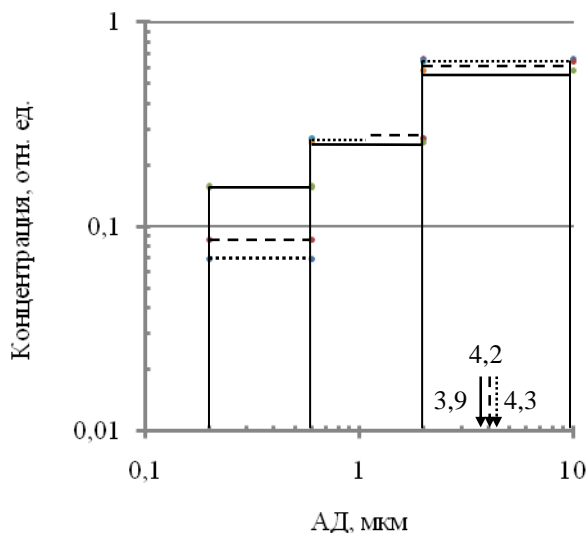


Рис. 3. Распределение аэрозолей по группам размеров: ..... - пом. 304/3 2010 г.; - - - - пом. 304/3 2012 г.; — - пом. 210/5 2012 г. Стрелками указаны положения рассчитанных средних АД аэрозолей и их значения.

большой площадью открытой поверхности ЛТСМ в помещении 304/3, обеспечившей свободный подъем в воздух большому количеству менее активной пыли.

Процесс деструкции ЛТСМ оказался близким для различающихся по содержанию топлива лав. Так как эффективная теплоизоляция парораспределительного коридора существенно ограничивала проявление конденсационных явлений в помещениях 210/5 - 210/7, то продолжительность покрытия ЛТСМ конденсационной влагой нельзя считать определяющим фактором интенсификации разрушения. Более существенен, вероятно, переходной процесс ее высыхания, протекавший идентично в исследованных помещениях.

В связи с этим трудно поддается объяснению обнаруженная в работе [15] высокая (на уровне  $PC^{ingal}$ ) объемная концентрация аэрозолей с ААР в помещении 012/7, содержащем небольшую «кучу» ЛТСМ, защищенных к тому же слоем покрытия ЭКОР, специально разработанного для целей изоляции радиоактивной пыли.

## Выводы

В ходе выполнения настоящей работы создано оборудование, позволившее впервые в условиях объекта «Укрытие» измерить ААР пыли, накопившейся на выделенном участке поверхности ЛТСМ помещения 304/3. На основании полученных результатов можно сделать следующие выводы.

1. Величина суммарной односуточной ААРП, накапливавшейся на выделенном участке поверхности ЛТСМ, проявила тенденцию роста со временем. За период с 19 сентября 2011 г. по 16 октября 2012 г. она выросла примерно на 30 %. Большая скорость пылеобразования отвечает периоду от начала обводнения поверхности ЛТСМ конденсационной влагой и до ее высыхания.

2. Суммарная ААРП, образовавшаяся на выделенном участке поверхности ЛТСМ за периоды 9 декабря 2010 г. – 19 сентября 2011 г. и 20 сентября 2011 г. – 16 октября 2012 г., составила 252 и 462 Бк соответственно. В предположении равномерного разрушения наружного слоя ЛТСМ за это время в пыль должен был превратиться слой толщиной 0,9 и 1,5 мкм соответственно.

3. Усредненная по всему периоду настоящих исследований (670 сут) ААР в возникшей пыли составила около  $1,1 \cdot 10^{-3}$  Бк/(см<sup>2</sup>·сут) (это в  $10^4$  раз меньше, чем у авторов [3, 4]) или 3,9 кБк/(м<sup>2</sup>·год) (что в  $10^2$  раз больше, чем у авторов [9]).

4. В исследованном диапазоне времени накопления пыли относительная концентрация мелких (АД менее 0,8 мкм) частиц с ААР росла с увеличением времени накопления пыли, а крупных частиц с ААР - падала. В 188-суточном цикле накопления по сравнению с шестисуточным она соответствен-

но выросла в 2,4 раза и уменьшилась в 1,7 раза. Вероятная причина - пролонгированное отделение мелкодисперсных частиц от поверхности скола крупных фрагментов аварийного топлива.

5. Аэрозоли с ААР помещений 304/3 и 210/5 имели близкие значения средних размеров, но различались относительным содержанием самой мелкой компоненты. Для описания распределения их по размерам необходимо использовать бимодальное логнормальное распределение с парциальным вкладом мелкой компоненты на уровне 6 и 13 % соответственно. У аэрозолей с ААР помещения 304/3 проявляется процесс продолжающегося измельчения.

Завершая настоящее рассмотрение, укажем на основной практический вывод из работы. Освобождение от воды капиллярной структуры ЛТСМ после их высыхания в условиях нового конфайнмента приведет к существенной интенсификации процесса доокисления  $UO_2$  в лаве и, как следствие, к значительному повышению скорости пылеобразования (несколько тонн пыли с ААР в год).

Авторы считают своим приятным долгом выразить благодарность сотрудникам ЧАЭС А. В. Дмитриенко и С. В. Сухоставскому за содействие в проведении работы.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Богатов С.А., Боровой А.А., Киселев А.Н. и др.* Оценка скорости эрозии топливосодержащих масс внутри «Саркофага» и характеристики образующихся частиц – Москва, 1991. – 21 с. – (Препр. / ИАЭ им. И. В. Курчатова; № 5434/3).
2. *Богатов С.А., Боровой А.А., Евстратенко А.С. Херувимов А.Н.* Динамика поведения топливных масс в объекте «Укрытие». - Чернобыль, 1992. - 19 с. – (Препр. / НАН Украины. МНТЦ «Укрытие»; № 92-29).
3. *Барьяхтар В.Г., Гончар В.В., Жидков А.В., Ключников А.А.* О пылегенерирующей способности аварийного облученного топлива и лавообразных топливосодержащих материалов объекта «Укрытие» - Чернобыль, 1997. - 20 с. – (Препр. / НАН Украины. МНТЦ «Укрытие»; № 97-10).
4. *Жидков А.В.* Топливосодержащие материалы объекта «Укрытие» сегодня: актуальные физические свойства и возможности прогнозирования их состояния // Проблемы Чернобиля. - 2001. - Вып. 7. - С. 23 - 40.
5. *Бадовский В.П., Ключников А.А., Меленевский А.Э. и др.* Радиоактивные аэрозоли помещения 304/3 объекта «Укрытие» и пылегенерирующая способность лавообразных топливосодержащих материалов в нем // Проблемы безопасности атомных электростанций і Чернобиля. – 2011. – Вып. 16. – С. 67 – 76.
6. *Меленевский А.Э., Бадовский В.П., Ключников А.А. и др.* Оценка состояния поверхности ЛТСМ в реальных условиях объекта «Укрытие» // Сб. докл. «Двадцать пять лет Чернобыльской катастрофы. Безопасность будущего». 20 - 22 апреля 2011 г. – К., 2011. - Ч. 2. - С. 46 – 50.
7. *Радиоактивные загрязнения. Дезактивация.* Библиотечка «Военные знания» / Составитель А. Д. Зимон. – 2-е изд., перераб. и доп. – М.: Стройиздат, 2001. – 56 с.
8. *Бадовский В.П., Ключников А.А., Кравчук Т.А. и др.* Мониторинг аэрозольной обстановки в некоторых подреакторных помещениях объекта «Укрытие» // Проблемы безопасности атомных электростанций і Чернобиля. – 2008. – Вып. 10. – С. 99 – 110.
9. *Арутюнян Р.В., Большов Л.А., Боровой А.А. и др.* Ядерное топливо в объекте «Укрытие» Чернобыльской АЭС. – М.: Наука, 2010. – 240 с.
10. *Голіней І.Ю., Сугаков В.Й.* Деякі механізми руйнування паливовмісних матеріалів // Проблеми безпеки атомних електростанцій і Чернобиля. – 2007. – Вып. 8. – С. 86 – 91.
11. *Замышляев Б.В., Евтерев Л.С.* Модели динамического деформирования и разрушения. – М.: Наука, 1990. – 215 с.
12. *Черепанов Г.П.* Механика хрупкого разрушения. - М.: Наука, 1974. – 640 с.
13. *Райт П.* Аэрозоли. Введение в теорию. – М.: Мир, 1987.
14. *Кашипаров В.А., Иванов Ю.А., Зварич С.И. и др.* Моделирование образования горячих частиц во время аварии на ЧАЭС // Радиохимия. - 1994. - Т. 36, вып. 1. - С. 87 - 93.
15. *Огородников Б.И., Хан В.Е., Ковальчук В.П.* Аэрозоли - свидетели разрушения лавообразных топливосодержащих материалов в объекте «Укрытие» // Проблеми безпеки атомних електростанцій і Чернобиля. - 2013. - Вып. 20. - С. 94 - 106.

**В. П. Бадовський, О. О. Ключников, О. Е. Меленевський, Ю. В. Морозов, І. О. Ушаков, В. М. Щербін**

*Інститут проблем безпеки АЕС НАН України, вул. Кірова, 36а, Чернобыль, 07270, Україна*

#### **ГЕНЕРАЦІЯ ПАЛИВОВІСНОГО ПИЛУ ЛАВОПОДІБНИМИ МАТЕРІАЛАМИ ОБ'ЄКТА «УКРИТТЯ»**

У період з вересня 2011 по жовтень 2012 р. проведено вимірювання радіоактивності пилу з альфа-активними радіонуклідами (ААР), накопиченому на ділянці 1020 см<sup>2</sup> поверхні лавоподібних паливовмісних матеріалів (ЛПВМ) приміщення 304/3 об'єкта «Укриття» за відрізки часу від 1 до 288 діб. Середня швидкість генерації альфа-активності радіонуклідів пилу близько 1,1·10<sup>-3</sup> Бк/(см<sup>2</sup>·добу) або 3,9 кБк/(м<sup>2</sup>·рік) (за даними накопичення 670 діб). Для утворення річної кількості ААР на пил мав перетворитися зовнішній шар виокремленої



ділянки ЛПВМ грубизною близько 2 мкм. У наближенні бімодального логнормального розподілу знайдено значення медіанних аеродинамічних діаметрів для дрібнодисперсної фази зареєстрованих частинок.

*Ключові слова:* генерація радіоактивного пилу; паливні аерозолі; поверхня ЛПВМ; деструкція ЛПВМ

**V. P. Badovsky, O. O. Kliuchnykov, O. E. Melenevsky, Y. V. Morozov, I. O. Ushakov, V. M. Shcherbin**

*Institute for Safety Problems of Nuclear Power Plants NAS of Ukraine, 36a, Kirova str., Chornobyl, 07270, Ukraine*

### FUEL CONTAINING DUST GENERATION BY OBJECT "UKRYTTYA" LAVA MATERIALS

Radioactivity of dust with alpha active radio nuclides (AAR), accumulated on the object "Ukryttya" premise 304/3 LFCM surface with area of about 1020 cm<sup>2</sup>, was measured during 09.2011 - 10.2012 years and time intervals from 1 to 288 days. A purifying of allocated surface was carried out between measurement intervals. Dust with AAR from contaminated air was sampled to two layer filters. Sampled dust amount increased with growth of dust accumulation time. Maximum growth rate was observed during period of LFCM drying out from condensate. Average dust radionuclide alpha activity rate generation was about 1,1·10<sup>-3</sup> Bk/cm<sup>2</sup>·day or 3,9 kBk/m<sup>2</sup>·year (670 day accumulation data). It is necessary 2 mcm layer of selected LFCM surface transformation to dust to form year amount of AAR. Detected, that number of big dust particles exceeded number needed for lognormal distribution. Number of big dust particles decreased for about 1,7 times and number of small dust particles (less 0,8 mcm) increased for more than 2,4 times during 182 days. In bimodal lognormal distribution approximation median aerodynamic diameters (AD) for smaller particles were found. In studied time interval of dust accumulation value of median AD bigger fraction decreased and value of median AD smaller fraction was approximately constant.

*Keywords:* Radioactive dust generation; fuel aerosol; LFCM surface; LFCM destruction.

### REFERENCES

1. *Bogatov S.A., Borovoy A.A., Kiselev A.N. et al.* Speed estimation of fuel-containing masses erosion into "Sarkofag" and characteristics of created particles— Moskva, 1991. – 21 p. – (Prepr. / INE nam. I. V. Kurchatov; № 5434/3). (Rus)
2. *Bogatov S.A., Borovoy A.A., Evstratenko A.S. Heruvimov A.N.* Object "Ukryttya" fuel masses behavior dynamics. - Chornobyl, 1992. - 19 p. – (Prepr. / NAS Ukraine. ISTC «Ukryttya»; № 92-29). (Rus)
3. *Baryakhtar V.G., Gonchar V.V., Zhidkov O.V., Klyuchnycov O. O.* About dust generating ability of object "Ukryttya" accident irradiated fuel and lava fuel-containing materials - Chornobyl, 1997. - 20 p. – (Prepr. / NAS Ukraine. ISTC «Ukryttya»; № 97-10). (Rus)
4. *Zhidkov O.V.* Fuel-containing materials of "Shelter" object today: rutial physicfl properties and facilities for their state prognosis creation // *Problemy Chornobylya*. - 2001. - Iss. 7. - P. 23 - 40. (Rus)
5. *Badovsky V. P., Klyuchnycov O. O., Melenevsky O. E. et al.* Radioactive aerosols of object "Ukryttya" 304/3 room and dust generating ability in it // *Problemy bezpeky atomnyh electrostantsiy i Chornobylya* (Problems of Nuclear Power Plants' Safety and of Chornobyl). – 2011. – Iss. 16. – P. 67 – 76. (Rus)
6. *Melenevsky O. E., Badovsky V. P., Klyuchnycov O. O. et al.* LFCM surface state assessment in real conditions of object "Ukryttya" // *Sb. docl. «Twenty-five Years after Chernobyl Accident. Safety for the Future»*. 20 - 22 April 2011 r. – Kyiv, 2011. - . C. 2. - P. 46 – 50. (Rus)
7. *Radioactive contamination. Deactivation. Bibliotechka «Voennye znaniya» / Editor A. D. Zimon.* – 2-nd ed., recast and add. – M.: Stroyizdat, 2001. – 56 p. (Rus)
8. *Badovsky V. P., Klyuchnycov O. O., Kravchuk T.A. et al.* Aerosol situation monitoring in some under-reactor premises at object "Ukryttya" // *Problemy bezpeky atomnyh electrostantsiy i Chornobylya* (Problems of Nuclear Power Plants' Safety and of Chornobyl). – 2008. – Iss. 10. – P. 99 – 110. (Rus)
9. *Arutunian R.V., Bolshov L.A., Borovoy A.A. et al.* Nuclear fuel in Chornobyl NPP object "Shelter". – M.: Nauka, 2010. – 240 p. (Rus)
10. *Goliney I.Yu., Sugakov V.I.* Some mechanisms of fuel-containing materials degradation // *Problems of nuclear power plants' safety and of Chornobyl*. – 2007. – Iss. 8. – P. 86 – 91. (Ukr)
11. *Zamyshlaev B. V., Evtrev L.S.* Models of dynamic deformation and destruction. – M.: Nauka, 1990. – 215 p. (Rus)
12. *Cherepanov G. P.* Mechanics of fragile destruction. - M.: Nauka, 1974. – 640 p. (Rus)
13. *Raist P.* Aerosols. Introduction in theory. – M.: Mir, 1987. (Rus)
14. *Kashparov V.A., Ivanov Yu.A., Zvarich S.I. et al.* Modeling of hot particles creation during Chornobyl NPP accident // *Radiochimia*. - 1994. - Vol. 36, Iss. 1. - P. 87 - 93. (Rus)
15. *Ogorodnikov B. I., Khan V. E., Kovalchuk V.P.* Aerosols - witnesses of object "Ukryttya" lava fuel-containing materials destruction // *Problemy bezpeky atomnyh electrostantsiy i Chornobylya* (Problems of Nuclear Power Plants' Safety and of Chornobyl). - 2013. - Iss. 20. - C. 94 - 106. (Rus)

Надійшла 28.11.2012

Received 28.11.2012