ЖУРНАЛ ФІЗИЧНИХ ДОСЛІДЖЕНЬ
т. 1, № 2 (1997) с. 169–180

JOURNAL OF PHYSICAL STUDIES
v. 1, No 2 (1997) p. 169–180

ПРОБЛЕМИ ВЗАЄМОДІЇ ВОДИ З ПАЛИВОВМІСНИМИ МАСАМИ В ОБ'ЄКТІ "УКРИТТЯ" ЧАЕС

І. Р. Юхновський, О. Є. Кобрин, В. В. Токаревський*, М. В. Токарчук
Інститут фізики конденсованих систем Національної академії наук України
Україна, UA–290011, Львів, вул. Свєнціцького, 1
**Державне спеціалізоване підприємство з переробки та захоронення радіоактивних і техногенних відходів "Техноцентр", Київська область, Чорнобиль, вул. Радянська, 41*
(Отримано 10 січня 1997)

Наведено основні форми перебування ядерного палива та пов'язані з ним головні фактори ядерної та екологічної небезпеки об'єкта "Укриття". Проаналізовано процеси взаємодії паливовмісних мас з водою на основі експериментальних даних.

Ключові слова: ядерна та екологічна безпека, паливовмісні маси, трансуранові елементи, радіоліз, гідроліз.

PACS number(s): 05.60.+w, 28.20.Gd, 66.20.+d

Чорнобильська катастрофа [1–10], нагромадження радіоактивних відходів із значним вмістом трансуранових довгоживучих елементів (Росія, США, Україна, Франція, Японія та ін.), перевиробництво плутонію Pu (США, Росія), виробництво у військових цілях [11] гостро поставили проблеми, з одного боку, розвитку нових підходів розв'язання проблем трансмутації і захоронення високоактивних відходів, а з іншого, — розвитку альтернативних шляхів створення ядерно–енергетичних комплексів, наприклад, рідинно–сольові ядерні реактори на торій–урановому циклі [12–16].

Головною проблемою на Чорнобильській АЕС вже протягом десяти років є ядерно–фізико–хемічний стан палива зруйнованого атомного реактора четвертого енергоблока. Одним із найважливіших після аварії питань було: скільки ядерного палива залишилось у зруйнованому реакторі? Чіткої відповіді на це запитання немає й досі. Друге найважливіше питання, яке різко змінило практично всі висновки "Технічного обґрунтування ядерної безпеки об'єкту "Укриття" [17], пов'язане з взаємодією паливовмісних матеріялів з водою всередині об'єкта "Укриття". Що ж власне відбувається внаслідок такої взаємодії і які процеси нас можуть чекати в недалекому майбутньому?

Щоб знайти відповідь на це запитання, необхідно чітко з'ясувати форми перебування ядерного палива та пов'язані з ним фактори ядерної й екологічної небезпеки об'єкта "Укриття".

На 26.04.1986 року на четвертому енергоблоці Чорнобильської АЕС було 231.5 тонн ядерного палива за ураном (розміщення і кількість його наведені в табл. 1), у шахті реактора — 190.3 т (215 т UO_2). В активній зоні реактора було до 700 кг плутонію (^{239}Pu~420 кг, ^{240}Pu~175 кг, ^{241}Pu~50 кг, ^{242}Pu~15 кг). Після аварії за офіційними даними МАГАТЕ [1–4] в об'єкті "Укриття" міститься ~96% ядерного палива. Протягом десяти років спочатку Комплексною експедицією Курчатівського інституту атомної енергії РАН, а з 1992 р. — МНТЦ "Укриття" НАН України з'ясовано, що шахта ядерного реактора практично порожня. Ядерне паливо в різних формах є: в Центральному залі — фраґменти активної зони, у приміщеннях паророзподільного коридора (ПРК), підапаратних приміщеннях (305/2, 304/2 та інших, 217/2), в басейні–барбатері (перший та другий поверхи) — лавоподібні паливовмісні маси — ядерна магма. За даними теплометричних вимірювань у ядерній магмі міститься 135±30 т UO_2 [18–21], на 1994 р. після додаткових вимірювань — 70÷90 т [21,22]. У табл. 2 наведено розміщення та кількість ядерного палива в лавоподібних масах, а в табл. 3 — його кількість після додаткових вимірювань. Зокрема, в табл. 4 [20] є дані розміщення в об'єкті "Укриття" різних форм знаходження ядерного палива та його кількість. За даними прямих вимірювань [23–26] — 23.8÷4.5 т UO_2. У табл. 5 наведені дані розміщення та кількість ядерного палива в лавоподібних масах, визначені прямим вимірюванням, а в табл. 6 — результати після додаткових вимірювань.

Отже, аналізуючи дані в табл. 1–6, і якщо в Центральному залі оцінювати кількість ядерного палива від 15 до 40 т, то грубі оцінки свідчать, що протягом 10 років не контролюється не менше 100 т ядерного палива! Безперечно, можна висловлювати критичні зауваження щодо обидвох методів вимірювань: теплометричного та прямого, однак проблема є і далі нез'ясованою.

Сьогодні визначені основні форми перебування ядерного палива після аварії на ЧАЕС в об'єкті

Номер прим.	Технологічне призначення приміщення	Кількість ядерного палива за ураном, т	Початкове збагачення за ^{235}U, %	Вигорання палива Мвт·доб./кг (U)
504/2	Шахта реактора (Активна зона) (А3)	190,3	2	11
505/4	Басейн витримки касет	19,4	2	11
914/2	Центральний зал (Ц.З.)	2,3	2	0
503/2	Приміщення підготовки свіжого палива	19,5	2	0
Всього		231,5	2	—

Табл. 1. Розміщення та кількість ядерного палива в четвертому енергоблоці перед аварією.

Приміщення	Висотна відмітка, м	Маса палива, т
Басейн барбатер:		
1-й поверх	0.00	1.5±0.5
2-й поверх	3.00	11±4
Паророзподільний коридор		
3-й поверх	6.00	23±7
Приміщення 305/2, 4-й поверх	10.00	75±25
Приміщення 304/3, 301/5, 301/5, 303/3	9.30–9.00	20±7
Приміщення 217/2	6.00	4±1
Всього 135±30 т, або якщо просумувати масу палива, 134.5±44.5 т		

Табл. 2. Кількість палива в ЛПМ.

Приміщення	К–ть	Метод визначення урану
Приміщення 305/2	75±25(-35)	Теплометричний
Паророзподільний коридор	25±11	Теплометричний з врахуванням палива в клапанах
ББ–2	8±3	Візуальний
ББ–1	1.5±0.7	
Приміщення 304/3, 301/5, 303/3, 301/6, 217/2	11±5	
Всього 125±44.7		

Табл. 3. Кількість палива в ЛПМ, визначена за допомогою додаткових методик вимірювання.

Приміщення (відмітка)	Вид паливовмісних мас (ПМ)	Кількість палива в ПМ, т (U)
Центральний зал (35.50) Інші верхні приміщення блока	Фраґменти активної зони засипані матеріялами. В області схеми "Є"	? 10–36
Центральний зал (35.БО)	Свіже паливо, заготовлене для завантаження	2–2.5
Південний басейн витримки (18.00–35.50)	Відпрацьоване паливо	20
Більшість приміщень	Ядерний пил. Гарячі паливні частинки	10
Підапаратне приміщення 305/2 (9.00) + схема "OP"	Лавоподібні паливовмісні маси (ЛПМ)-ядерна магма,	75+25
+ шахта реактора	фраґменти активної зони	
Паророзподільний коридор ПРК (6.00) з урахування ПВМ	Ядерна магма	25+11 т
Басейн–барбатер 2-й поверх (ББ–2)	Ядерна магма	8+3 т
Басейн–барбатер 1-й поверх (ББ–1)	Ядерна магма	1.5+0.7
304/3, 303/3, 301/5, 301/6, "Слонова нога" та ін.	Ядерна магма	11+5
Приміщення реакторного блока. ВСРО, машинний зал	Вода з розчиненими солями урану	3000 $м^3$ води

Табл. 4. Розподіл ядерної магми ЛПМ в приміщеннях об'єкта "Укриття".

Приміщення	Висотна відмітка, м	Маса палива, т
Басейн барбатер:		
1-й поверх	0.00	1.5±0.5
2-й поверх	3.00	11±4
Паророзподільний коридор		
3-й поверх	6.00	23±7
Приміщення 305/2, 4-й поверх	10.00	75±25
Приміщення 304/3, 301/5, 301/5, 303/3	9.30–9.00	20±7
Приміщення 217/2	6.00	4±1
		Всього 27.8±5.9

Табл. 5. Кількість палива в ЛПМ, визначена прямим вимірюванням.

Приміщення	Об'єм, $м^3$	К-ть діоксиду урану, т
ББ–1	2	0.4±0.1
ББ–2	10	2.2±0.3
Паророзподільний коридор	22.5	3.75±0.6
Приміщення 304/2	74.5	
Приміщення 304/3, 301/5, 303/3, 301/6	57	5.2±1.4
Приміщення 217/2 301/5, 303/3	3	0.3±0.1
Всього	169	23± 4.4

Табл. 6. Кількість палива в ЛПМ після проведення додаткових вимірювань.

Нуклід	Група	Період піврозпаду	Сумарна активність, Бк	Питома активність, Бк/г U	Повна маса, кг	Хемічний стан	Фізичний стан	Розчинність	Група радіаційної небезпеки
^{14}C	III	$5.73\cdot10^3$ р	$5\cdot10^3$	$6.25\cdot10^4$	0.3	Хемічно незв'язаний стан	У графітовій кладці	НР	Г
^{60}C	III	5.27 р	$1.0\cdot10^{16}$	$9.8\cdot10^5$	0.24	Металічні включення в стальні матриці, оксиди	У металоконструкціях, в осадах трубопроводів	НР	В
^{90}Sr	I	28.6 р	$1.9\cdot10^{17}$	$9.9\cdot10^8$	37	Оксиди, ураніти	Паливні фраґменти ЛПМ, пил	Р	Б
^{90}Y	I	61.4 год	$1.9\cdot10^{17}$	$9.9\cdot10^8$	$9.4\cdot10^{-3}$	Оксиди, можуть розчинятися в UO_2	/-/	НР	В
^{106}Ru (^{106}Rh)	I	368.2 д (29.2 с)	$7.2\cdot10^{15}$	$3.8\cdot10^7$	$2.9\cdot10^{-2}$ $2.7\cdot10^{-8}$	Металічні включення	/-/	НР	Б
^{125}Sb ^{125}Te	I	27.7 р (58 д)	$3.3\cdot10^{15}$	$1.7\cdot10^7$	$7.0\cdot10^2$ $9.8\cdot10^{-4}$	/-/	/-/	НР	Б
^{134}Cs	I	2.06 р	$1.2\cdot10^{16}$	$6.1\cdot10^7$	0.24	Пара при $T > 1000$, оксиди $T > 1000^o$C	/-/	Р	В
^{144}Ce (^{144}Pr)	I	284.3 д (17.28 х)	$5.6\cdot10^{15}$	$3.0\cdot10^7$	$2.4\cdot10^{-2}$ $1.0\cdot10^{-6}$	Оксиди, розчиняються в OU_2	/-/	НР	Б
^{147}Pm	I	2.62 р	$1.0\cdot10^{17}$	$5.3\cdot10^8$	2.9	/-/	/-/	НР	В
^{151}Sm	I	90 р	$6.1\cdot10^{15}$	$3.2\cdot10^7$	6.3	/-/	/-/	НР	В
^{154}Eu	I	8.8 р	$7.2\cdot10^{15}$	$3.8\cdot10^7$	0.74	/-/	/-/	НР	Б
^{155}Eu	I	4.96 р	$3.8\cdot10^{15}$	$20.1\cdot10^7$	0.22	/-/	/-/	НР	В
^{238}Pu	II	87.75 р	$1.4\cdot10^{15}$	$7.5\cdot10^5$	2.2	Оксиди можуть розчинятися частково в UO_2	/-/	НР	А
^{239}Pu	II	$2.41\cdot10^3$ р	$9.6\cdot10^{14}$	$5.1\cdot10^5$	420	/-/	/-/	НР	А
^{240}Pu	II	$6.54\cdot10^3$ р	$1.6\cdot10^{15}$	$8.2\cdot10^6$	190	/-/	/-/	НР	А
^{241}Pu	II	14.4 р	$1.3\cdot10^{17}$	$6.6\cdot10^8$	34	/-/	/-/	НР	Б
^{241}Am	II	432.2 р	$2.1\cdot10^{15}$	$1.1\cdot10^7$	17	/-/	/-/	НР	А
^{242}Pu	II	$3.76\cdot10^5$ р	$2.6\cdot10^{12}$	$1.3\cdot10^5$	18	/-/	/-/	НР	А
^{243}Am	II	$7.38\cdot10^3$ р	$9.7\cdot10^{12}$	$5.1\cdot10^5$	1.3	/-/	/-/	НР	А
^{244}Cm	II	18.11 р	$2.14\cdot10^{14}$	$1.3\cdot10^6$	$7.8\cdot10^{-2}$	/-/	/-/	НР	А

Табл. 7. Радіологічні властивості радіонуклідів, що є в об'єкті "Укриття" (на 26.04.1994 р.). Таблиця складена С. І. Івановим, Е. М. Пазухіним та В. Г. Щербіним. Питома активність наведена в Бк на 1 г ядерного палива, для ^{14}C — в Бк на 1 г графіту, для ^{60}Co — в Бк на 1 г сталі.

"Укриття" [20,27]:

- паливо у вигляді таблеток діоксиду урану UO_2 в твелах ТВС та їхні фрагменти — найбільш небезпечна форма, значна частина якої є в Центральному залі. За 10 років Центральний зал майже не досліджували у зв'язку зі складним радіаційним та технічним станом. Математичне моделювання [28,29] взаємодії фраґментів активної зони з водою для певного об'єму в Центральному залі свідчить, що значення ефективного коефіцієнта розмноження нейтронів можуть бути більші від одиниці;
- ядерний пил — гарячі паливні частинки, близько 15 т за ураном [20];

- лавоподібна ядерна магма — утворення, що виникло внаслідок вистигання розплаву ядерного палива з матеріялами засипки (доломіт, свинець, пісок, глина, сполуки з бором та ін.) [20,21,23–26]:
  - коричнева кераміка — коричнева склоподібна маса з середньою густиною від 1.6 до 3.15 г/см^3 та 10±2% вмістом ядерного палива з глибиною вигорання 12.6±0.4 (МВт доба)/(кг урану);
  - чорна кераміка — чорна склоподібна маса з середньою густиною від 2.0±0.2 до 2.9 г/см^3 та 5±1% вмістом ядерного палива з глибиною вигорання 12.5±0.5 (МВт доба)/(кг урану);
  - шлак і шлакоподібна гранульована ядерна магма;
  - пемзоподібна ядерна магма з середньою густиною 0.14 ÷0.18 г/ см^3 — утворення внаслідок взаємодії розплаву ядерного палива і води. В табл. 7 наведені радіологічні властивості радіонуклідів, які були в об'єкті "Укриття" на 26.04.1994 р. Характеристика різних зразків ядерної магми приведена в табл. 8, а в табл. 9 — значення за глибиною вигорання, процентним вмістом U та значення α-активності ізотопів $^{238--240}$Pu, ^{241}Am, ^{242}Cm, ^{244}Cm. Зокрема, в табл. 10 приведено процентний склад ізотопів ^{234}U, ^{235}U,^{236}U, ^{238}U та ^{238}U/^{235}U, ^{235}U/^{236}U у різних зразках: паливна частинка, ґрунт, лавоподібні паливвомісні маси. Середній хемічний склад лавоподібних мас та конструкційних матеріялів зруйнованого реактора наведені в табл. 11.
- водні розчини солей урану, плутонію, цезію, стронцію та інші, що утворилися внаслідок взаємодії ядерної магми з природною та техногенною водою. В приміщеннях об'єкта "Укриття" є близько 3000 м^3 води за даними ЧАЕС, причому близько 2000 м^3 сконцентровано в машинному залі, з яких контролюється практично близько 1000м^3. У водоймах не контролюється вміст солей бору та гадолінію як нейтронопоглиначів. Станом на 1994 рік верхня оцінка маси збагаченого урану у воді нижніх приміщень об'єкта "Укриття" — кілька кілограмів [20].У звіті ВЯРБ МНТЦ "Укриття" за 1994 рік наведено дані радіонуклідного складу води в об'єкті "Укриття" в різних точках відбору проб. Аналіз проб з різних місць об'єкта засвідчив, що протягом 1994 року спостерігалось тенденційне збільшення концентрації урану у водоймах. У табл. 12 для порівняння наведено мінімальний і максимальний питомі вмісти радіонуклідів у водоймах приміщень об'єкта "Укриття" за чотири роки [20] з поправкою на 1995 рік. Як бачимо, питома вага цезію, стронцію, плутонію та урану у воді збільшується. З листопада 1992 р. спостерігається збільшення (приблизно в 5 разів) максимальної питомої ваги урану і плутонію в пробах води. Середні значення концентрації урану у водоймах у різних приміщеннях об'єкта за роками наведені в табл. 13. Дані значень концентрацій ^{137}Cs, ^{134}Cs, ^{90}Sr, Pu та U у воді з різних точок відбору та часу протягом 1994 р. [20] з приміщень об'єкта "Укриття" наведені в табл. 14.

  Проби води з різних точок відбору на вміст хемічних елементів U, Pb, Zn, Ni, Fe проананлізовані рентґенофлюоресцентним методом, результати якого наведені в табл. 15. У табл. 16 наведена масова частка урану у воді за результатами різних методів вимірювань: лазернолюмінесцентним, спектрофотометричним, рентґенофлюоресцентним. За α-спектроскопічним та мас–спектроскопічним методами досліджено ізотопний склад урану в пробах води з об'єкта "Укриття" (табл. 17). Результати досліджень ([30], табл. 18), проведених 23.02.1995 р. свідчать про тенденційне збільшення концентрації урану у водоймах приміщень об'єкта "Укриття";
- мінеральні новоутворення урану на поверхні ядерної магми [20,25,31,32]:
  - $UO_3 2H_2O$ — епіянітиніт;
  - UO_2CO_3 — ретзерфордин;
  - $UO_3 1.6CO_3 1.91H2O$, $UO_4 4H_2O$ — студитіт;
  - $Na_4UO_2(CO_3)_3$ з вмістом до 55% UO_2. Ці мінерали добре розчиняються у воді. У звіті Інституту атомної енергії ім. І.В.Курчатова РАН [33] наведені результати досліджень жовтих та жовто–коричневих новоутворень [31] на поверхні ядерної магми приміщення 210/6 на вміст ізотопів урану ^{234}U, ^{235}U, ^{236}U. Відзначено відносно високий вміст урану ^{234}U, а ^{235}U/^{238}U в 1.6 раза перевищує нормальне співвідношення ^{235}U/^{238}U для РБМК–1000. Звідси випливає, що процеси утворення жовтих та жовто–коричневих кристалічних наростів на поверхні ядерної магми внаслідок складних фізико–хемічних процесів за участю води, приводять до концентрування у них урану. Оскільки новоутворення добре розчиняються у воді, то ми маємо один з активних механізмів виходу урану в концентрованому стані з ядерної магми у водойми об'єкта "Укриття";
- хемічні осади з вмістом урану, плутонію, кюрію, америцію, стронцію, цезію у водних розчинах в об'єкті "Укриття".

Номер проби	Індекс проби	Короткий опис зразків	Дата проведення аналізу
1	k-1	Застигла маса світло–сірого кольору, частково у склоподібному стані	02.89 р.
2	k-2	Маса сірого кольору з чорними вкрапленнями	02.89 р.
3	k-3	Графіт з вкрапленнями темних кульок розмірами частки, мм	02.89 р.
4	k-4	Склоподібна чорна маса подібна на антрацит	02.89 р.
5	k-5	Чорна маса подібна на бетон	12.88 р.

Табл. 8. Характеристика різних зразків ядерної магми.

Номер проби	1	2	3	4	5
Вигорання МВт доба/т U	11.8	10.8	12.6	13.5	12.6
Вміст U, %	2.26	6.33	0.56	5.62	8.81
α-активність ізотропів, Бк/г U					
^{238}Pu	$0.73 \cdot 10^7$	$0.72 \cdot 10^7$	$0.98 \cdot 10^7$	$0.64 \cdot 10^7$	$0.43 \cdot 10^7$
^{239}Pu	$0.53 \cdot 10^7$	$0.61 \cdot 10^7$	$0.80 \cdot 10^7$	$0.49 \cdot 10^7$	$0.29 \cdot 10^7$
^{240}Pu	$0.81 \cdot 10^7$	$0.93 \cdot 10^7$	$1.22 \cdot 10^7$	$0.74 \cdot 10^7$	$0.44 \cdot 10^7$
^{241}Am	$0.54 \cdot 10^7$	$0.57 \cdot 10^7$	$0.75 \cdot 10^7$	$0.44 \cdot 10^7$	$0.26 \cdot 10^7$
^{242}Cm	$0.38 \cdot 10^7$	$0.32 \cdot 10^7$	$0.46 \cdot 10^7$	$0.33 \cdot 10^7$	$0.21 \cdot 10^7$
^{244}Cm	$0.16 \cdot 10^7$	$0.15 \cdot 10^7$	$0.20 \cdot 10^7$	$0.12 \cdot 10^7$	$0.77 \cdot 10^7$

Табл. 9. Дані для проб за глибиною вигорання та α-активності.

Тип зразка	^{234}U, %	^{235}U, %	^{236}U, %	^{238}U, %	^{238}U/ ^{235}U,	^{235}U/ ^{236}U,
Паливна частинка	0.018	0.90	0.19	98.99	109.9	4.77
-//-	0.018	1.00	0.18	98.80	98.8	5.56
-//-	0.018	0.98	0.18	98.82	100.8	5.44
Ґрунт	0.016	1.17	0.16	98.65	84.32	7.32
Лавоподібні паливовмісні маси	0.015	1.03	0.18	98.77	95.8	5.58
-//-	0.015	0.97	0.17	98.84	102.4	5.53

Табл. 10. Ізотопний склад урану в паливовмісних частинках та ЛПМ, масова частка.

Елемент	Пісок	Серпентиніт	Будівельний бетон	Лавоподібні паливовмісні маси
O	50.0	52.0	47.7	Нема даних
Si	39.6	20.2	37.4	31.1
Mg	-	26.3	до 0.2	3.0
Ca	1.2	1.0	4.9	5.2
Na	1.8	-	1.8	4.0
K	1.3	-	1.4	1.3
U	-	-	-	7.0
Zr	-	-	-	3.6
F	1.4	Fe_2O_3 2.1–2.6 FeO 0.16–1.6	1.8	4.0
Al	3.7	1.0	3.8	3.8
Mn	-	-	не знайдено	0.37
Cr	-	-	/-/	0.19
Ni	-	-	/-/	0.18
Ba	-	-	/-/	0.13
Ti	-	-	/-/	0.12

Табл. 11. Хемічний склад лавоподібних паливовмісних мас та конструкційних матеріялів зруйнованого четвертого блока ЧАЕС, (мас. %).

Радіонукліди	Період спостереження	Мінімальне значення	Максимальне значення
^{137}Cs, Бк/л	1991	$9{\cdot}10^4$	$7{\cdot}10^7$
	1992	$2{\cdot}10^4$	$6{\cdot}10^7$
	1993	$3{\cdot}10^3$	$9{\cdot}10^9$
	1994	$2{\cdot}10^3$	$2{\cdot}10^8$
	1995		$6.3{\cdot}10^7$
^{90}Sr, Бк/л	1991	$8{\cdot}10^3$	$2{\cdot}10^6$
	1992	$1{\cdot}10^3$	$1{\cdot}10^6$
	1993	$1{\cdot}10^2$	$2{\cdot}10^6$
	1994	$6{\cdot}10^2$	$6{\cdot}10^6$
	1995		$5.8{\cdot}10^6$
Сумарно за плутонієм, Бк/л	1991		860
	1992		3400
	1993		2600
	1994		2600
	1995		1811
U мгк/л	1991		4900
	1992		23000
	1993	4.0	14000
	1994	5.0	18000
	1995		19000

Табл. 12. Питомий вміст радіонуклідів у водоймах приміщень об'єкта "Укриття".

Номер точки	Приміщення	Концентрація, мкг/л		
		1991	1992	1993
1	009/4(відм. 0.0)	18	400	1100
2	101/2(відм. 2.20)		80	100
3	01/3(відм. 2.3) скв.р.у.	490	820	760
4	009/4(відм. 3.0)		625	1260
5	012/13–15(південь)	6800		9300
6	012/15(північ)		11800	5900
7	012/16(північ)	4900	1200	5050
8	012/15(північ)	50		9200
9	012/14(північ)	400	240	5700
10	012/13(північ)	3200		13100
11	207/5 скв.3–9-Ш			1350
12	205/5 скв.3–9.65			353
13	405/2 (відм.12,5)		170	150
14	406/2 (відм.12,5)			215

Табл. 13. Концентрація урану у воді об'єкта "Укриття" (середнє значення за роками).

Точка відбору	Дата 1994 рік	Об'ємна активність, Бк/л				Уран мгк/л
		Cs-137, x10^7	Cs-134, x10^6	Sr-90, x10^5	Сум.Pu	
1	26.1	3	1.4	3.3	225	6980
1	23.03	0.3	0.11	0.031	76	148
2	23.01	3.1	1.4	4.4	525	4230
2	17.02	3.2	1.4	10.3	107	3822
2	06.06	4.1	1.6	23	1773	13180
2	05.07	3.6	1.4	1	-	2567
3	січень	0.6	0.26	0.38	74	5000
3	06.06	3.6	1.6	1	153	5700
4	06.06	4.7	1.9	58	269	18019
4	05.07	0.25	0.1	0.28	67	159
5	січень	6	1.7	0.47	300	1000
6	23.01	5.3	2.4	5.6	320	9270
6	24.05	5.4	2.1	23	266	7500
7	10.01	3.8	1.7	6.9	566	-
7	23.01	5.7	2.4	0.33	229	1113
7	26.04	4.4	1.7	0.15	233	918
7	23.01	5.7	2.4	0.33	229	1113
7	24.05	3.3	1.2	2.9	253	1008
8	07.12.93	0.00053	-	0.07	0.9	35
8	10.01	0.00018	-	0.015	0.7	-
8	16.03	0.00043	-	0.029	1.1	5
13	17.01	21	9.6	9.3	92	1364
13	17.02	0.037	0.013	0.037	41	1063
20	06.05	1.3	0.054	3.7	46	2163
20	24.05	5.5	2	5	93	314
20	26.06	3.3	1.2	2.4	-	2455
21	07.12.93	4.2	2	1.5	335	8200
21	23.01	3.6	1.6	6	440	8110
22	23.01	3	1.4	0.35	158	3140
22	07.12.93	2.6	1.3	0.51	300	4200
23	07.12.93	7.1	3.3	10	436	6700
23	23.01	5.5	2.6	1	407	7473

Табл. 14. Радіонуклідний склад води з приміщень об'єкта "Укриття".

Номер точки відбору	Концентрація хемічних елементів, мг/л				
	U	Pb	Zn	Ni	Fe
2	2.8	0.1	11.2	0.94	2.3
6	9.4	<0.05	23.6	4.30	6.8
7	1.1	7.5	0.8	1.30	5.2
20	2.6	0.05	0.5	1.50	2.1

Табл. 15. Результати аналізу проб води на вміст хемічних елементів рентґенофлюоресцентним методом.

Номер точки відбору	Лазернолюмінесцентний метод	Спектрофотометричний метод	Рентґенофлюоресцентний метод	Середні значення в точці за три місяці
1	7.0+0.6	6.9+0.6		6.0
2	3.5+0.4	3.0+0.3	2.8+0.8	3.7
6	9.3+0.5	7.0+0.7	9.4+3.0	10
7	1.6+0.3		1.1+0.3	1.2
20	1.3+0.3	0.8+0.1	2.6+0.8	0.8

Табл. 16. Масова частка урану у воді (мл/л) за результатами різних методів вимірювань.

Точка відбору	Альфаспектрометричний метод				Мас–спектрометричний метод		
	^{234}U, ат%	^{235}U, ат%	^{236}U, ат%	^{238}U, ат%	^{235}U, ат%	^{236}U, ат%	^{238}U, ат%
1	0.015	1.1	0.25	98.63			
2	0.014	1.2	0.24	98.52	1.23	0.23	98.54
6	0.015	1.1	0.25	98.63	1.11	0.27	98.62
7	0.014	1.0	0.26	98.73			
20	0.014	1.1	0.25	98.63	1.10	0.22	98.28
21	0.016	1.0	0.26	98.73			

Табл. 17. Ізотопний склад урану у пробах води з об'єкта "Укриття".

Лаб. No	Номер точки	Приміщення	Об'ємна активність, Бк/л, сум. Pu	Уран, мкг/л
1017	5	009/4, вісь І–Ж, ряд 49–50	2.8	8000
1016	9	101/2, вісь Е–Т, ряд 50–51	11.8	42.4
1015	20	001/3, труба з барбатера	49.6	313.6
1014	27	207/5, скв.3.065	12.6	379.2
1013	26	207/5, скв. 39	82	112.8
1012	24		7.8	108.4

Табл. 18. Радіонуклідний склад проб води з приміщень об'єкта "Укриття", 23.02.95 р.

Наведені тут основні форми перебування ядерного палива в об'єкті "Укриття" значною мірою зумовлюють його ядерну та екологічну безпеку. Необхідно чітко сформулювати основні фактори ядерної та екологічної небезпеки об'єкта "Укриття":

- ядерні перетворення у фраґментах активної зони (Центральний зал не досліджено), у лавах під час взаємодії з водою. Важливий внесок (α, n) реакцій [34,35], які ґенерують до

50% нейтронів у ядерній магмі, β-перехід плутонію ^{241}Pu в ^{241}Am — інтенсивне джерело α-частинок [34–36].
Активність ^{241}Am: на час аварії 26.04.1986 — 0.29 Бк/мкг палива, а через 10 років на 26.04.1996 — 17 Бк/мкг палива;

- лавоподібний твердий аморфний стан ядерної магми перетворюється у ядерний пил, розміри частинок якого поступово зменшуються, переходячи у дрібнодисперсну фракцію [20,27];

- ймовірність ядерних пилових викидів збільшується внаслідок руйнування під постійною дією радіації внутрішніх споруд та конструкцій об'єкта "Укриття";

- рухливість дрібнодисперсної фракції ядерного палива суттєво зростає внаслідок взаємодії з водою, що проникає всередину об'єкта "Укриття" через отвори, щілини у покрівлі і стінах та конденсації її з повітря на внутрішніх стінах об'єкта "Укриття";

- взаємодія води з лавоподібним аморфним середовищем веде до поступового вилуговування з нього радіоактивних елементів, які у водних розчинах утворюють гідроксокомплекси, що можуть виявляти колоїдні та полімерні властивості [27,32,37], а отже, концентруватись;

- взаємодія ядерної магми з водою внаслідок процесів α-, β-розпадів та γ-випромінювання приводить до радіолізу води. Продукти розкладу води (H_2O_2), радикали (OH, HO_2) активно беруть участь у процесах гідратації окисів урану, а атомарний водень H, групи OH — в процесах крихкості, руйнування магми [27,32,37,38]. Взаємодія цих процесів приводить до швидкого збільшення концентрації урану у воді (1991р. — до 4900 (мкг урану)/л, 1992р. — до 23000, 1993р. — до 14000, 1994р. — до 18000, 1995р. — до 19000;

- якщо ядерне паливо у лавоподібному аморфному середовищі перебуває у підкритичному стані, то нагромадження його у водоймах всередині об'єкта "Укриття" внаслідок взаємодії з водою може призводити до утворення полімерних структур та до збільшення концентрації радіоактивновмісних елементів у результаті набухання цих структур та випадання в осад разом з цілими фраґментами активної зони. Збільшується ймовірність локальних самопідтримуючих ланцюгових реакцій;

- радіоактивні елементи із "блочних" вод об'єкта "Укриття" можуть проникати у ґрунтові води і виноситись за межі об'єкта "Укриття". За даними досліджень проб води у свердловинах промислового майданчика об'єкта "Укриття" концентрація стронцію та цезію збільшується;

- окис тритію у водоймах об'єкта "Укриття".

Отже, фактор води в об'єкті "Укриття" гостро ставить проблему його безпеки. Якщо матеріяли засипки у зруйнованому реакторі сприяли значній деконцентрації паливних частинок і загасанню ядерних реакцій поділу, то процеси перетворення ядерної магми у пил та її взаємодії з водою значною мірою протилежні й можуть призводити до концентрування ядерного палива.

Особливо велике занепокоєння викликає стан фраґментів активної зони, окремі елементи і скупчення їх спостерігали після аварії навколо зруйнованого четвертого енергоблока. Фраґменти активної зони були викинуті вибухом на площадки вентиляційної труби, на покрівлі машинного залу третього енергоблока, однак, більша частина, очевидно, є в Центральному залі. В Центральний зал у процесі ліквідації наслідків аварії додатково були скинуті й фраґменти активної зони реактора з покрівель об'єкта.

У цьому контексті необхідно звернути особливу увагу на результати звітів [28,29]. У [28] були виконані комп'ютерні числові розрахунки коефіцієнтів ефективного розмноження нейтронів для системи, що моделює скупчення фраґментів активної зони реактора в різних приміщеннях об'єкта "Укриття". Розрахунки засвідчили, що для скупчень фраґментів у барабан–сепараторах з урахуванням гетерогенності структури значення $K_{еф}$ досягає 0.61, на схемі "Е" — до 0.88, а для скупчень у Центральному залі $K_{еф}$ досягає 0.97. У [39] зазначено, що під час будь-який переміщень конструктивних будівельних елементів об'єкта "Укриття", які можуть призвести до зміни геометричної форми скупчень паливовмісних матеріялів, найбільш небезпечні ті зміщення, які можуть призвести до утворення ядерної магми сферичної форми. Найбільш небезпечним є руйнування конструкції схеми "Е" і падіння на скупчення фраґментів активної зони в Центральному залі та об'єднання їх з ядерною магмою в приміщенні 305/2. У випадку залиття їх водою на 0.2 м [28] ця ситуація може призвести до СЯЛР. Комп'ютерні моделювання, зроблено в [28], свідчать про те, що залиття водою ядерної магми, фраґментів активної зони при збільшенні процентного внеску UO_2 приводить до збільшення $K_{еф}$ розмноження нейтронів, досягаючи в Центральному залі до 1.05 — надкритичного стану.

Підсумовуючи це, необхідно ствердити, що в об'єкті "Укриття" відбувається незворотний процес із зростаючою тенденцією виходу ядерного палива із ядерної магми у водойми всередині приміщень об'єкта. Це становить один з факторів ядерної небезпеки об'єкта "Укриття". Тому проблема взаємодії води з фраґментами активної зони реактора, лавами ядерної магми та ядерним пилом стає вкрай гострою, оскільки:

- вода, взаємодіючи з ядерною магмою, фраґментами активної зони, приводить до суттєвого збільшення ефективного коефіцієнта $K_{еф}$ розмноження нейтронів [29,39,20,40] і, як результат, — можливого виникнення локальних самопідтримуючих ядерних ланцюгових реакцій;

- вода шляхом її радіолізу та складних процесів вилуговування руйнує лави ядерної магми, спричинюючи неконтрольоване перенесення радіоактивних елементів усередині об'єкта і за його межами.

У результаті необхідно зробити важливий висновок, що основні форми перебування ядерного палива та зумовлені ним головні фактори ядерної та екологічної небезпеки об'єкта "Укриття" в основному пов'язані з наявністю води. Фактор води, який почали ґрунтовно й інтенсивно обговорювати за останні три роки, повністю змінив акценти "Технічного обґрунтування ядерної безпеки (ТОЯБ–1990 [17]) об'єкта "Укриття"".

Тут наведені далеко не всі фактори ядерної небезпеки на четвертому реакторі Чорнобильської АЕС. Вони свідчать про те, що "Укриття" необхідно демонтувати, і це справа вже не тільки України, але й Європи, або й світу. Бо слід завжди пам'ятати, скільки непоправної біди для людей багатьох держав (у період аварії групи рутенієвих "гарячих" частинок були виявлені на територіях Польщі, Швеції і Фінляндії, за даними Міжнародного агенства з атомної енергії радіоактивні повітряні маси спостерігали над територіями Німеччини, Австрії, Італії, у деяких країнах Азії та Північної Америки [41]) та навколишнього середовища завдали наслідки аварії.

Отже, проблеми об'єкта "Укриття" ті ж, що і в майбутньому кожної атомної електростанції у Росії, США, Франції, Німеччині, Японії, Україні, які вичерпали свої терміни експлуатації і повинні підлягати консервуванню, тільки з тією особливою різницею, що в об'єкті міститься ядерне паливо, остаточна кількість якого ще не з'ясована і перебуває в неконтрольованому стані. У зв'язку з цим потрібне негайне цілеспрямоване дослідження Центрального залу для визначення реальної кількості палива в об'єкті "Укриття".

На проблему води в об'єкті "Укриття" необхідно звернути увагу з погляду використання її для вилучення ядерного палива з об'єкта. Оскільки вода є одним із найважливіших факторів руйнування ядерної магми в об'єкті "Укриття" і виходу радіоактивних елементів у водойми, то контрольовано відкачуючи її з об'єкта у спеціально споруджені місткості, можна поступово забирати ядерне паливо, що є в пиловому (зрошування пилу) та склоподібному стані (відбувається інтенсивне руйнування склоподібних лав). Відкачану радіоактивну воду з об'єкта "Укриття" можна контролювати у спеціальних ємностях і готувати до поступової переробки на радіохемокомбінаті.

Об'єкт "Укриття" повинен стати місцем інтенсивних міжнародних, міждержавних наукових та практичних досліджень з метою його демонтування.

---

[1] Авария на Чернобыльской АЭС и ее последствия. Информация подготовленная для совещания экспертов МАГАТЭ. (25–29 августа, 1986 г.) (ГКИАЭ, Москва, 1986).

[2] А. А. Абагян, В. Г. Аманов, А. К. Гуськов, Атомная энергия **61**, 301 (1986).

[3] Итоговый доклад о совещании по рассмотрению причин и последствий аварии в Чернобыле. Серия издания по безопасности. Вена, IAEA, 75–INSAG–1, 1988.

[4] В. Г. Асмолов, А. А. Боровой и др., АЭ **64**, 3, (1988).

[5] А. А. Боровой, *Внутри и вне "Саркофага"*, Препринт ИАЭ им. И. В. Курчатова. Комплексная экспедиция. Чернобыль, 1990, 24 с; Природа **11**, 83 (1990).

[6] В. Г. Бар'яхтар, Доп. АН України **4**, 150 (1992).

[7] М. В. Пасічник, Доп. АН України **6**, 161 (1992).

[8] Е. О. Адамов, А. Е. Доморододов, Ю. В. Миронов, АЭ **75**, 336 (1993).

[9] С. С. Абалін, В. Г. Бар'яхтар, С. Т. Бєляєв, та ін., Доп. АН України **1**, 116 (1994).

[10] М. В. Пасечник, Доп. АН України **1**, 145 (1994).

[11] А. П. Трохименко, Атомная техника за рубежом **1**, 3 (1991).

[12] Н. А. Хижняк, *Пути создания безопасной экологически чистой атомной энергетики в Украине*, Препринт ННЦ ХФТИ–94–8, Харьков, 1994.

[13] В. Л. Блинкин, В. М. Новиков, *Жидкосолевые ядерные реакторы* (Атомиздат, Москва, 1978).

[14] В. М. Мурогов, М. Ф. Троянов, А. Н. Шмелев, *Использование тория в ядерных реакторах* (Энергоатомиздат, Москва, 1983).

[15] Л. П. Феоктистов, УФН **163**, 89 (1993).

[16] Ядерно–физические исследования отдела ядерной физики ННЦ ХФТИ в 1993 году. Обзор по данным отечественной и зарубежной печати 1959–1993 гг. Харьков, 1994.

[17] Техническое обоснование ядерной безопасности объекта "Укрытие" Под ред. С. Т. Беляева, А. А. Борового, К. Г. Волкова и др. (Чернобыльская КЭ при ИАЭ им. И. В. Курчатова, Москва, 1990).

[18] Чернобыль. Пять трудных лет: Сб. материалов (Москва, 1992).

[19] Избр. труды Междунар. конф. "Ядерные аварии и будущее энергетики". Уроки Чернобыля. (ИАЭ, Москва, 1992).

[20] Основные научно–технические результаты, полученные в ОЯРБ в 1994 г. Чернобыль, 1994.

[21] Э. М. Пазухин, Радиохимия **34**, 97 (1994).

[22] Е. Б. Андерсон, С. А. Богатов, А. А. Боровой и др., *Лавообразные топливосодержащие массы объекта "Укрытие"*, Препринт АН Украины 93–17. Киев, 1993.

[23] А. Н. Киселев, А. Ю. Ненаглядов, А. И. Сурин и др., *Экспериментальные исследования лавообразных топливосодержащих масс (ТСМ) на 4-м блоке ЧАЭС*, Препринт ИЭА–5533/3, Москва, 1992.

[24] А. Н. Киселев, К. П. Чечеров, *Лавообразные то-*

пливосодержащие массы на 4-м блоке Чернобыльской АЭС, Докл. на Междунар. симпоз. "Безопасность Укрытия – 94", 14–18 марта, 1994.

[25] А. Н. Киселев, А. И. Сурин, К. П. Чечеров, *Результаты дополнительных исследований мест скоплений лавообразных топливосодержащих масс на 4-м блоке ЧАЭС*, Препринт ИЭА–5783/3, Москва, 1994.

[26] А. Н. Киселев, АЭ **78**, 256 (1995).

[27] І. Р. Юхновський, М. В. Токарчук, *Проблеми 4-го енергоблоку Чорнобильської АЕС I. Огляд*, Препринт ІФКС–95–3У, Львів, 1995.

[28] Отчет о научно–исследовательской работе "Обоснование ядерной безопасности объекта "Укрытие" на основе исследования динамики аварийных процессов". Инв. № 1515, Минск, 1991.

[29] Расчетно–экспериментальные исследования характеристик нейтронных полей в местах скопления лавообразных топливосодержащих масс в помещениях 305/2 и 304/2 объекта "Укрытие". Отчет. Минск, 1994.

[30] Акт об определении радионуклидного состава проб воды из помещений объекта "Укрытие" 23.02.1995. Чернобыль, 1995.

[31] Е. Б. Андерсон, Б. Е. Бураков, Э. М. Пазухин, Радиохимия **5**, 135 (1992).

[32] І. Р. Юхновський, О. Л. Іванків, В. В. Ігнатюк, Г. С. Дмитрів, М. В. Токарчук, *Проблеми опису ядерно–фізико–хімічних процесів у ядерній магмі в об'єкті "Укриття" I. Процеси радіолізу в системі "ядерна магма–вода"*, Препринт ICMP–96–05U, Львів, 1996.

[33] Отчет Института Атомной энергии им. И. В. Курчатова РАН. инв. No 11.07/118 от 12.03.1991. Чернобыль, 1991.

[34] Разработка методики и оценка вклада (α, n)-реакций в интенсивность нейтронов, генерируемых в ЛТСМ в помещении 304/3 объекта "Укрытие". Техническая справка (НПЦ "Камертон", Минск, 1995).

[35] Оценка вклада (α, n) реакций в интенсивность нейтронов, генерируемых в ЛТСМ в помещениях 305/2 объекта "Укрытие". Техническая справка (НПЦ "Камертон", Минск, 1995, с. 1–6).

[36] І. Р. Юхновський, О. Є. Кобрин, А. О. Музичук, М. В. Токарчук, *Проблеми опису ядерно–фізико–хімічних процесів у ядерній магмі в об'єкті "Укриття" III. Статистичний опис процесів переносу в ядерній магмі*, Препринт ICMP–96–07U, Львів, 1996.

[37] Звіт відділу теоретичних проблем фізико–хімічних процесів в радіоактивномістких середовищах ВРТМ МНТЦ "Укриття" за 1995 рік. (Чорнобиль, 1995).

[38] І. Р. Юхновський, Р. І. Желем, І. П. Омелян, Є. М. Сов'як, М. В. Токарчук, *Проблеми опису ядерно–фізико–хімічних процесів у ядерній магмі в об'єкті "Укриття" II. Опис процесів дифузії в системі "ядерна магма–вода"*, Препринт ICMP–96–06U, Львів, 1996.

[39] Годовой отчет отдела разработки методик и систем анализа отделения радиационных технологий и материаловедения. МНТЦ НАН Украины "Укрытие", 1994.

[40] *Результаты обследования скоплений воды в помещениях объекта "Укрытие". Предложения контрмер. Отчет* (Чернобыль, 1993).

[41] *Чорнобыль: радиоактывное загрязнение природных сред*, (Гидрометеоиздат, Ленинград, 1990).

PROBLEMS OF INTERACTION BETWEEN WATER AND FUEL CONTAINING MASSES INSIDE THE OBJECT "SHELTER" OF CHORNOBYL NUCLEAR POWER PLANT

I. R. Yukhnovskii, A. E. Kobryn, V. V. Tokarevskii*, M. V. Tokarchuk
Institute for Condensed Matter Physics of the Ukrainian Acad. Sci.
1 Svientsitskii Str., Lviv, UA–290011, Ukraine
**State specialized enterprise on radoiactive and technogeneous wastes processing and burial "Techcenter"*
41 Radianska Str., Chornobyl, Kyiv Region, Ukraine

The main forms of the existence of nuclear fuel and major concomitant factors of nuclear and ecological danger of the object "Shelter" are presented. The processes of interaction between water and fuel containing materials have been analysed on the basis of experimental data.