

А. В. Михайлов, А. А. Дорошенко

*Институт проблем безопасности АЭС НАН Украины, Чернобыль***О РЕЗУЛЬТАТАХ ВОССТАНОВЛЕНИЯ ДИНАМИКИ ТЕМПЕРАТУРЫ  
ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА 4-ГО БЛОКА ЧАЭС НА АКТИВНОЙ СТАДИИ АВАРИИ**

Проведена реконструкция динамики температуры топлива на активной стадии аварии 4-го энергоблока ЧАЭС. Методика расчета эффективной температуры оксида урана построена на использовании математических кодов типа CORSOR и модели образования лавообразных топливосодержащих материалов (ЛТСМ) из фрагментов активной зоны в помещении 305/2. Расчеты проведены по данным о мощности выброса радионуклидов  $^{131}\text{I}$  и  $^{137}\text{Cs}$  в период с 26 апреля по 6 мая 1986 г. Оценена скорость падения температуры ТСМ на этапе остывания ванны силикатного расплава. Показано, что основные потоки ЛТСМ могли образоваться при более умеренных значениях температур, чем предполагали ранее. Результаты работы использованы для верификации доменной версии образования ЛТСМ и ТСМ с высокой концентрацией урана.

*Ключевые слова:* уран, топливосодержащие материалы, радионуклиды  $^{131}\text{I}$  и  $^{137}\text{Cs}$ , скорость выхода летучих продуктов деления, мощность аварийного выброса, эффективная температура.

**Введение**

В результате взаимодействия фрагментов активной зоны (ФАЗ) - топливных каналов и блоков графитовой кладки, элементов конструкций и теплозащиты разрушенного взрывом реактора 4-го энергоблока ЧАЭС образовался силикатный расплав, который застыл в форме лавообразных топливосодержащих масс (ЛТСМ) [1, 2]. За минувшие десятилетия был выполнен целый комплекс специальных исследований [1 - 21]. Основной целью этих работ было установление связей между химическим и радионуклидным составом ЛТСМ, продуктов деления (ПД) и топливных «горячих» частиц (ТГЧ), с одной стороны, и физико-химической природой процессов, породивших уникальные последствия аварии, с другой. В ходе экспериментов [12, 13, 16 - 19] были изучены условия, при которых могли образоваться различные ТГЧ и основные модификации ЛТСМ с низким (5 - 10 %) содержанием урана.

С момента аварии не прекращались попытки интерпретации имеющихся фактов, данных визуального обследования в подреакторных помещениях и детального изучения материалов-«свидетелей» для разработки сценария образования ЛТСМ [1, 6, 11 - 13]. Исследования последних лет позволили локализовать в подреакторной плите ТСМ с высоким содержанием урана (> 50 %) [14] и предложить модель их образования [15].

Детальное изучение ТГЧ, не подвергшихся высокотемпературному воздействию, показало, что при температурно-временных характеристиках, предложенных в ранних сценариях лавообразования [1] и воспроизведенных в ходе лабора-

торного синтеза ЛТСМ [17, 18], обеднение легколетучим цезием матрицы топлива должно было быть значительно выше, чем было измерено в образцах из подреакторных помещений [1, 2, 8, 10, 20]. Разрешение возникшего противоречия могло состоять в следующем: образование ЛТСМ происходило при более низких температурах (< 1600 - 1700 °С); синтез ЛТСМ был выполнен для идеализированных составов шихты и не учитывал реальных условий их образования.

Физико-химическое обоснование возможности образования ЛТСМ при температурах ниже 1500 °С предложено в работах [12, 16]. Еще раньше было известно, что наличие по фронту взаимодействия расплава топлива с бетоном (ВРБ) оксидов  $\text{Al}_2\text{O}_3$  и  $\text{ZrO}_2$  существенно ускоряет процессы лавообразования, понижая температуру начала их взаимодействия [6, 21]. Сценарий образования ЛТСМ, построенный на аналогии с процессами, происходящими в доменной печи [15], учитывал наличие в реакционной зоне таких материалов («флюсов»).

В 1986 г. первичная оценка экологических последствий аварии на ЧАЭС была выполнена на основе известных данных о степени летучести ПД при отжиге облученного оксидного топлива [4]. За рубежом детальные экспериментально-аналитические исследования, проведенные после аварии на АЭС «Три-Майл-Айленд», позволили разработать и верифицировать математические коды типа CORSOR, аппроксимирующие многочисленные экспериментальные данные о температурной зависимости выхода ПД из матрицы керамического ядерного топлива [22, 23]. В настоящее время алгоритмы CORSOR, а также его более поздние модификации используются в

различных программных пакетах для оценки выброса в окружающую среду ПД, накопленных в активной зоне (АЗ) реактора, при выходе температуры топлива за штатные режимы эксплуатации. Применительно для чернобыльской ситуации код типа CORSOR был впервые использован только в 2009 г. [7].

Основной целью настоящей работы было методом решения обратной задачи по известным данным о мощности выброса  $^{131}\text{I}$  и  $^{137}\text{Cs}$  из шахты реактора ЧАЭС провести реконструкцию динамики температуры оксида урана на активной стадии аварии и верифицировать предложенную нами ранее доменную версию образования ядерноопасных скоплений ТСМ.

### Объекты и методика исследований

#### Реконструкция динамики температуры ядерного топлива

В основу процедуры расчета температуры аварийного топлива была положена известная зависимость интенсивности выхода легколетучих ПД из керамической матрицы оксида урана при ее нагреве [4, 22, 23]. Для количественной характеристики процессов использовался коэффициент фракционирования радионуклидов цезия относительно тугоплавкого церия  $K_{фр}$ , значение которого принято рассматривать в качестве индикатора так называемой эффективной температуры  $T_{эф}$  – средней температуры топлива за время, в течение которого был зафиксирован выброс ПД [4]. При этом принималось, что мощность суточного выброса ПД является величи-

ной, производной от суммарного выхода радионуклидов из отдельных таблеток либо их фрагментов по мере их нагрева в составе шихты – навала из ФАЗ, образовавшегося при взрывном диспергировании активной зоны.

Для выполнения необходимого объема вычислений были использованы формулы расчета, заложенные в математический код типа CORSOR. В основу его работы положены следующие принципы [22, 23]:

все ПД, нарабатываемые в топливе во время работы реактора, можно разделить на несколько групп по степени их летучести (радионуклиды цезия и йода относятся к одной группе);

доля летучей фракции радионуклида находится в функциональной зависимости от температуры отработавшего оксидного керамического топлива;

в диапазонах до 1000, от 1000 до 2200 и выше 2200 °С поведение летучей фракции радионуклидов, входящих в одну группу, подчиняется различным функциональным зависимостям от температуры нагрева.

В соответствии с методологией CORSOR мощность выброса летучих ПД определяется как

$$dM/dt = -KM, \quad (1)$$

где  $M$  – интегральное количество ПД, нарабатанное в топливе до аварии;  $K$  – константа скорости выхода ПД из топлива ( $\text{мин}^{-1}$ ), определяющая количественно долю летучей фракции радионуклида как функции от температуры (рис. 1).

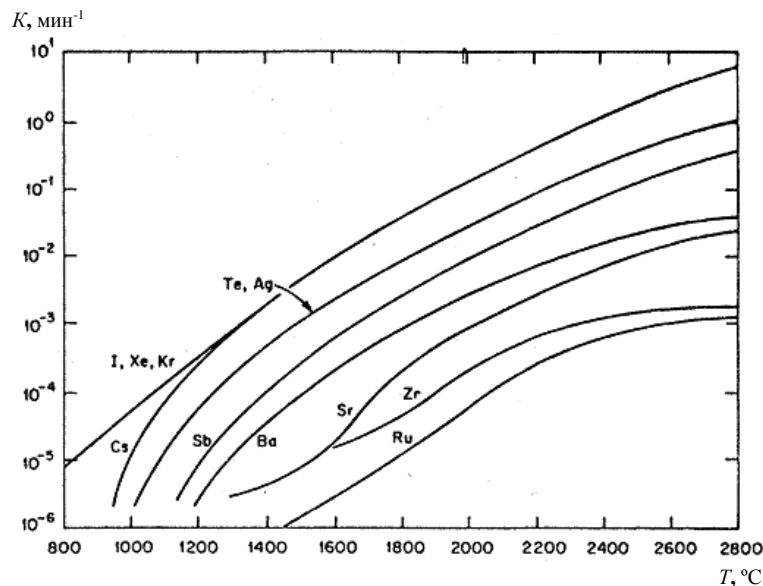


Рис. 1. Зависимость константы скорости выхода летучих продуктов деления от температуры [22].

В качестве маркеров эффективной температуры топлива были выбраны радионуклиды  $^{137}\text{Cs}$  и

$^{131}\text{I}$ , для которых выброс из разрушенного реактора на активной стадии аварии наиболее изучен

в динамике. На рис. 2 и 3 отображены наиболее известные данные, охватывающие период активной стадии аварии [24 - 27]. После 5 мая мощность выброса упала на 2 - 3 порядка и не оказала сколь существенного вклада в суммарное загрязнение территорий за пределами промплощадки ЧАЭС. Числовые обозначения на рисунках указывают на календарный год, когда данные впервые были опубликованы в печати, и соответствующий источник литературы. Обращает на себя внимание существенное различие в количественных оценках среднесуточного выброса,

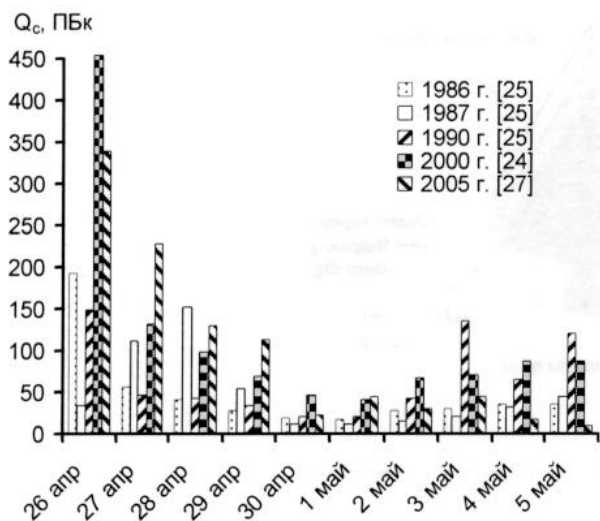


Рис. 2. Динамика выброса <sup>131</sup>I.

При известных значениях  $M$  и  $dM/dt$  легко оценить долю летучей фракции

$$K = - \frac{dM}{Mdt} \quad (2)$$

Для расчета  $M$  наработка ПД в активной зоне реактора на единицу массы урана определялась по данным [4, 24]. Величина  $dM/dt$  для <sup>137</sup>Cs и <sup>131</sup>I рассчитывалась по данным [7, 24, 26, 27], а соответствующая эффективная температура топлива определялась как

$$T_{эф} (^{\circ}C) = - \frac{Q}{R} \cdot \frac{1}{\ln(K/K_0)} - 273, \quad (3)$$

где  $Q$  – энергия активации диффузии летучих соединений цезия и йода;  $R$  – универсальная газовая постоянная, равная 0,001987 ккал/(мол·К);  $K_0$  – коэффициент, мин<sup>-1</sup>. Значения  $Q$  и  $K_0$  принимались в соответствии с [23].

#### Параметры источника аварийного выброса из шахты реактора

Интегральное количество <sup>137</sup>Cs и <sup>131</sup>I, которое могло являться источником длительного выброса

особенно после 2 мая. По этой причине в наших расчетах были использованы два набора исходных данных:

данные из доклада НКДАР ООН 2000 г. [24], в котором подведены итоги почти 15-летней деятельности целого ряда ученых из разных стран мира, начиная с 1986 г.;

данные Н. Н. Талерко 2005 г. [26, 27], полученные решением обратной задачи атмосферного переноса с верификацией по данным о выпадениях на территории Украины.

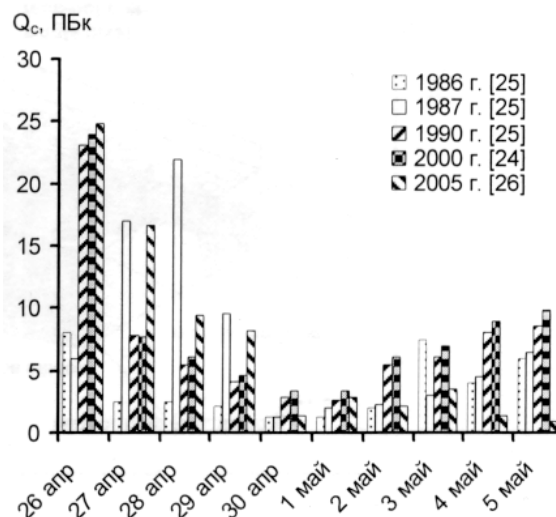


Рис. 3. Динамика выброса <sup>137</sup>Cs.

радионуклидов из шахты реактора, оценивалось следующим образом. Во-первых, часть топлива (~ 8 т, [11]) на момент начала взаимодействия с силикатами присутствовала в виде высокотемпературной U-Zr-O эвтектики (или кориума) и не содержала цезия и йода в заметных количествах. Достаточно 20 - 30 мин для того, чтобы при  $T > 2000$  °C летучие соединения цезия (а йода тем более) на 97 - 99 % покинули матрицу диоксида урана (см. рис. 1). Этот факт подтверждается и результатами отжига ТГЧ в инертной среде [19]. Во-вторых, другим и основным источником выброса ПД могло быть топливо, которое в данный момент времени разогрето до высоких температур (в составе шихты из ФАЗ и/или силикатном расплаве), но еще не успело превратиться в твердую массу (в составе коричневой и/или черной керамики) после слива из помещения 305/2. При скоростях охлаждения, характерных для образования ЛТСМ с матовой (4,5 °C/мин) или блестящей (50 °C/мин) поверхностью из жидкой массы с начальной температурой ~ 1500 °C [17] достаточно быстро образуется твердое тело со структурой, препятствующей дальнейшему интенсивному выходу газообразных ПД. Это известное свойство силикатных стекол использует-

ся в промышленных масштабах при отверждении жидких высокоактивных отходов АЭС [28].

Для оценки интегрального количества топлива, которое могло быть источником длительного выброса ПД, каждое скопление ЛТСМ, выделяемое в структуре распределения урана в подреакторных помещениях [20], было изучено на предмет определения коэффициента фракционирования  $^{137}\text{Cs}$

$$K_{\text{фр}} = \frac{(A_{\text{CS}}/A_{\text{CE}})^{\text{эксн}}}{(A_{\text{CS}}/A_{\text{CE}})^{\text{расч}}}, \quad (4)$$

где  $(A_{\text{CS}}/A_{\text{CE}})^{\text{эксн}}$  – отношение удельной активности  $^{137}\text{Cs}$  к  $^{144}\text{Ce}$  по данным о радионуклидном составе ЛТСМ в скоплении [2, 8, 10];  $(A_{\text{CS}}/A_{\text{CE}})^{\text{расч}}$  – расчетное отношение удельной активности  $^{137}\text{Cs}$  к  $^{144}\text{Ce}$  в топливе по данным [4, 24].

По результатам математического анализа полученного массива значений  $K_{\text{фр}}$  и определения остаточной доли  $^{137}\text{Cs}$  в топливе (табл. 1) средне-взвешенная утечка радионуклида, характерная для ЛТСМ обоих типов, рассчитывалась как

$$F_{\text{срвзв}} = 1 - K_{\text{фр}}^{\text{срвзв}}. \quad (5)$$

Таблица 1. Остаточная доля  $^{137}\text{Cs}$  в топливе ( $K_{\text{фр}}$ ) и его утечка из урановой матрицы

| Тип ЛТСМ            | $K_{\text{фр}}$                                   |                           | $F_{\text{срвзв}}$ |
|---------------------|---|---------------------------|--------------------|
|                     | Диапазон средних значений по отдельным скоплениям | Средневзвешенное значение |                    |
| Коричневая керамика | 0,14 - 0,34                                       | 0,31                      | 0,69               |
| Черная керамика     | 0,33 - 0,55                                       | 0,41                      | 0,59               |
| По всем скоплениям  |   | 0,37                      | 0,63               |

Известно, что заметная летучесть цезия наблюдается при нагреве топлива до  $\sim 900^\circ\text{C}$ , сближаясь при  $T > 1100^\circ\text{C}$  с величиной, характерной для йода и радиоактивных благородных газов (см. рис. 1). Как видно из табл. 1, ЛТСМ существенно обеднены цезием в результате воздействия на топливо высоких температур в зонах лаваобразования. В то же время цериевое отношение для ФАЗ, не вошедших в состав ЛТСМ, незначительно отличается от величины, характерной для топлива на момент аварии [4, 11, 20]. Это дает основание исключить подобные скопления ТСМ из числа источников выброса  $^{137}\text{Cs}$ .

На сегодняшний день принято считать, что в окружающую среду было выброшено  $\sim 85$  ПБк  $^{137}\text{Cs}$  (диапазон оценок от 72 до 89 ПБк, 1 ПБк =  $10^{15}$  Бк) [20, 24, 25] и от 975 до 1760 ПБк  $^{131}\text{I}$  [24, 25]. Для йода верхняя граница диапазона значений оценена по содержанию  $^{129}\text{I}$  в образцах из объекта «Укрытие» [5]. Результаты моделирования демонстрируют различные временные и количественные параметры выброса ПД на протяжении активной стадии аварии (см. рис. 2 и 3). Однако сходятся в том, что  $\sim 1/4$  легколетучих ПД было выброшено 26.04.86 г. [24, 25].

В самый начальный момент аварии весомой составляющей выброса могли быть ПД, наработанные в 8 т урана (точнее 7,7 т из состава U-Zr-O эвтектики) и выброшенные в атмосферу сразу после разгерметизации активной зоны. Для  $^{137}\text{Cs}$  – это, как минимум, 10,5 ПБк ( $7,7 \text{ т} \cdot 1,37 \text{ ПБк/т У}$ ). Доминантным источником длительного выброса ПД могло быть только топливо, которое постепенно разогревалось до высо-

ких температур и ассимилировалось в составе ЛТСМ. Исходя из суммарного выброса  $^{137}\text{Cs}$ , в этой части топлива могло содержаться 118,2 ПБк =  $(85 - 10,5) / 0,63$  (0,63 – средневзвешенная утечка цезия из ЛТСМ в целом, см. табл. 1), что соответствует 86,3 т урана (98 т  $\text{UO}_2$ ).

Для сведения баланса по цезию из полученной величины была вычтена масса топлива, которое могло быть выброшено из шахты реактора в виде мелкодисперсных частиц по мере выгорания графитовой кладки и не вошло в состав лав (3 т урана,  $\sim 1,5\%$  от загрузки). В итоге получаем, что источником выброса ПД являлось топливо с массой урана  $83,3 + 7,7 = 91 \text{ т} (\pm 3 \text{ т})$ , в котором могло быть накоплено 124,4 ПБк  $^{137}\text{Cs}$  и 1530 ПБк  $^{131}\text{I}$ .

Следует заметить, что, по мнению авторов работы [5], источником выброса йода могли быть не только ЛТСМ (100 %-й выход), но и топливная пыль ( $\sim 30 \text{ т}$ , 505 ПБк, 100 %-й выход) и оставшиеся неплавленными ФАЗ ( $\leq 75 \text{ т}$ , т.е.  $\sim 380$  ПБк при 30 %-м выходе). Указанные источники ПД были также учтены при расчете константы скорости выхода  $^{131}\text{I}$ .

#### Контроль корректности полученных данных

Для оценки корректности полученных в работе результатов были рассчитаны временные интервалы, на протяжении которых при нагреве топливной матрицы до температуры  $T = T_{\text{эф}}$  обеднение цезием могло достигнуть значений, соответствующих  $K_{\text{фр}}$  в табл. 1:

$$\tau(\text{ч}) = -\frac{\ln(K_{\text{фр}})}{60 \cdot K}, \quad (6)$$

где  $K$  – константа скорости выхода  $^{137}\text{Cs}$ , рассчитанная по формуле Аррениуса ( $\text{мин}^{-1}$ ).

### Результаты и обсуждение

Результаты проведенной многовариантной оценки динамики эффективной температуры топлива на активной стадии аварии представлены на рис. 4. Детальная реконструкция событий после 5 мая не являлась целью нашей работы. К этому моменту формирование конфигурации

размещения ТСМ и ЛТСМ в подреакторных помещениях завершилось. А мощность суточных выбросов упала на 2 - 3 порядка величины, что являлось следствием образования на поверхности ЛТСМ прочной гарнисажной корки, препятствующей интенсивному выходу газообразных ПД. Оценка температуры остывающего топлива на 11 и 25 мая была проведена исключительно для сравнения наших результатов с данными, полученными в работе [7] для  $^{103}\text{Ru}$ ,  $^{132}\text{Te}$  и  $^{140}\text{Ba}$ .

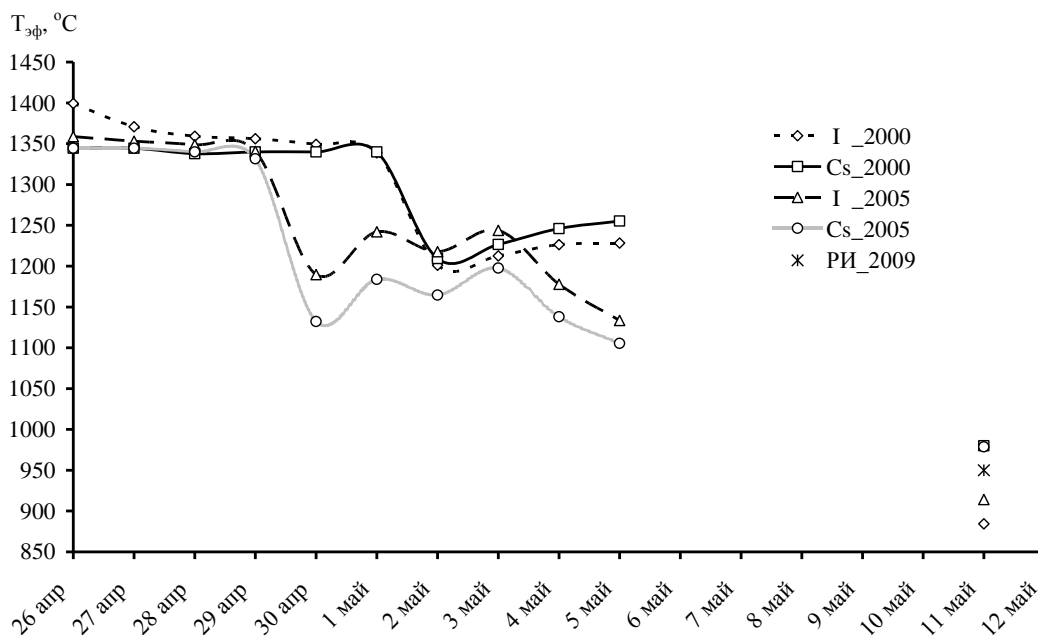


Рис. 4. Динамика эффективной температуры аварийного топлива. Обозначения цезия и йода указывают на тип данных для расчетов; числовые индексы – варианты исходных данных: «2000» - [24] и «2005» - [26, 27]; РИ\_2009 – данные работы [7].

Сравнение результатов расчета, выполненного по двум вариантам исходных данных о параметрах выброса  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{131}\text{I}$ , выявило наличие между ними существенных отличий как по амплитуде значений  $T_{эф}$ , так и форме динамики, длительности периодов ее проявления.

Согласно данным НКДАР ООН 10-дневный ход событий на активной стадии аварии пред-

ставляется как проявление двух тенденций: с 26 апреля по 1 мая период удержания температуры топлива без существенных отклонений от среднего значения  $1350 \pm 22$  °C; затем, после резкого падения до  $\sim 1200$  °C, неуклонный ее рост до  $\sim 0,9$  от значений на 26 апреля. Различия в данных, полученных по йоду и цезию, незначительное ( $\sim 20$  °C).

Таблица 2. Эффективная температура топлива при образовании ЛТСМ

| Стадия образования скоплений ТСМ                                       | Параметр расчета                 | $T_{эф}, \text{ }^\circ\text{C}$ |                                  |
|--|----------------------------------|----------------------------------|----------------------------------|
|  |                                  | По данным [26, 27]               | По данным [7]                    |
| Формирование и выплескивание лавовых потоков из пом. 305/2             | $Q_c(\text{I})$                  | $1350 \pm 8$                     |                                  |
|  | $Q_c(\text{Cs})$                 | $1340 \pm 10$                    |                                  |
|  | $Q_c(\text{I}) + Q_c(\text{Cs})$ | $1345 \pm 10$                    |                                  |
| Стабилизация ванны силикатного расплава в пом. 305/2                   | $Q_c(\text{I})$                  | $1223 \pm 25$                    |                                  |
|  | $Q_c(\text{Cs})$                 | $1170 \pm 28$                    |                                  |
|  | $Q_c(\text{I}) + Q_c(\text{Cs})$ | $1196 \pm 38$                    |                                  |
| Начало остывания ванны расплава и образование корки на его поверхности | $Q_c(\text{I})$                  | $1156 \pm 31$                    |                                  |
|  | $Q_c(\text{Cs})$                 | $1122 \pm 23$                    |                                  |
|  | $Q_c(\text{I}) + Q_c(\text{Cs})$ | $1140 \pm 30$                    |                                  |
| Остывание (на 11.05.86 / 25.05.86)                                     | $Q_c(\text{I})+Q_c(\text{Cs})$   | $946 \pm 46 /$                   | $950 \pm 100 /$<br>$(300 - 500)$ |
|  |                                  | $575 \pm 100$                    |                                  |

Примечание.  $Q_c(\text{I})$  и  $Q_c(\text{Cs})$  мощность выброса  $^{131}\text{I}$  и  $^{137}\text{Cs}$  соответственно.

По данным Н. Н. Талерко в динамике  $T_{эф}$  на активной стадии аварии можно выделить следующие периоды (см. рис. 4 и табл. 2): с 26 по 29 апреля – удержание температуры на одном уровне; с 30 апреля по 3 мая – после резкого падения температуры незначительный ее подъем с периодическими колебаниями; с 4 мая – неуклонный спад. Различие в данных, полученных по йоду и цезию, наиболее выражено проявилось, начиная с 30 апреля.

Результаты многовариантной оценки  $T_{эф}$  на 11 и 25 мая 1986 г. с хорошей точностью совпали между собой и с данными работы [7] (см. табл. 2).

Обратимся теперь к сравнению полученных данных с известными оценками температуры топлива и ЛТСМ, выполненными ранее. В наиболее известной работе [1], как и в ряде других [6, 11, 13, 17, 18], возможный диапазон температур лавообразования оценивается значениями 1600 - 1700 °С и выше. Однако, как известно, в таком диапазоне температур происходит интенсивное и скоротечное обеднение матрицы топлива легколетучим цезием, которое может достигнуть более 90 % [4, 9, 19]. А в образцах ЛТСМ, как видно из табл. 1, цезия в среднем осталось почти в 1,5 раза больше.

Что могло оказать столь существенное влияние на температуру лавообразования? Как отмечают авторы работ [1, 6, 17, 18, 21], – это примеси. Даже незначительная добавка углерода к компонентам шихты понижает температуру, как минимум, на 200 - 300 °С. В присутствии оксидов  $Al_2O_3$  и  $ZrO_2$  бурное растворение диоксида урана по фронту ВРБ происходит в считанные минуты. Наличие  $Al_2O_3$ , входящего в состав бетона и серпентинита, а также окисленного циркония было более чем достаточно в очагах лавообразования. Подобное «удачное» сочетание материалов, по мнению авторов [6], в комплексе с необходимым тепловым режимом обеспечили формирование силикатного расплава топлива при температуре, ненамного превышающей 1000 °С. Это совпадает с выводами авторов работ [12, 16]: образование ЛТСМ могло происходить при температурах  $\sim 1200$  °С преимущественно путем растворения ФАЗ в силикатах, а не плавления с образованием жидких эвтектик. Таким образом, результаты наших оценок, свидетельствующие о наличии более умеренных температур в основных очагах лавообразования, находятся в согласии с целым рядом работ, опубликованных в последние годы.

Как видно на рис. 4, результаты расчетов по данным НКДАР ООН демонстрируют неуклонный рост температуры топлива на конец актив-

ной стадии аварии, что полностью соответствует ранним представлениям о динамике выбросов ПД, когда этот период связывали с последствиями мероприятий по локализации масштабов аварии. Однако, как теперь известно, никакого периода «разогрева» материалов засыпки реактора не было и не могло быть по причине ее отсутствия в зоне лавообразования (исключая верхние отметки на уровне схемы «Е» и очаги образования полихромной керамики). Все, что сбрасывалось с вертолетов, в шахту не попало [6]. В итоге подобный рост, а после – резкий, на два порядка величины, спад мощности выбросов после достижения его максимального значения, никак не может быть связан с результатом разогрева топлива под «шубой» вертолетной засыпки.

В этом плане более поздние результаты реконструкции динамики аварийных выбросов, полученные Н. Н. Талерко, на наш взгляд, более реально отражают последствия процессов, которые могли происходить в ванне расплава после слива избыточного количества черных ЛТСМ из помещения 305/2. Периодические колебания температуры – это следствие процессов ассимиляции крупных фрагментов топлива в силикатном расплаве, их дефрагментации, доокисления урана и циркония, в ходе которых мощность выброса ПД, накопленных в матрице постепенно растворяемого топлива, могла и расти, и падать.

По нашему мнению, результаты, полученные по данным 2005 г., более реалистично отражают процесс постепенного остывания ЛТСМ. К тому же данный период по времени совпадает с моментом спуска воды из бассейна-барботера (в ночь с 3 на 4 мая [6, 20]). В результате пар, который поднимался с нижних отметок, где происходил контакт горячей лавы с водой, перестал быть транспортом для выноса легколетучих соединений йода и цезия из шахты реактора за пределы блока. Образование на поверхности силикатного расплава при его остывании гарнисажной корки создало мощный барьер на пути выхода газообразных ПД, что привело к постепенному падению мощности выброса и практически полному его прекращению 6 мая. Если на графиках, иллюстрирующих результаты, полученные по данным 2005 г., мысленно соединить точки, соответствующие выбросам 4 и 11 мая (см. рис. 4), то скорость падения температуры топлива может быть экстраполирована экспоненциальным законом с постоянной процесса  $0,0315 \text{ сут}^{-1}$  ( $T_{1/2} = 22 \pm 5 \text{ сут}$ ). Значения  $T_{эф}$ , оцененные на 25 мая в соответствии с установленной зависимостью (см. табл. 2), совпали с верхней границей диапазона температур, предложенного в работе [7].

Для определения степени корректности полу-

ченных нами результатов были оценены интервалы времени (табл. 3), на протяжении которых при температуре  $T_{эф}$  из матрицы топлива могли

свободно диффундировать радионуклиды цезия в количестве, равном измеренному обеднению в ЛТСМ (см. табл. 1).

**Таблица 3. Оценка времени утечки  $^{137}\text{Cs}$  из топливной матрицы**

| Тип ЛТСМ   | Время утечки, ч   |                     |
|--|-------------------|---------------------|
|  | По данным [24]    | По данным [26]      |
| Коричневая керамика                                | 4,5 (4,3 - 8,3)   | 4,5 (4,3 - 7,8)     |
| Черная керамика:<br>вне пом. 305/2<br>в пом. 305/2 | 4,3 (3,4 - 4,7)   | 4,0 (3,4 - 4,9)     |
|  | 4,4 (3,4 - 4,6)*  | 11,2 (8,0 - 15,8)*  |
|  | 8,0 (5,0 - 9,8)** | 12,3 (7,3 - 18,4)** |

\* Для периода 30.04 - 02(03).05.86 г.

\*\* Для периода 03(04).05 - 05.05.86 г.

Как видно из данных табл. 3, временные интервалы утечки цезия при образовании и формировании основных потоков ЛТСМ из помещения 305/2 не выходят за пределы разумных числовых значений. Более того, полученные данные находятся в согласии с временными рамками процессов лавообразования, предложенных в работах [1, 5, 11].

Таким образом, на основе вышеизложенного можно сделать заключение:

1. Для начального периода аварии, когда мощные выбросы ПД из шахты реактора сопровождали процессы активного лавообразования и слива ЛТСМ из помещения 305/2, результаты, полученные в ходе многовариантных расчетов, находятся в хорошем согласии. По сумме данных эффективная температура топлива оценивается значением  $1350 \pm 15$  °С.

2. Динамика температуры топлива, восстановленная по последним из известных данных о параметрах аварийного выброса (2005 г.), более реалистично отображает ее возможные колебания в ванне силикатного расплава на этапе стабилизации химического состава, начала остывания и образования корки на поверхности. Эффективная температура топлива в этот период времени (после слива избыточных черных ЛТСМ из ванны расплава) оценивается значением  $1177 \pm 44$  °С. Полученный в работе диапазон температур хорошо согласуется с данными литературы [12, 16] о том, что температура в диапазоне  $1100 \div 1200$  °С может быть вполне достаточной для образования ЛТСМ путем растворения ФАЗ в силикатах.

3. На этапе необратимого остывания ванны силикатного расплава топлива и формирования твердой массы из ТСМ динамика температуры аппроксимируется экспоненциальной зависимостью с периодом полуспада  $22 \pm 5$  сут. Оцененные значения температуры находятся в согласии

с литературными данными [7].

4. Оцененная длительность процессов утечки цезия из урановой матрицы при образовании ЛТСМ обоих типов подтверждает корректность рассчитанных значений эффективной температуры ядерного топлива и находится в согласии с временными рамками процессов, предложенными в работе [1] на основе сведения материально-энергетического баланса.

Принимая во внимание вышеизложенное, полученные в работе данные были использованы для верификации доменной версии образования ядерноопасных скоплений ТСМ [15]. Согласно предложенной нами модели конфигурация засыпки шихты из необходимых материалов и условия для ее реализации сложились в юго-восточном квадранте подреакторного помещения 305/2 в пространстве, ограниченном строительными осями И – Л, 46 - 47 и высотными отметками + 8,0 и + 16,0 м. Расплав топлива (кориум), образовавшийся при расплавлении топливных каналов в перегретой части АЗ, после разгерметизации реакторного пространства был сброшен преимущественно к южной стене помещения. Процессы взаимодействия расплава топлива с бетоном (ВРБ) положили начало образованию глубокой каверны в бетоне фундаментной плиты («горн домены») и последующему накоплению в этой зоне ТСМ с высокой концентрацией урана. Восходящие потоки тепла из зоны ВРБ стимулировали разогрев ФАЗ и начало горения графита. Оседание столба «шихты» по мере ее расхода сопровождалось образованием жидкого «доменного шлака» в виде потоков черных ЛТСМ.

В работе [15] на основе имеющихся данных о температурах, при которых могли происходить процессы образования ТСМ и ЛТСМ, а также физическом состоянии материалов-«свидетелей» в эпицентре лавообразования было построено распределение температуры по высоте упруго-

сыпучей смеси шихтовых материалов, вовлеченных в «доменный процесс». В соответствии с [15] температура шихты (в привязке к высотным отметкам здания 4-го блока ЧАЭС) могла находиться в диапазоне значений от 1200 - 1400 °С (+ 9,5 – 10,5 м) до < 270 - 570 °С (+ 17 - 19 м). В зоне «распара» температура шихты за счет тепла от реакций горения графита и окисления циркония могла быть не менее 850 - 1100 °С. Средняя температура жидкого «шлака» – черных ЛТСМ (на отметке + 9,3 м, соответствующей пролomu в помещении 304/3, откуда начал свое движение большой горизонтальный поток лавы из эпицентра ее образования) оценена величиной 1400 ± 50 °С. Как видно из рис. 4 и табл. 2, температура топлива, а следовательно, и максимально возможная температура ЛТСМ на стадии формирования и выплескивания лавовых потоков, действительно могла находиться в тех диапазонах значений, которые были предложены в «доменной» версии процессов [15].

## Выводы

По данным о среднесуточных выбросах  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{131}\text{I}$  из шахты реактора на активной стадии аварии восстановлена динамика эффективной температуры топлива при образовании ЛТСМ в подреакторных помещениях 4-го энергоблока ЧАЭС. Полученные данные свидетельствуют о том, что основной объем ЛТСМ сформировался при более умеренных значениях температур, чем оценивали ранее. Использование математических кодов типа CORSOR в комплексе с модельными представлениями о динамике высокотемпературных процессов образования ТСМ позволяет с достаточно высокой точностью оценивать эффективную температуру аварийного топлива чернобыльского происхождения. Результаты работы использованы для верификации доменной версии образования ядерноопасных скоплений ТСМ и температурных условий расхода шихты из фрагментов активной зоны.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Пазухин Э.М. Лавообразные топливосодержащие массы 4-го блока Чернобыльской АЭС: топография, физико-химические свойства, сценарий образования // Радиохимия. - 1994. - Т. 36, № 2. - С. 97 - 142.
2. Пазухин Э.М., Боровой А.А., Лагуненко А.С., Коломиец Ф.Н. Изучение образцов лавообразных топливосодержащих материалов, отобранных с различной глубины залегания лавы // Проблемы Чернобиля. - 2002. - Вып. 9. - С. 66 - 75.
3. Желтоножский В.А., Желтоножская М.В., Кулич Н.В. и др. Радионуклидный состав фрагментов лавовых топливосодержащих материалов из 4-го энергоблока ЧАЭС АЭС // Радиохимия. - 2011. - Т. 53, № 5. - С. 465 - 469.
4. Сивинцев Ю.В., Хрулев А.А. Оценка радиоактивного выброса при аварии 1986 г. на 4-м энергоблоке Чернобыльской АЭС // Атомная энергия. - 1995. - Т. 78, вып. 6. - С. 403 - 417.
5. Боровой А.А., Гагаринский А.Ю. Выброс радионуклидов из разрушенного блока Чернобыльской АЭС // Там же. - 2001. - Т. 90, вып. 2. - С. 137 - 145.
6. Боровой А.А., Пазухин Э.М., Стрижов В.Ф. Эффективность мер по ликвидации последствий аварии на ЧАЭС (активная стадия аварии). - Москва, 2007. - 38 с. - (Препр. / РНЦ «Курчатовский институт»; ИАЭ-6471/11).
7. Римский-Корсаков А.А., Федотов П.И., Дубасов Ю.В. и др. Исследование выброса аварийного реактора 4-го блока Чернобыльской АЭС // Тр. Радиового ин-та им. В. Г. Хлопина. - 2009. - Т. XIX. - С. 10 - 22.
8. Богатов С.А., Боровой А.А., Гаврилов С.Л. и др. База данных по местонахождению и состоянию ядерного топлива 4-го блока ЧАЭС до и после аварии. - Москва, 2007. - 146 с. - (Препр. / РНЦ «Курчатовский институт»; 130-11/2).
9. Огородников Б.И., Пазухин Э.М., Ключников А.А. Радиоактивные аэрозоли объекта «Укрытие»: 1986 - 2006 гг. - Чернобыль: Ин-т проблем безопасности АЭС, 2008. - 456 с.
10. Высокский Е.Д., Ключников А.А., Лагуненко А.С. и др. Ядерно-опасные скопления топливосодержащих материалов в разрушенном четвертом блоке Чернобыльской АЭС // Радиохимия. - 2011. - Т. 53, № 2. - С. 178 - 183.
11. Богатов С.А. Взаимодействие аварийного топлива 4-го энергоблока ЧАЭС с конструкционными материалами - количественные оценки // Объект «Укрытие» - 10 лет. Основные результаты научных исследований. - Чернобыль, 1996. - С. 112 - 127.
12. Жидков О.В. 25 років еволюції уявлень про паливовмісні матеріали об'єкта «Укриття»: сценарії їхнього утворення та фізичні міркування // Проблеми безпеки атомних електростанцій і Чернобиля. - 2011. - Вып. 16. - С. 86 - 100.
13. Петелин Г.И., Зимин Ю.И., Тепикин В.Е., Рыбалка В.Б. «Горячие» частицы ядерного топлива чернобыльского выброса в ретроспективной оценке процессов на 4-м блоке ЧАЭС // Радиохимия. - 2003. - Т. 45, № 3. - С. 278 - 281.
14. Высокский Е.Д., Краснов В.А., Лагуненко А.С., Пазухин Э.М. Топливо в помещении 305/2 4-го блока ЧАЭС. Критмассовые зоны. Уточнение сценария образования лавообразных топливосодержащих материалов // Проблемы безопасности атомных электростанций і Чернобиля. - 2007. - Вып. 8. - С. 77 - 85.
15. Высокский Е.Д., Михайлов А.В. Концептуальная модель «доменной» версии образования ядерноопасных скоплений на 4-м блоке ЧАЭС // Там же. - 2013. - Вып. 21. - С. 99 - 106.
16. Гончар В.В., Жидков А.В. Динамика высокотемпе-



- ратурного взаємодія аварійного ядерного палива з конструкційними матеріалами РБМК // Проблеми Чорнобиля. - 2002. - Вип. 9. - С. 25 - 33.
17. *Красноруцкий В.С., Яковлев В.К., Данилов А.П. и др.* Микроструктурний аналіз лавоподібних топливосодержащих масс // ВАНТ. Сер. ФРП и РМ. - 2010. - № 1. - С. 60 - 67.
  18. *Красноруцкий В.С., Яковлев В.К., Данилов А.П. и др.* Исследование взаимодействия ядерного топлива с конструкционными материалами активной зоны в случае запроектной аварии // Там же. - 2012. - № 2(78). - С. 56 - 67.
  19. *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.
  20. *Боровой А.А., Велихов Е.П.* Опыт Чернобыля (работы на объекте «Укрытие»). Часть 1. - М.: НИЦ «Курчатовский институт», 2012. - 168 с.
  21. *Арутюнян Р.В., Большов Л.А., Васильев А.В., Стрижев В.Ф.* Физические модели тяжелых аварий на АЭС / Под ред. Н. Н. Пономарева-Степного. - М.: Наука, 1992. - 232 с.
  22. *Technical Bases for Estimating Fission Product Behavior During LWR Accidents, NUREG-0772.* U.S. Nuclear Regulatory Commission, Washington, June 1981.
  23. *Reassessment of Technical Bases for Estimating Source Terms. Final Report. NUREG-0956.* U.S. Nuclear Regulatory Commission, Washington, July 1986.
  24. *United Nations. Sources and Effects of Ionizing Radiation. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR) 2000. Report to General Assembly. Annex J : Exposure and effects of the Chernobyl accident - New York: UN. - 2000. - P. 456 - 566.*
  25. *Талерко Н.Н., Гаргер Е.К.* Оценки первичного выброса из аварийного блока ЧАЭС с помощью моделирования атмосферного переноса (обзор) // Проблеми безпеки атомних електростанцій і Чорнобиля. - 2006. - Вип. 5. - С. 80 - 90.
  26. *Talerko N. Mesoscale modeling of radioactive contamination formation in Ukraine caused by the Chernobyl accident // Journal of Environmental Radioactivity. - 2005. - Vol. 78(3). - P. 311 - 329.*
  27. *Talerko N. Reconstruction of <sup>131</sup>I radioactive contamination in Ukraine caused by the Chernobyl accident using atmospheric transport modeling // Ibid. - 2005. - Vol. 84. - P. 343 - 362.*
  28. *Ключников А.А., Пазухин Э.М., Шигера Ю.М., Шигера В.Ю.* Радиоактивные отходы АЭС и методы обращения с ними. - К.: Ин-т проблем безопасности АЭС НАН Украины, 2005. - 487 с.

**О. В. Михайлов, А. О. Дорошенко**

*Институт проблем безпеки АЕС НАН України, Чорнобиль*

#### **ПРО РЕЗУЛЬТАТИ ВІДНОВЛЕННЯ ДИНАМІКИ ТЕМПЕРАТУРИ ЯДЕРНОГО ПАЛИВА 4-ГО БЛОКА ЧАЕС НА АКТИВНІЙ СТАДІЇ АВАРІЇ**

Виконано реконструкцію динаміки температури палива на активній стадії аварії 4-го енергоблока ЧАЕС. Методика розрахунку ефективної температури оксиду урану основана на використанні математичних кодів типу CORSOR та моделі утворення лавоподібних паливовмісних матеріалів (ЛПВМ) із фрагментів активної зони в приміщенні 305/2. Розрахунки проведено за даними про потужність викидів радіонуклідів <sup>131</sup>I та <sup>137</sup>Cs в період з 26 квітня по 6 травня 1986 р. Надано оцінку швидкості падіння температури ПВМ на етапі застигання ванни силікатного розплаву. Показано, що основні потоки ЛПВМ могли утворюватися за більш помірних значень, ніж за попередніми оцінками. Результати роботи використані для верифікації доменної версії створення ЛПВМ і ПВМ з високою концентрацією урану.

*Ключові слова:* уран, паливовмісні матеріали, радіонукліди <sup>131</sup>I та <sup>137</sup>Cs, швидкість виходу летких продуктів поділу, потужність аварійного викиду, ефективна температура.

**O. V. Mikhailov, A. O. Doroshenko**

*Institute for NPP Safety Problems, National Academy of Sciences of Ukraine, Chornobyl*

#### **ON THE RESULTS OF NUCLEAR FUEL TEMPERATURE DYNAMICS RESTORATION AT THE CHORNOBYL NPP UNIT 4 DURING ACTIVE PHASE OF THE ACCIDENT**

Fuel temperature dynamics was reconstructed for active phase of the accident at the Chernobyl NPP Unit 4. Method of effective temperature calculation for uranium oxide is based on implementation of the CORSOR type mathematical codes and the model of lava-like fuel containing materials (LFCM) formation from fragments of the former core (FFC) in the room 305/2. Calculations were carried out according to release rate of <sup>131</sup>I and <sup>137</sup>Cs radionuclides during the period from April 26 until May 6, 1986. The rate of temperature drop during the FCM stage cooling bath silicate melt was estimated. It is shown that the main streams of LFCM could be formed at more moderate values of temperatures than it was performed previously. The results of the work are used to verify the "blast furnace" version of LFCM formation and formation of FCM with high uranium concentration.

*Keywords:* uranium, fuel-containing materials, <sup>131</sup>I and <sup>137</sup>Cs radionuclides, release rate of volatile fission products, power of accidental release, effective temperature.

## REFERENCES

1. Pazukhin E.M. // Radiokhimiya. - 1994. - Vol. 36, No. 2. - P. 97 - 142. (Rus)
2. Pazukhin E.M., Borovoj A.A., Lagunenکو A.S., Kolomiets F.N. // Problemy Chornobylya. - 2002. - Iss. 9. - P. 66 - 75. (Rus)
3. Zheltonozhskij V.A., Zheltonozhskaya M.V., Kulich N.V. et al. // Radiokhimiya. - 2011. - Vol. 53, No. 5. - P. 465 - 469. (Rus)
4. Sivintsev Ju.V., Khrulev A.A. // Atomnaja energija. - 1995. - Vol. 78, Iss. 6. - P. 403 - 417. (Rus)
5. Borovoj A.A., Gagarinskij A.Ju. // Ibid. - 2001. - Vol. 90, Iss. 2. - P. 137 - 145. (Rus)
6. Borovoj A.A., Pazukhin E.M., Strizhov V.F. Effectiveness of measures to eliminate the consequences of the Chernobyl accident (active phase of the accident). - Moskva, 2007. - 38 p. - (Prepr. / RNTs «Kurchatovskij institut»; IAE-6471/11). (Rus)
7. Rimskij-Korsakov A.A., Fedotov P.I., Dubasov Ju.V. et al. Study of radionuclide release from Chernobyl NPP Unit 4's reactor accident // Trudy Radievogo instituta im. V. G. Khlopina. - 1009. - Vol. XIX. - P. 10 - 22. (Rus)
8. Bogatov S.A., Borovoj A. A., Gavrilov S. L. et al. Database on location of Chernobyl NPP Unit 4's nuclear fuel before and after the accident. - Moskva, 2007. - 146 p. (Prepr./ RNTs «Kurchatovskij institut»; No. 130-11/2). (Rus)
9. Ogorodnikov B.I., Pazukhin E.M., Kljuchnikov A.A. Radioactive aerosols object "Ukryttya": 1986 - 2006. - Chernobyl': Institut problem bezopasnosti AES, 2008. - 456 p. (Rus)
10. Vysotskij E.D., Kljuchnikov A.A., Lagunenکو A.S. et al. // Radiokhimiya. - 2011. - Vol. 53, No. 2. - P. 178 - 183. (Rus)
11. Bogatov S.A. Interaction of Chernobyl NPP power Unit 4's emergency fuel with structural materials - quantitative estimates // Ob'ekt «Ukrytie» - 10 let. Osnovnye rezul'taty nauchnykh issledovanij. - Chernobyl', 1996. - P. 112 - 127. (Rus)
12. Zhydkov O.V. // Problemy bezpeky atomnykh elektrostantsiy i Chornobylya. - 2011. - Iss. 16. - P. 86 - 100. (Ukr)
13. Petelin G.I., Zimin Ju.I., Tepikin V.E., Rybalka V.B. // Radiokhimiya. - 2003. - Vol. 45, No. 3. - P. 278 - 281 (Rus)
14. Vysotskij E.D., Krasnov V.A., Lagunenکو A.S., Pazukhin E.M. // Problemy bezpeky atomnykh elektrostantsiy i Chornobylya. - 2007. - Iss. 8. - P. 77 - 85 (Rus)
15. Vysotskij E.D., Mihajlov A.V. // Ibid. - 2013. - Iss. 21. - P. 99 - 106. (Rus)
16. Gonchar V.V., Zhidkov A.V. // Problemy Chornobylya. - 2002. - Iss. 9. - P. 25 - 33. (Rus)
17. Krasnorutskij V.S., Jakovlev V.K., Danilov A.P. et al. - VANT. Ser. FRP i RM. - 2010. - No. 1. - P. 60 - 67. (Rus)
18. Krasnorutskij V.S., Jakovlev V.K., Danilov A.P. et al. // Ibid. - 2012. - No. 2(78). - P. 56 - 67. (Rus)
19. Kashparov V.A., Ivanov Ju.A., Zvarich S.I. et al. // Radiokhimiya. - 1994. - Vol. 36, Iss. 1. - P. 87 - 93. (Rus)
20. Borovoj A.A., Velikhov E.P. Chernobyl experience (work on the project "Ukryttya"). Part 1. - Moskva: NITs «Kurchatovskij institut», 2012. - 168 p. (Rus)
21. Arutjunjan R.V., Bol'shov L.A., Vasil'ev A.V., Strizhov V. F. Physical models of severe accidents on the NPP / Ed. N. N. Ponomarev-Stepnoj. - Moskva: Nauka, 1992. - 232 p. (Rus)
22. Technical Bases for Estimating Fission Product Behavior During LWR Accidents, NUREG-0772. U.S. Nuclear Regulatory Commission, Washington, June 1981.
23. Reassessment of Technical Bases for Estimating Source Terms. Final Report. NUREG-0956. U.S. Nuclear Regulatory Commission, Washington, July 1986.
24. United Nations. Sources and Effects of Ionizing Radiation. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR) 2000. Report to General Assembly. Annex J: Exposure and effects of the Chernobyl accident - New York: UN. - 2000. - P. 456 - 566.
25. Talerko N.N., Garger E.K. // Problemy bezpeky atomnykh elektrostantsiy i Chornobylya. - 2006. - Iss. 5. - p. 80 - 90. (Rus)
26. Talerko N.N // Journal of Environmental Radioactivity. - 2005. - Vol. 78(3). - P. 311 - 329.
27. Talerko N. // Journal of Environmental Radioactivity. - 2005. - Vol. 84. - P. 343 - 362.
28. Kljuchnikov A.A., Pazukhin E.M., Shigera Ju.M., Shigera V.Ju. Radioactive wastes of the nuclear power plants and their treatment methods. - Kiev: Institut problem bezopasnosti AES NAN Ukrainy, 2005. - 487 p. (Rus)

Надійшла 06.05.2015  
Received 06.05.2015