

УДК 574

ЗАГРЯЗНЕНИЕ «ЧЕРНОБЫЛЬСКИМ» УРАНОМ ТЕРРИТОРИИ РЕСПУБЛИКИ БЕЛАРУСЬ

С.В. ПРИБЫЛЕВ, О.Н. НОВИЦКАЯ, В.П. МИРОНОВ

(Международный государственный экологический университет им. А.Д. Сахарова, Минск)

Приводится оценка тремя независимыми методами загрязненности «чернобыльским» ураном территории Республики Беларусь. Суммарный запас урана «чернобыльского» происхождения находится в пределах 1,5... 4Л % от содержания в активной зоне на момент аварии.

Одной из модификаций ядерного топлива, выброшенного в атмосферу из аварийного блока Чернобыльской АЭС, является топливо в виде пыли с характерными размерами частиц от долей микрона до сотен микрон (так называемые топливные «горячие» частицы (ТЧ). Они состоят из урановой матрицы (UO_2) и ряда включений в нее радионуклидов, изоморфных с ураном, т.е. образующих твердые растворы в UO_2 (табл. 1).

Таблица 1

Радионуклидный состав топливной частицы (UO_2)

Радионуклид	$T_{1/2}$	Тип и энергия излучения, МэВ	Вес, Моль	Активность, Бк
Уран-235	7,04 е + 8 лет	α 4,40	$2,25 \pm 0,11 e-16$	$4,23 \pm 0,21 e-9$
Уран-236	2,34 е + 7 лет	α 4,49	$3,44 \pm 0,17 e-17$	$1,94 \pm 0,10 e-8$
Уран-238	4,47 е + 9 лет	α 4,12	$2,1 \pm 0,1 e-14$	$6,2 \pm 0,3 e-8$
Нептуний-237	2,14 е + 6 лет	α 4,79 γ	$2,2 \pm 0,7 e-18$	$1,4 \pm 0,4 e-8$
Нептуний-238	2,12 сут	β 0,41	$1,5 \pm 0,4 e-21$	$3,5 \pm 1,0 e-3$
Нептуний-239	2,36 сут	β 0,12	$7,1 \pm 2,4 e-19$	$1,5 \pm 0,5$
Плутоний-238	87,7 лет	α 5,50	$2,0 \pm 0,6 e-19$	$3,0 \pm 1,0 e-5$
Плутоний-239	2,41 е + 4 лет	α 5,16	$4,8 \pm 1,4 e-17$	$2,7 \pm 0,8 e-5$
Плутоний-240	6,54 е + 3 лет	α 5,17	$1,9 \pm 0,6 e-17$	$3,8 \pm 1,0 e-5$
Плутоний-241	14,4 лет	β 0,0052	$6,1 \pm 1,5 e-18$	$5,6 \pm 1,7 e-3$
Кюрий-242	163 сут	α 6,11	$3,4 \pm 1,0 e-20$	$1,0 \pm 0,3 e-3$
Кюрий-243	28,5 лет	α 5,78	$5,2 \pm 1,6 e-22$	$2,4 \pm 0,7 e-7$
Кюрий-244	18,1 лет	α 5,80	$1,3 \pm 0,4 e-20$	$9,5 \pm 2,8 e-6$
Америций-241	4,32 е + 2 лет	α 5,49 γ	$1,5 \pm 0,4 e-19$	$4,6 \pm 1,4 e-6$
Америций-242m	1,52 е + 2 лет	α 5,21	$1,4 \pm 0,4 e-21$	$1,2 \pm 0,4 e-7$
Америций-243	7,38 е + 3 лет	α 5,28	$1,5 \pm 0,4 e-19$	$2,7 \pm 0,8 e-7$

Примечание. Радионуклидный состав приводится на момент аварии (26.04.1986). Для β даётся средняя энергия. Геометрический диаметр частицы 10^{-6} м; вес – $5,7 \cdot e-12$ г.

Из-за слабого взаимодействия с почвенной компонентой по причине инертности они не закреплялись в почве, а снова поднимались с пылью в воздух. Радиоактивная пыль, поднятая ветром с поверхности почвенного слоя, представляет опасность при попадании в органы дыхания, загрязнении водных резервуаров и растительности [1]. Данные по содержанию ТЧ в дальних радиоактивных следах Беларуси отсутствуют в доступной периодической литературе. Наиболее радиационно опасные радионуклиды стронция, плутония и америция в первичных выпадениях находились преимущественно в составе относительно инертных ТЧ и не проявляли своей химической индивидуальности. Под действием различных активных компонентов почвенного комплекса, процессов радиационного старения и окисления четырёхвалентного урана происходит деструкция ТЧ, что приводит к изменению их дисперсности и выходу радионуклидов из топливной матрицы в почвенный раствор. В результате этих процессов увеличивается доля радионуклидов в подвижной форме, что делает их биологически доступными, и, следовательно, более опасными для человека. В связи с этим изучение физико-химических свойств данных частиц, их миграционных характеристик и плотности загрязнения территории Беларуси носит не только научный, но и практический интерес.

Для оценки радиоизотопных отношений в топливных частицах (точнее для корректного расчета коэффициентов фракционирования радионуклидов) важно знать степень выгорания ядерного топлива. При определении количеств выпавших трансурановых элементов и других изотопов используется сред-

нее выгорание по активной зоне аварийного 4-го блока на момент аварии с соответствующими изотопными корреляциями для этого выгорания. Эта величина составила 11,4 МВтеут/кг U [2]. Однако из-за неоднородности выгорания топлива по объему активной зоны реактора на момент аварии, количества выброшенного в атмосферу топлива и особенностей временного протекания аварии для разных площадок с радиоактивными выпадениями возможны отличия по глубине выгорания топлива. Выполненные ранее исследования [3] по определению изотопного состава урана в почвах ближней зоны ЧАЭС, с разными способами определения глубины выгорания топлива, показали большой разброс глубин выгорания в интервале от 0,8 до 15,2 МВт сут/кг U.

Основу методики [2] определения глубины выгорания и количества уранового топлива в почвенных выпадениях после катастрофы на ЧАЭС с помощью трасера урана-236 составляют: расчетные корреляции между изотопами урана в активной зоне реактора в зависимости от глубины выгорания топлива, а также экспериментальные данные по соотношению в пробах почвы природных изотопов и техногенных выбросов ^{236}U , ^{235}U , ^{238}U . Зависимости между концентрациями изотопов урана в пробах почвы отражены в следующих формулах:

$$\frac{C_2(U^{236})}{C_1(U^{238}) + C_2(U^{238})} = \alpha; \quad (1)$$

$$\frac{C_1(U^{235}) + C_2(U^{235})}{C_1(U^{238}) + C_2(U^{238})} = \beta; \quad (2)$$

$$\frac{C_1(U^{235})}{C_1(U^{238})} = \delta \text{ (природное соотношение изотопов);} \quad (3)$$

$$\frac{C_2(U^{235})}{C_2(U^{236})} = 154B^{-1,346}; \quad (4)$$

$$\frac{C_2(U^{238})}{C_2(U^{236})} = 4180B^{-0,817}, \quad (5)$$

где C_1 – концентрация в почве урана, до аварии на ЧАЭС, г/кг; C_2 – концентрация в почве урана, выпавшего после аварии на ЧАЭС, г/кг; B – глубина выгорания топлива, кг/т урана.

Измерения изотопных соотношений урана α , β и концентраций $C_2(U^{236})$ осуществляются с помощью масс-спектрометра. Глубина выгорания топлива B для рассматриваемой пробы почвы определяется из уравнения:

$$154 \cdot B^{-1,346} - 4180 \cdot \delta \cdot B^{-0,817} = \frac{(\beta - \delta)}{\alpha}. \quad (6)$$

Таким образом, общее количество облученного урана в почве можно определять по концентрации урана-236 из приведенных выше соотношений.

В работе [2] представлены результаты определения глубины выгорания топлива для проб почвы, отобранных на разных расстояниях от ЧАЭС на западном и северном следах (табл. 2).

Таблица 2

Уровни выпадения урана и глубина выгорания топлива на разных расстояниях от ЧАЭС

Место отбора пробы	Направление от ЧАЭС	Расстояние от ЧАЭС, км	Глубина выгорания топлива, МВт-сут/кг U
Чистоголовка (торф)	Западный след	7	9,1
Чистоголовка (подзол)	Западный след	7	9,3
Хатки (подзол)	Западный след	24	9,2
Припять (пляж)	Северный след	4	9,3
Масаны (сосняк)	Северный след	12,5	9,9
Масаны (поле)	Северный след	12,5	9,3
Масаны (березняк)	Северный след	18	9,6
Кулажин (песок)	Северный след	18	9,2
Кулажин (торф)	Северный след	18	9,3
Лесок (торф)	Северный след	24	9,4
Лесок (сосняк)	Северный след	24	9,4
Хойники (метеостанция)	Северный след	53	7,7

Анализ представленных данных показал, что в 30-километровой зоне ЧАЭС среднее выгорание топлива составляет $9,4 \pm 0,3$ МВтсут/кг U. Это выгорание на 17 % ниже среднего расчетного выгорания в 4-м блоке ЧАЭС на момент аварии. В районе г.п. Хойники наблюдается понижение глубины выгорания до 7,7 МВт сут/кг U. Это свидетельствует о том, что корреляционные коэффициенты для определения загрязнения территории трансурановыми элементами поверхности почвы можно использовать только для 30-километровой зоны.

С целью продолжения исследований по уточнению глубины выгорания топлива в выпадениях за пределами 30-километровой зоны необходимо знать, какой минимум концентрации ТЧ должен быть в пробе почвы массой 10 г, чтобы иметь возможность проводить измерения при максимальной чувствительности современных методов. Необходимо также оценить содержание «чернобыльского» урана в выпадениях на территории Беларуси.

Количество частиц «чернобыльского» урана на единицу массы почвы определяется из отношения концентрации урана к весу одной частицы. Содержание «чернобыльского» урана в верхнем слое дерново-подзолистой почвы толщиной 10 см, составляет около 90 %. Удельный вес UO_2 (ρ_m) равен $10,9$ г/см³, размер ($2r$) – около 0,2 мкм, тогда вес ТЧ определяется как $4/3\pi r^3 \rho_m$ или $4/3 \cdot 3,14 \cdot (0,1 \cdot 10^{-4})^3 \cdot 10,9 \approx 4,5 \cdot 10^{-14}$ г.

В табл. 3 приведены концентрации частиц в пробе заданной массы в зависимости от концентрации урана в почве, которая зависит от величины изотопного отношения $^{236}U/^{238}U$. Принцип расчета отношения $U_{черн}/U_{пр}$ приведен ниже.

Таблица 3

Число частиц в пробах почвы при различных концентрациях «чернобыльского» урана

$^{236}U/(^{238}U_{пр} + ^{238}U_{черн})$	$U_{черн}/U_{пр}$, %	Число частиц в пробе массой 10 г
$7,1 \cdot 10^{-5}$	10	$\approx 2,2 \cdot 10^7$
$7,1 \cdot 10^{-6}$	1	$\approx 2,2 \cdot 10^6$
$7,1 \cdot 10^{-7}$	10^{-1}	$\approx 2,2 \cdot 10^5$
$7,1 \cdot 10^{-8}$	10^{-2}	$\approx 2,2 \cdot 10^4$
$7,1 \cdot 10^{-9}$	10^{-3}	$\approx 2,2 \cdot 10^3$

Примечание. $U_{черн}$ – количество «чернобыльского» урана;
 $U_{пр}$ – количество природного урана.

Таким образом, в дальних следах в пробах почвы весом 10 г содержится не менее 10 тысяч топливных частиц, а в ближней зоне - миллионы топливных частиц, что означает, что количество частиц в пробах, отобранных в дальних и ближних следах, достаточно для усреднения.

Рассматривая поведение выброшенного облученного топлива, предполагается, что весь уран выпал в радиоактивных пятнах, что подтверждают проведенные измерения содержания «чернобыльского» урана в 30 км зоне [4] и в дальних следах [5].

Первое экспериментальное определение урана-236 в дальних радиоактивных пятнах было выполнено в ANSTO (Австралия) на высокочувствительном масс-спектрометре в 2001 г. по договору о международном сотрудничестве [5]. Проанализировано около 10 проб почвы, отобранной в Могилевской обл. на расстоянии около 240 км к северу от ЧАЭС. В слое дерново-подзолистой почвы толщиной около 40 см изотопное отношение $^{236}U/^{238}U$ в среднем составило около 610^8 г/г. В 30 км зоне, согласно данным [6], замеренным на масс-спектрометре в пробах почв, взятых на глубине 20 см, данное изотопное отношение составляет в среднем около 10^5 . При этом измерения 10... 15 проб почв, взятых на разной глубине с интервалом 5 см, показали существенный разброс величины изотопного отношения $^{236}U/^{238}U$ в пределах 10^4 ... 10^6 . Для территории, прилегающей к 30 км зоне, взяли промежуточное значение изотопного отношения $^{236}U/^{238}U$, учитывая тот факт, что концентрация облученного урана в радиоактивных пятнах изменяется аналогично изменению концентрации плутония-239, 240.

Оценить содержание «чернобыльского» урана в слое почвы толщиной около 10 см в дальних пятнах можно следующим образом:

Поскольку $\frac{^{236}U}{^{238}U_{черн} + U_{пр}} = 6 \cdot 10^{-8}$ г/г, тогда, преобразовав его, получим:

$$\frac{^{236}U}{^{238}U_{черн}} = \frac{6 \cdot 10^{-8} \cdot ^{238}U_{черн} + 6 \cdot 10^{-8} \cdot ^{238}U_{пр}}{^{238}U_{черн}}$$

Учитывая, что в активной зоне на момент аварии $\frac{^{236}\text{U}}{^{238}\text{U}_{\text{ЧЕРН}}} = 1,4 \cdot 10^{-3}$ г/г, получим выражение $1,4 \cdot 10^{-3} = 6 \cdot 10^{-8} \left(1 + \frac{^{238}\text{U}_{\text{ПР}}}{^{238}\text{U}_{\text{ЧЕРН}}} \right)$. Если принять $\frac{^{238}\text{U}_{\text{ПР}}}{^{238}\text{U}_{\text{ЧЕРН}}} = k$, тогда $\frac{1,4 \cdot 10^{-3}}{6 \cdot 10^{-8}} = 1 + k$. Откуда $k = 0,23 \cdot 10^5 - 1$ и $\frac{^{238}\text{U}_{\text{ЧЕРН}}}{^{238}\text{U}_{\text{ПР}}} = 4,35 \cdot 10^{-5}$.

Так как $^{238}\text{U}_{\text{ПР}} \approx 1$ г/т, то $^{238}\text{U}_{\text{ЧЕРН}} = 4,35 \cdot 10^{-5} \cdot 1$ г/т. Учитывая, что плотность дерново-подзолистой почвы составляет около $1,18$ т/м³, и площадь данной территории составляет 40 тыс. км² [7], тогда $^{238}\text{U}_{\text{ЧЕРН}} = 4,35 \cdot 10^{-5} \cdot 0,118 \cdot 40 \cdot 10^3 \cdot 10^6 \approx 205 \cdot 10^3$ г. Аналогичным образом оценено содержание «чернобыльского» урана для остальных зон. Поскольку облученный уран на территории Беларуси представлен в основном в виде двуокиси урана (IV), оцененные значения будут несколько больше.

Возможен и другой метод оценки содержания «чернобыльского» урана, учитывая тот факт, что уран и плутоний выпали вместе в составе топливной частицы.

Активность $^{239,240}\text{Pu}$, выпавшего на поверхность почвы Республики Беларусь в результате катастрофы на ЧАЭС, по данным работы [8], составляет 23 ТБк, при этом примерно половина ТУЭ чернобыльского происхождения выпала на относительно небольшую территорию, прилегающую к ЧАЭС, а другая рассеялась по всей территории республики. По другим данным [9], интегральный запас $^{239,240}\text{Pu}$ в слое почвы толщиной 30 см всей 30 км зоны составляет около 43 ТБк (на $01.01.2000$), из них около 15 ТБк приходится на часть 30 км зоны Украины и, следовательно, примерно 28 ТБк – на 30 км зону территории Беларуси, т.е. большая часть общего запаса $^{239,240}\text{Pu}$.

Если распределить 23 ТБк пропорционально активностям ^{239}Pu и ^{240}Pu , находившимся в составе ТЧ на момент аварии, то активности ^{239}Pu и ^{240}Pu , выпавших вместе с ураном на поверхность почвы Беларуси, составят примерно 10 ТБк и 13 ТБк соответственно. Количество ^{239}Pu и ^{240}Pu по массе можно определить по формуле, которая следует из закона радиоактивного распада: $m = (A \cdot M) / (\lambda \cdot N_A)$, где A – активность элемента, Бк; M – молярная масса, моль; λ – постоянная радиоактивного распада; N_A – постоянная Авогадро. Таким образом, $m(^{239}\text{Pu}) \approx 4,3$ кг, $m(^{240}\text{Pu}) \approx 1,54$ кг.

^{238}U и ^{239}Pu , ^{240}Pu , находившиеся в составе ТЧ на момент аварии, хорошо соотносятся по весу.

Так, используя экспериментальные данные, отношения будут следующие:

$$\frac{^{238}\text{U}}{^{239}\text{Pu}} = \frac{2,08 \cdot 10^{-14} \text{ моль} \cdot 238 \text{ г} / \text{ моль}}{5,1 \cdot 10^{-17} \text{ моль} \cdot 239 \text{ г} / \text{ моль}} = 406,1;$$

$$\frac{^{238}\text{U}}{^{240}\text{Pu}} = \frac{2,08 \cdot 10^{-14} \text{ моль} \cdot 238 \text{ г} / \text{ моль}}{1,8 \cdot 10^{-17} \text{ моль} \cdot 240 \text{ г} / \text{ моль}} = 1145,9.$$

Используя полученные соотношения и массы ^{239}Pu и ^{240}Pu , можно определить количество «чернобыльского» ^{238}U , выпавшего на поверхность почвы Беларуси в результате аварии.

Таким образом, $^{238}\text{U}_{\text{ЧЕРН}} = \frac{^{238}\text{U}_{\text{ЧЕРН}}}{^{239}\text{Pu}} \cdot m(^{239}\text{Pu}) + \frac{^{238}\text{U}_{\text{ЧЕРН}}}{^{240}\text{Pu}} \cdot m(^{240}\text{Pu}) = (406,1 \cdot 4,3 \text{ кг}) + (1145,9 \cdot 1,54) \approx 3511$ кг или около $3,5$ т. В пересчете на двуокись урана эта величина составит около $3,9$ т.

Количество «чернобыльского» ^{238}U , рассчитанное аналогичным образом исходя из интегрального запаса $^{239,240}\text{Pu}$ в слое почвы толщиной 30 см 30 -километровой зоны территории Беларуси и равного 28 ТБк, составляет около $4,9$ т.

Оценки тремя независимыми методами представлены в табл. 4.

Таблица 4

Загрязнение территории Беларуси «чернобыльским» ураном

Территория загрязнения	Площадь, тыс. км ² [7]	$^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ г/г	Оценка мощности выпадений «чернобыльского» урана на территорию Республики Беларусь в пересчете на двуокись урана, т		
			по ^{236}U	по $^{239,240}\text{Pu}$	
Дальние пятна	40	$6 \pm 3 \cdot 10^{-8}$	$0,24 \pm 0,12$	1,9	4,0
Зона, прилегающая к 30-километровой зоне	6,0	$3,0 \pm 1,5 \cdot 10^{-6}$	$1,8 \pm 0,9$		
30-километровая зона	1,4	$1,0 \pm 0,5 \cdot 10^{-5}$	$1,4 \pm 0,7$	2,0	4,9 [9]
В целом по радиоактивным следам Беларуси			$3,2 \pm 1,6$	3,9 [8]	8,9

Из таблицы видно, что загрязнение территории Республики Беларусь облученным ураном по разным независимым оценкам находится в пределах 1,5...4,1 % от содержания в топливе активной зоны на момент аварии.

Анализ результатов показывает, что оценка выброса облученного урана по урану-236 (3,2 т) и по плутонию-239, 240 (3,9 т) в пределах погрешности результата анализа хорошо совпадают. Погрешность результата составляет около 50 % аналогично результатам расчетов, представленных в докладе МАГАТЭ. Такая величина погрешности обусловлена высокой неравномерностью степени выгорания топлива на загрязненной территории. Для учета неоднородностей требуется проведение дополнительных исследований.

Различие с оценкой 8,9 т, рассчитанной по данным, приведенным в работе [9], предположительно вызвано тем, что данные по загрязнению территории белорусской части 30-километровой зоны $^{239,240}\text{Pu}$, получены исходя из изотопного отношения $^{144}\text{Zr}/^{239,240}\text{Pu}$, а данные, приведенные в работе [8], получены с помощью радиохимического анализа.

До аварии в здании 4-го блока было 214,6 т топлива ($^{238+235}\text{UO}_2$), из них в активной зоне 190,2 т и 24,4 тонны в трёх технологических помещениях [10].

Таким образом, мощность выпадения облученного урана на территории Республики Беларусь находится в пределах 1,5...4,1 % от содержания в топливе активной зоны на момент аварии, но эти данные требуют уточнений.

ЛИТЕРАТУРА

1. Salbu B., Krekling T. And others «Hot» particle characteristics of importance for mobility and ecosystem transfer for associated radionuclides. The 4th Int. Conf. on Envir. Rad. In the Arctic., Norway, Belgium, France.
2. Определение глубины выгорания топлива в выпадениях на территории Беларуси, после катастрофы на ЧАЭС, с помощью трассера U-236. / В.П. Миронов, Ж.Л. Матусевич, В.П. Кудряшов и др. // Сахаровские чтения 2002 года: экологические проблемы XXI века: Тез. докл. междунар. конф., Минск, 17 - 18 мая 2002 г. - Мн., 2002.
3. Ananich P.I., Zhuravkov V.V., Determination of spent uranium fuel and calculation of its burn-up in nuclear fall-outs after the accident at Chernobyl NPP. 2004 Winter Conference on Plasma Spectrochemistry Fort Lauderdale, Florida, January 5 — 10, 2004.
4. Determination of irradiation reactor uranium in soil samples in Belarus using ^{236}U as irradiated uranium tracer / V.P. Mironov, J.L. Matusevich, V.P. Kudrjashov et al. // J. Environ. Monit. - 2002. - № 4. - P. 997 - 1002.
5. Research of vertical migration of Chernobyl uranium in soils with help AMS measurements of U-236 from contamination regions. Collaboration project ANSTO. June 2001.
6. Determination of $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ isotope ratio in contaminated environmental samples using different ICP-MS instruments / S. Boulyga, J. Matusevich, V. Mironov et al. // J. Anal. At. Spectrom. - 2002. - № 17. - P.958 - 964.
7. Чарнобыль. Погляд праз дзесяцігоддзе: Даведнік / Беларус. Энцыкл.; Рэд. калегія: Я.В. Малашэвіч і інш.; Мн.: БелЭн, 1996. - С. 51.
8. Кудряшов В.П., Конопля Е.Ф., Миронов В.П. Экологические последствия поступления ТУЭ в результате чернобыльской катастрофы на территорию Беларуси // Преодоление последствий катастрофы на ЧАЭС: состояние и перспективы: Сб. науч. тр. II междунар. науч.-практ. конф. / Под. ред. В.Е. Шевчука, В.Л. Гурачевского, Э.К. Капитоновой. - Гомель: Ин-т радиобиологии, НАНБ, 2004. - С. 316.
9. Выброс и загрязнение территории радионуклидами в составе топливной частицы / В.А. Кашпаров, С.М. Лундин, С.И. Зварич и др. III съезд по радиационным исследованиям (радиобиология и радиоэкология): Сб. науч. тр. - Киев, 2003. - С. 384.
10. Borovoi A.A., Gadrinski A.Ju. Chernobyl 15 year after: radioactivity release // Nuclear Europe Wordscan. - 2001.-№ 1 -2. -P. 34 -35.