

ДП “ДЕРЖАВНИЙ НАУКОВО-ІНЖЕНЕРНИЙ ЦЕНТР
СИСТЕМ КОНТРОЛЮ ТА АВАРІЙНОГО РЕАГУВАННЯ”
МІНЕНЕРГОВУГІЛЛЯ УКРАЇНИ

ЯДЕРНА ЕНЕРГЕТИКА ТА ДОВКІЛЛЯ

Науково-виробничий журнал

NUCLEAR POWER AND THE ENVIRONMENT

Scientific and Industrial Journal

№ 2 (4), 2014

Виходить 1—4 рази на рік

Заснований у травні 2012 року

Київ — 2014

Науково-виробничий журнал “Ядерна енергетика та довкілля” публікує науково-дослідні, інженерно-технічні та експертно-аналітичні розробки у сфері радіаційної фізики, ядерної, радіаційної та екологічної безпеки, радіаційного матеріалознавства, безпеки та надійності ядерно-енергетичних установок, аналітичної та радіаційної хімії, використання нанотехнологій, ІТ-технологій і промислових технологій та з інших напрямків досліджень, які можуть бути використані для розвитку ядерно-енергетичної галузі, а також інформує населення щодо результатів контролю та моніторингу стану довкілля.

У журналі друкуються статті, які є завершеними роботами, що містять нові результати теоретичних та експериментальних досліджень і становлять інтерес для науково-технічних працівників ядерно-енергетичної галузі та широкого кола читачів, які цікавляться ядерною енергетикою та екологічними проблемами довкілля.

Статті приймаються до друку українською, російською та англійською мовами.

ЗАСНОВНИКИ:

ДП “Державний науково-інженерний центр систем контролю та аварійного реагування” (ДП “ДНІЦ СКАР”) Міненерговугілля України та Українське ядерне товариство (УкрЯТ)

Редакційна колегія:

Головний редактор: *Васильченко В. М.*, канд. техн. наук (ДП “ДНІЦ СКАР”)

Заступник головного редактора: *Масько О. М.*, канд. хім. наук (ДП “ДНІЦ СКАР”)

Відповідальний секретар: *Горбиць Л. В.* (ДП “ДНІЦ СКАР”)

Барбашев С. В., д-р. техн. наук (Українське ядерне товариство)

Бондарьков М. Д., канд. фіз.-мат. наук (ДНДУ “Чорнобильський центр з проблем ядерної безпеки, радіоактивних відходів та радіоекології”)

Громов Г. В., канд. техн. наук

Дубковський В. О., д-р техн. наук, професор (Одеський національний політехнічний університет)

Корольов О. В., д-р техн. наук, професор (Одеський національний політехнічний університет)

Куц В. М., канд. фіз.-мат. наук (ДП “ДНІЦ СКАР”)

Литвинський Л. Л., д-р фіз.-мат. наук (ТОВ “АЕСКАР”)

Маслов О. В., д-р техн. наук, професор (Одеський національний політехнічний університет)

Неклюдов І. М., академік НАНУ, д-р фіз.-мат. наук (ІНЦ “ХФТГ” НАНУ)

Новосолов Г. М., канд. фіз.-мат. наук (ДП “ДНІЦ СКАР”)

Носовський А. В., д-р техн. наук, професор (ДП “ДНТЦ ЯРБ”)

Печериця О. В., канд. техн. наук (ДП “ДНТЦ ЯРБ”)

Протасов О. О., д-р біол. наук, професор (ДУ “Інститут гідробіології НАН України”)

Пуртов О. А., канд. фіз.-мат. наук (ДП “ДНІЦ СКАР”)

Пшеничний В. А., канд. фіз.-мат. наук (ДП “ДНІЦ СКАР”)

Пишико Г. М., д-р хім. наук (ДУ “Інститут колоїдної хімії та хімії води ім. А. В. Думанського НАН України”)

Рязанов В. В., д-р фіз.-мат. наук (Інститут ядерних досліджень НАН України)

Сандул Г. О., канд. фіз.-мат. наук

Сімонов І. М., канд. техн. наук

Харченко В. С., д-р техн. наук, професор (Національний аерокосмічний університет ім. М. Є. Жуковського “Харківський авіаційний інститут”)

Ястребенецький М. О., д-р техн. наук, професор (ДП “ДНТЦ ЯРБ”)

Адреса редакції:

Державний науково-інженерний центр
систем контролю та аварійного реагування
проспект Героїв Сталінграду, 64/56
м. Київ, 04213
Тел./факс: (380-44) 411-92-70
Електронна адреса: npe@dnic.kiev.ua
<http://dnic.com.ua>

Editor's address:

State Scientific Engineering Center
of Control Systems and Emergency Response
Geroiv Stalingrady, 64/56
Kyiv, 04213, Ukraine
Tel./fax: (380-44) 411-92-70
E-mail: npe@dnic.kiev.ua
<http://dnic.com.ua>

Друкується за постановою науково-технічної ради ДП “ДНІЦ СКАР” (№ 16 від 22.12.2014)

Журнал включено до Переліку наукових фахових видань України

наказом Міністерства освіти і науки України № 1528 від 29.12.2014

Свідectво про державну реєстрацію друкованого засобу масової інформації

Серія КВ № 18914-7704пр від 06.05.2012

ЗМІСТ

CONTENTS

Масько А. Н., Пуртов О. А. Современная практика выполнения оценок затрат на снятие с эксплуатации энергоблоков АЭС	4	Masko O., Purtov O. Modern practice of cost estimates for the NPP units decommissioning	4
Барбашев С. В., Лисиченко Г. В., Попов О. О. Розширення функціональних можливостей радіоекологічного моніторингу природного середовища в районах розташування АЕС щодо прийняття управлінських рішень	12	Barbashev S., Lysychenko V., Popov A. Expanding the functionality of radiological monitoring of the environment around nuclear power plants for decision-making purposes	12
Klyuchnykov O. O., Skalozubov V. I., Gablaya T. V., Vascshenko V. N., Kozlov I. L., Gerasimenko T. V., Hudyma A. A., Skalozubov K. V. On the necessity to enhance general safety requirements for nuclear power plants	19	Klyuchnykov O., Skalozubov V., Gablaya T., Vascshenko V., Kozlov I., Gerasimenko T., Hudyma A., Skalozubov K. On the necessity to enhance general safety requirements for nuclear power plants	19
Васильченко С. В., Козлов И. Л., Кочнева В. Ю., Скалоzubov В. И. О необходимости совершенствования методов квалификации быстродействующего запорно-отсечного клапана на воду / пароводяную среду	22	Vasilchenko S., Kozlov I., Kochnyeva V., Skalozubov V. On the need to improve methods of qualification of main steam isolation valve for water / steam-water medium	22
Давидов М. М., Протас Т. И., Савущик М. П. Накопичення радіонуклідів в основних компонентах лісових екосистем Київських Полісся та Лісостепу	25	Davidov M., Protas T., Savuschik M. Radionuclides accumulation in the basic components of forests ecosystem in Kiev Polissya and Lisostep forest	25
Пшинко Г. Н., Кобец С. А., Федорова В. М. Сорбция-десорбция ^{137}Cs и ^{90}Sr в процессах миграции и дезактивации	32	Pshinko G., Kobets S., Fedorova V. Sorption-desorption of ^{137}Cs and ^{90}Sr in the migration and deactivation processes	32
Ярмош І. В. Порівняльна оцінка значень коефіцієнтів розподілення ^{90}Sr на прикладі ґрунтів Чорнобильської зони відчуження	40	Yarmosh I. Comparative analysis of values of ^{90}Sr distribution coefficients as in the case of soils of Chernobyl exclusion zone	40
И. Л. Козлов Паровые взрывы при тяжелых авариях в корпусных ядерных реакторах	47	Kozlov I. Steam explosions at severe accidents in pressurized nuclear reactors	47
Ольховик Ю. А. О кондиционировании лавовых топливосодержащих масс объекта “Укрытие”	52	Olkhovyk Yu. About conditioning of lava fuel-containing masses from the Shelter	52
Бондарь Ю. В., Кузенко С. В., Александрова Н. В., Коромысличенко Т. И. Новые композитные волокна для селективного извлечения цезия из высокосолевых растворов	56	Bondar Yu., Kuzenko S., Olexandrova N., Koromyslichenko T. Novel composite fibers for selective removal of caesium from highly saline solutions	56
Лысенко О. Б., Демихов Ю. Н. Применение магнитного изотопного эффекта для разделения изотопов урана	62	Lysenko O., Demikhov Yu. The use of magnetic isotope effect for the separation of uranium isotopes	62
Іванець В. Г., Корякін В. М., Гайдін О. В. До питання переробки рідких радіоактивних відходів фракційним поділом компонентів	67	Ivanets V., Koryakin V., Gaidin O. On issue of liquid radioactive wastes reprocessing by fractional division of components	67

УДК 621.039.003

*А. Н. Масько, О. А. Пуртов**ГП "Государственный научно-инженерный центр систем контроля и аварийного реагирования"
Минэнергоугля Украины, г. Киев*

СОВРЕМЕННАЯ ПРАКТИКА ВЫПОЛНЕНИЯ ОЦЕНОК ЗАТРАТ НА СНЯТИЕ С ЭКСПЛУАТАЦИИ ЭНЕРГОБЛОКОВ АЭС

В обзоре представлены результаты анализа современной практики выполнения оценок затрат на снятие с эксплуатации (СЭ) энергоблоков АЭС с различными типами реакторов. Показаны интервалы оценок затрат на СЭ энергоблоков с реакторами типа PWR, BWR, AP1000 и рассмотрены основные факторы, оказывающие влияние на величину затрат.

Ключевые слова: атомная электростанция, ядерная установка, снятие с эксплуатации энергоблоков, реакторы типа PWR, BWR, AP1000, оценка затрат на снятие с эксплуатации.

Снятие с эксплуатации — это этап жизненного цикла ядерной установки (ЯУ), который начинается после завершения производства энергии и обусловлен окончанием назначенного срока эксплуатации или решением о досрочном прекращении эксплуатации энергоблока [1]. Мероприятия по СЭ ЯУ заключаются в демонтаже оборудования, дезактивации загрязненных структур и компонентов, разборке зданий, реабилитации территории и захоронении образовавшихся радиоактивных отходов (РАО).

СЭ энергоблока АЭС осуществляется с целью достижения условий, которые позволят обеспечить повторное использования его территории. При снятии с эксплуатации энергоблока АЭС достигается полное или ограниченное освобождение площадки энергоблока от регулирующего контроля [2].

Подготовка к СЭ начинается на этапе жизненного цикла ЯУ "эксплуатация" с комплекса организационно-технических мероприятий, необходимых для планирования СЭ, который включает в себя разработку концепции СЭ, проведение комплексного инженерного и радиационного обследования (КИРО) энергоблоков, создание системы информационного обеспечения СЭ, создание инфраструктуры для передачи РАО в собственность государства.

С 1954 по конец 2012 года [3] во всем мире к электрическим сетям было подключено 581 ядерный энергетический реактор. Из них окончательно остановлено 143 реактора (но отработанное ядерное топливо (ОЯТ) еще не вывезено), 120 реакторов снимаются с эксплуатации или уже сняты. Среди эксплуатируемых 437 реакторов 162 реактора (37 %) имеют возраст более 30 лет, 192 реактора (44 %) — от 20 до 30 лет, остальные 83 реактора (19 %) — менее 20 лет. По данным на конец 2012 года строилось еще 67 новых реакторов.

В этой статье проведен краткий анализ результатов оценок элементов затрат, оценки практики

и требований по отчетности для работ по СЭ энергоблоков АЭС, представленных в недавнем международном исследовании Агентства по ядерной энергии (NEA) при Организации экономического сотрудничества и развития (OECD) [4]. Исследование было связано с изучением существующей практики по оценке затрат СЭ и имело следующие цели: получение лучшего понимания основных составляющих затрат, включая их определение и происхождение, а также анализ негативного опыта. Оно основывалось на том, что лучшее понимание составляющих затрат по СЭ должно привести к оптимизации сметы затрат для существующих АЭС и облегчению финансирования, что позволит лучше регулировать расходы по СЭ. В материалах исследования также рассмотрена роль национальных стандартов и нормативов и последствия их использования при выполнении оценок затрат на СЭ в разных странах.

Исследование проводилось на основании ответов на вопросник, который был распространен NEA в начале 2008 года в группе организаций DCEG, участвующих в оценке стоимости СЭ и представляющих следующие страны — Бельгию, Канаду, Францию, Германию, Италию, Японию, Нидерланды, Словакию, Испанию, Швецию, Великобританию и США. Рабочей группой DCEG было проведено несколько заседаний по обсуждению вопросов стоимости СЭ, а на 10-м заседании в ноябре 2009 года приняли участие также представители Международного агентства по атомной энергии (МАГАТЭ) и Европейской комиссии (ЕК). Результаты проведенных исследований и обсуждений представлены в итоговом документе [4] и приводятся ниже.

В табл. 1 приведено сравнение административных и правовых требований к смете затрат на снятие с эксплуатации ЯУ в странах, которые участвовали в исследовании [4].

В большинстве стран операторам ЯУ дается некоторая степень свободы по выбору методов расчета

стоимости СЭ, включая страны, где оценки затрат являются основой для ставки сборов от ЯУ в Национальных программах. В большинстве случаев, различные методы предлагаются в качестве опций, но точно не предписаны, или предписанные методы допускают определенные исключения и коррективы. Указание метода оценки служит двум целям: он поощряет полноту и сопоставимость между заявками на регистрацию, и облегчает регулятору сравнение и оценку точности заявок на СЭ. Некоторые законы или правила также включают дополнительные и целевые положения для контроля качества оценок стоимости.

Исследование показало, что большое разнообразие подходов применительно к развитию оценки затрат, зависит от основной цели, или чтобы обеспечить финансирование СЭ или быть частью предварительного исследования до проведения фактической работы.

Операторы в большинстве стран реализовывают их собственную методологию оценки затрат и связанные с ними компьютерные программы для оценки затрат по снятию с эксплуатации.

С целью облегчения взаимодействия стран, разработки единообразного подхода и избегания непоследовательности в оценках затрат для проектов по СЭ была проведена работа по составлению перечня статей затрат на СЭ ЯУ (табл. 2). Этот стандартизированный перечень элементов финансовых затрат на СЭ, больше известный как “Желтая книга”, был опубликован в 1999 году в качестве совместной инициативы NEA, OECD, МАГАТЭ и ЕК [5].

В 2009 году, три организации-спонсора решили обновить “Желтую книгу” и обязались, в качестве предварительного шага, оценить опыт пользователей в использовании стандартизированной структуры затрат. Результатом работы стала публикация 2012 года [6], которая рекомендует, как составлять смету и планы СЭ в соответствии с лучшей международной практикой.

В Великобритании в 2008—2009 годах были проведены консультации [7] по обсуждению опубликованных в 2003—2009 годах документов [8—14] по СЭ, с целью установить среднюю удельную стоимость захоронения низко- и среднеактивных отходов, отработавшего ядерного топлива, а также удельную стоимость СЭ энергоблока АЭС, с учетом типов реакторов. Результаты обсуждений данных вопросов приведены в табл. 3, 4.

По данным 2010 года [15] предварительная оценка СЭ атомной электростанции составляет 500 млн \$ на всю АЭС. Затраты на СЭ, как правило, разбиваются на три категории: радиологические затраты (300 млн \$), затраты на отработавшее ядерное топливо (100—150 млн \$), а также затраты на реабилитацию площадки (50 млн \$). Отчисления средств на будущее СЭ не входят в текущие эксплуатационные

расходы станции, и ожидаемые полные финансовые затраты на СЭ (500 млн \$) распределяются на весь период жизни АЭС.

Ожидается, что, большинство АЭС будет работать в течение, как минимум, сорока лет, так что эти 500 млн \$ будут тратиться через 40 лет. Ежегодные отчисления составляют около 12,5 млн \$ в год, чтобы равномерно накопить 500 млн \$ за 40 лет жизни АЭС. Однако, так как работы по СЭ начнутся в будущем, то можно предположить, что на деньги, вложенные в фонд накопления для СЭ, будут начисляться проценты в течение долгого времени. Это означает, что фактические затраты оператора будут существенно меньше, чем 12,5 млн \$ в год. Например, если компания рассчитывает заработать 4 % прибыли в год в среднем на протяжении 40 лет жизни станции на фонде снятия с эксплуатации, то лишь 5 миллионов долларов в год должны быть помещены в фонд СЭ, чтобы достичь 500 млн \$ в конце 40-летнего периода. Стоимость СЭ станции для потребителя составит прибавку к тарифу около 0,0015 \$/кВт-ч.

Различные подходы применяются также и к оценке неопределенностей, хотя некоторые страны не учитывают их вообще в контексте оценки затрат на СЭ. Что касается расчетного резерва на непредвиденные события, неопределенности в пределах определенной области проекта, как правило, включены в качестве непредвиденных внутри смет расходов.

Резюме некоторых финансовых составляющих затрат, непредвиденных затрат и управление рисками СЭ ЯУ в различных странах мира приведено в табл. 5. При этом в Германии и Италии, не учитывается рост расходов со временем, то есть все стоимости и расходы приводятся на отчетную дату.

В заключение данного обзора были сделаны следующие выводы:

1. Большинство стран установили требования к стоимостной оценке СЭ и отчетности. В требования действующего национального законодательства включены подготовка планов снятия с эксплуатации и связанные с ними сметы затрат, с периодическими обновлениями — обычно каждые 3—5 лет.

2. Смета затрат на СЭ разрабатывается на основе предполагаемой стратегии снятия с эксплуатации и на предполагаемом конечном состоянии для площадки ядерной установки. Учитывая, что начало активной стадии снятия с эксплуатации будет через много лет после первоначальной финансовой оценки (или даже через несколько десятилетий после выдачи начальной лицензии для АЭС), эти финансовые аспекты представляют значительную неопределенность, особенно на ранних стадиях эксплуатации АЭС.

3. Объем работ по СЭ обычно включает в себя обеззараживание, удаление / демонтаж остановленной

Таблица 1. Национальные административные и правовые требования к смете затрат на СЭ ЯУ

Требования	Страна	Франция	Италия	Япония	Испания	Швеция
Административные требования, в том числе правовые основы для регулирования отчетности о затратах на СЭ	Королевские указы установили институциональные рамки для СЭ, в том числе национального агентства ONDRAF / NIRAS	Закон об обращении со стабильными радиоактивными материалами и отходами от 2006, 28 июня	Ответственность возлагается на независимую публичную компанию, образованную правительством (SOGIN)	Закон для промышленных установок (ст. 36), Постановление в отношении резервного фонда для демонтажа ядерных объектов электроэнергетики	Ответственность возлагается на независимую публичную компанию, образованную правительством (ENRESA)	Законодательство предусматривает, что оператор несет ответственность за разработку и поддержание планов вывода ЯУ из эксплуатации
	Сроки пересмотра планов СЭ:					
	Каждые 5 лет (для первоначальных планов СЭ)	Каждые 3 года	Каждые 3 года (план СЭ и смета расходов). Каждый год проводится обновление смет расходов в течение первых 3-х лет	Каждый год	Каждые 3 года	Каждый год
Роль и обязанность регулятора ядерной безопасности	В большинстве стран (кроме Франции и Италии) регулятор ядерной безопасности играет важную роль в утверждении выбранной стратегии СЭ, рассматривая разработанную смету и механизмы финансирования, используемые для обеспечения адекватного финансирования СЭ					
Правила, охватывающие оценку затрат на СЭ	Национальным агентством по управлению отходами (ONDRAF / NIRAS) требуется проверка всех планов СЭ, в том числе сметы расходов	Регуляторы определяют основные категории расходов вместе с компетентными органами (министерства экономики и энергетики, действующие совместно), ответственными за проверку адекватности оценки затрат, с учетом рекомендаций от органов безопасности	Агентство по управлению снятием с эксплуатации (Sogin) готовит все планы снятия с эксплуатации и сметы расходов, в соответствии с отчетным форматом, установленным правительственным органом по электроэнергетике и газу, который также утверждает смету и соответствующие механизмы финансирования	Соответствующий Декрет (см. выше) определяет основные объекты и виды деятельности по СЭ и связанные с ними требования к оценке затрат	Национальное агентство по управлению отходами (ENRESA) готовит все планы СЭ и смету расходов (никакие закрепленные форматы не применяются)	Правила идентифицируют основные предположения; в противном случае, Исполнитель может по своему усмотрению определять структуру оценки
Штрафы за несоблюдение требований	Для неиспользуемых ЯУ в конечном итоге штрафом за несоблюдение требований в большинстве стран является отказ на получение лицензии на СЭ. В случае заявок на получение лицензий на строительство и эксплуатацию новых атомных электростанций, штрафом за не предоставление адекватного плана СЭ, финансовые гарантии или адекватную оценку затрат будет отказ на получение такой лицензии					
Предположения и граничные условия	Практически все национальные правила требуют от операторов предоставить объяснение и обоснование допущений, используемых в оценке их затрат. К этим предположениям относятся, прежде всего, те, которые используются для определения граничных условий плана СЭ и, следовательно, связанных с этим затрат					
	Предполагаемое окончательное состояние территории ЯУ					
	“Зеленая площадка” или свободное промышленное использование территории	“Зеленая площадка”	“Коричневая площадка” с кондиционированными отходами, хранящимися на площадке; “Зеленая площадка” после ввода в эксплуатацию национального хранилища	“Зеленая площадка” или повторное использование территории для новых атомных электростанций	“Зеленая площадка”, но окончательное состояние территории является предметом обсуждения между национальным полномочным органом и соответствующей АЭС	Свободное промышленное использование территории, предпочтительно для производства других видов энергии
Требования к расходам, которые будут включены	Все мероприятия от окончательной остановки ЯУ до окончательного освобождения, включая расходы по обращению с отходами всех категорий (за исключением ОЯТ) по кодифицированному списку РАО	Демонтаж, обращение с ОЯТ, повторное кондиционирование старых отходов, долгосрочное обращение с РАО, мониторинг центров утилизации после их закрытия	Все мероприятия от окончательной остановки ЯУ до окончательного освобождения, в том числе переработки ОЯТ, утилизации отходов, утилизации отходов в национальном репозитории, очистка площадки и мониторинг	Удаление загрязнений, демонтаж, переработка отходов для хранения, оценка и характеристика отходов, переработка отходов для захоронения, транспортировка и захоронение отходов	Нет конкретной информации	Нет конкретной информации
	Все страны сообщили, что сметы затрат подготовлены в текущих денежных единицах (постоянные или овернайт затраты). Чистая приведенная величина этих затрат, как правило, оценивается с учетом инфляции / эскалации					
	Затраты на управление наемными работниками и затраты на рабочую силу конкретной площадки, как правило, основаны на последнем опыте СЭ реакторов или на опыте эксплуатации. В Японии используются национальные статистические данные о стоимости рабочей силы (Министерство здравоохранения, труда и социального обеспечения)					
	Затраты на материалы и оборудование, как правило, взяты из предыдущих проектов СЭ или у поставщиков оборудования, компаний по аренде или подрядчиков					
	Лом и повторное использование материалов					
	Возмещение затрат от реализации лома не учитывается в смете расходов	Возмещение затрат от реализации лома учитывается в смете расходов	Возмещение затрат от реализации лома рассматривается как отдельная статья в смете расходов	Возмещение затрат от реализации лома не учитывается в смете расходов	Нет конкретной информации	Возмещение затрат от реализации лома не учитывается в смете расходов
	Некоторые страны требуют особого рассмотрения возможностей по сокращению затрат					
	Требуется исследование возможностей уменьшения объема отходов	Новые правила признают влияние объемов отходов на расходы, но не учитывают, как это должно быть в полной мере представлено	Снижение на 3,29% было обязательным в 2009 и 2010 годах для эксплуатации, безопасности, обслуживания и общих издержек; дальнейшие темпы сокращения затрат устанавливаются каждые 3 года Органом управления энергетикой	Нет конкретной информации	Нет конкретной информации	Нет конкретной информации
	Непредвиденные расходы					
	15%	15% (Electricité de France)	Непредвиденные расходы не включены; каждый год все различия между фактической и сметной стоимостью должны быть обоснованы перед выдачей средств Органом управления энергетикой	Нет конкретной информации	Исследования ENRESA сообщили без непредвиденных расходов, но затем глобально 15% добавили	Общие проектные непредвиденные расходы 6%

Примечания:

1. ONDRAF / NIRAS (Бельгия) — Национальное агентство по радиоактивным отходам и обогащенным расщепляющимся материалам, отвечает за управление всеми радиоактивными материалами в стране, включая транспортировку, очистку, кондиционирование, хранение и захоронение

Продолжение табл. 1.

Требования	Страна	Германия	Нидерланды	Словакия	Великобритания	США
Административные требования, в том числе правовые основы для регулирования отчетности о затратах на СЭ	Закон по ядерной безопасности и Контролю	Закон по атомной энергии (1959) и Постановление по регулированию стоимости в соответствии с Законом об атомной энергии (BGBl.I 2004, Nr. 69)	Закон по ядерной энергии	Министерство экономики установило законы, требующие сметы затрат для СЭ	Закон по энергии 2008 года	Несколько законов. Правила комиссии по ядерному регулированию (NRC)
	<i>Сроки пересмотра планов СЭ:</i>					
	Не определено в правилах, но на практике каждые 5 лет	Нет конкретной информации (смета затрат пересматривается ежегодно)	Каждые 5 лет	Каждые 5 лет	Каждый год	Каждый 2 года
Роль и обязанность регулятора ядерной безопасности	В большинстве стран регулятор ядерной безопасности играет важную роль в утверждении выбранной стратегии снятия с эксплуатации, рассматривая разработанную смету и механизмы финансирования, используемые для обеспечения адекватного финансирования снятия с эксплуатации					
Правила, охватывающие оценку затрат на СЭ	Требование оценки затрат связано с необходимой финансовой гарантией для ядерной установки. Это закреплено юридически в качестве условия лицензии	Закон не предписывает формат и содержание оценок	Использует руководства и критерии Международного агентства по атомной энергии	Закон не предписывает формат и содержание оценок	Требуется подробные планы для обращения с отходами, реабилитации территории и для целей расчетов затрат.	Конкретные и предписывающие руководящие принципы оценки затрат на СЭ. NRC требует, чтобы смета затрат следовала всем руководящим принципам для того, чтобы быть приемлемой
Штрафы за несоблюдение требований	Для неиспользуемых ЯУ в конечном итоге штрафом за несоблюдение требований в большинстве стран является отказ на получение лицензии на СЭ. В случае заявок на получение лицензий на строительство и эксплуатацию новых АЭС, штрафом за не предоставление адекватного плана СЭ, финансовые гарантии или адекватную оценку затрат будет отказ на получение такой лицензии					
Предположения и граничные условия	Практически все национальные правила требуют от операторов ЯУ предоставить объяснение и обоснование допущений, используемых в оценке затрат. К этим предположениям относятся, прежде всего, те, которые используются для определения граничных условий плана СЭ и, следовательно, связанных с этим затрат					
	<i>Предполагаемое окончательное состояние территории ЯУ</i>					
	Усмотрение оператора	“Зеленая площадка”	“Зеленая площадка”	“Зеленая площадка”, за исключением энергоблока А1 АЭС “Богунце”	“Зеленая площадка”, где это возможно	“Зеленая площадка”
Требования к расходам, которые будут включены	Планирование и подготовка СЭ, полное обеззараживание и / или демонтаж ЯУ, обеззараживание площадки, восстановление и стабилизация, окончательное радиационное обследование и долгосрочные наблюдения для ограниченного или свободного освобождения площадки ЯУ, включая также обращение или захоронение всех отходов, ядерных и опасных материалов	Все расходы, связанные с демонтажем ЯУ, дезактивацией, и освобождением площадки, включая обращение с отходами, за исключением обращения с унаследованными отходами и временного хранения ОЯТ и высокоактивных отходов	Нет конкретной информации	Все расходы за исключением обращения с ОЯТ и унаследованными отходами в расположении АЭС. За исключением сметы для энергоблока А1 АЭС “Богунце”, которая включает все расходы	Демонтаж энергоблока АЭС в конце его жизненного цикла генерации, удаление всех стационарных зданий и сооружений. Возвращение площадки к утвержденному состоянию и освобождение от контроля по лицензии на эксплуатацию ЯУ	Планирование и подготовка СЭ, полное обеззараживание и / или демонтаж ЯУ, обеззараживание площадки, восстановление и стабилизация, окончательное радиационное обследование и долгосрочные наблюдения для ограниченного или свободного освобождения площадки ЯУ
	Все страны сообщили, что сметы затрат подготовлены в текущих денежных единицах (постоянные или овернайт затраты). Чистая приведенная величина этих затрат, как правило, оценивается с учетом инфляции / эскалации					
	Затраты на управление наемными работниками и затраты на рабочую силу конкретной площадки, как правило, основаны на последнем опыте СЭ реакторов или на опыте эксплуатации.					
	Используются типичные почасовые ставки подрядчика и консультанта	Ставки оплаты труда подрядчика основаны на последних стоимостях от текущих проектов. Ставки Владелец / лицензиат оцениваются на ежегодной основе.	Ставки оплаты труда взяты из Центрального статистического управления.	Ставки оплаты труда взяты из ставок оператора / владельца.	Владелец / лицензиат использует уровни расходов на заработную плату исходя из фактических последних контрактов на субподряды по оплате труда на территории АЭС.	Владелец / лицензиат использует уровни расходов на заработную плату исходя из фактических последних контрактов на субподряды по оплате труда на территории АЭС.
	Затраты на материалы и оборудование, как правило, взяты из предыдущих проектов СЭ или у поставщиков оборудования, компаний по аренде или подрядчиков					
	<i>Лом и повторное использование материалов</i>					
	Все материалы должны рассматриваться как отходы. Резервы на возмещение затрат от реализации лома не допускаются	Возмещение затрат от реализации лома не учитывается в смете расходов	Нет конкретной информации	Возмещение затрат от реализации лома не учитывается в смете расходов	Возмещение затрат от реализации лома не учитывается в смете расходов	Возмещение затрат от реализации лома не учитывается в смете расходов
	<i>Некоторые страны требуют особого рассмотрения возможностей по сокращению затрат</i>					
	Планирование жизненного цикла ЯУ как средство снижения сложности / стоимости вывода ЯУ из эксплуатации	Нет конкретной информации	Нет конкретной информации	Нет конкретной информации	Минимизация отходов должна быть частью плана СЭ	Планирование жизненного цикла ЯУ как средство снижения сложности / стоимости вывода ЯУ из эксплуатации
	<i>Непредвиденные расходы</i>					
	Зависит от точности оценок по градации А—С (10—30%)	Немецкий коммерческий код, Handelsgesetzbuch, не позволяет рассчитывать факторы неопределенности	Нет конкретной информации	25% предварительная оценка, 20% детальная оценка	Моделируется на доверительном уровне 80%	Значительно варьируется. NRC обычно принимает общую неопределенность 25%

2. SOGIN (Италия) — Государственная компания, которая отвечает за экологическую реабилитацию площадок итальянских АЭС, за безопасное обращение с ядерными материалами и радиоактивными отходами

3. ENRESA (Испания) — государственное предприятие по обращению и утилизации ОЯТ и РАО

4. Термины “Зеленая площадка” и “Коричневая площадка” не имеют стандартного международного определения

Таблица 2. Национальные практики оценки затрат на СЭ ЯУ

Элемент оценки затрат	Страна					
	Бельгия	Франция	Италия	Япония	Испания	Швеция
Состав затрат на СЭ ядерных установок	Большинство стран используют иерархическую структуру работ для составления сметы затрат на СЭ, но не все следуют “Желтой книге” [5]					
	Базируется на “Желтой книге”	Собственная структура	Собственная структура	Собственная структура	Базируется на “Желтой книге”	Базируется на “Желтой книге”
Методологии и инструменты оценки затрат на СЭ	Национальные руководящие принципы в большинстве стран оставляют для оператора ЯУ некоторую степень свободы действий в выборе метода расчета затрат:					
	ONDRAF / NIRAS может задать общие требования к информации	Поэтапный подход к выпол- нению оценок с увеличением точности от альтернативного исследования для выполнения (CEA)	Методология оценки затрат разработана SOGIN	Линейное при- ближение, свя- занное с объе- мом материалов СЭ и индивиду- альный метод накопления (METI)	Методология оценки затрат, разработанная национальной организацией по управлению отходами (ENRESA)	Методология оценки затрат, разработанная национальной организацией по управлению отходами (SKB)
Обзор нацио- нального опыта оценки затрат на СЭ	Нет большого опыта в сравне- нии предполагае- мых затрат по фактическим затратам	Изменения в первоначальной стратегии и конечных усло- виях СЭ являет- ся одним из важнейших факторов	Неожиданные нормативные предписания и время на утвер- ждение общих и специфических лицензий, вызы- вают задержки и увеличение затрат	Существенные изменения в оценке затрат (например, изменения в стоимости захо- ронения отходов СЭ из-за введе- ния опции чис- тоты отходов)	Изменения в оценке величины затрат являются высокочувстви- тельным факто- ром (особенно из-за новых нормативных и правовых требо- ваний)	Нет опыта в сравнении пред- полагаемых затрат по факти- ческим затратам

Продолжение табл. 2.

Элемент оценки затрат	Страна					
	Канада	Германия	Нидерланды	Словакия	Великобритания	США
Состав затрат на СЭ ядерных установок	Большинство стран используют иерархическую структуру работ для составления сметы затрат на СЭ, но не все следуют “Желтой книге” [5]					
	Собственная структура	Собственная структура	По усмотрению оператора ЯУ	Базируется на “Желтой книге”	Собственная структура	По усмотрению оператора ЯУ
Методологии и инструменты оценки затрат на СЭ	Национальные руководящие принципы в большинстве стран оставляют для оператора ЯУ некоторую степень свободы действий в выборе метода расчета затрат:					
	Лицензиаты имеют право использовать свою собствен- ную методику оценки затрат, но требуется ее рассмотрение и принятие регуля- тором	Владельцы / лицензиаты имеют право использовать свою собствен- ную методику оценки затрат	Нет конкретной информации	Код OMEGA на основе «Желтой книги»	Владельцы / лицензиаты имеют право использовать свою собствен- ную методику оценки затрат	Требуется пла- нирование жизненного цикла ЯУ, которое предпо- лагает использо- вание наихуд- ших финансовых сценариев для учета неопреде- ленности
Обзор нацио- нального опыта оценки затрат на СЭ	Опыт вывода из эксплуатации сейчас крайне ограничен	Ежегодный пересмотр основ оценки, чтобы минимизировать объемы измене- ний и регуляр- ное обновление удельных затрат	Изменения в плане СЭ могут оказать существ- венное влияние на величину затрат	В данное время никаких измене- ний в оценке затрат не ожида- ется	Ежегодный пересмотр основ оценки, чтобы минимизировать объемы измене- ний затрат	Изменения в стоимости очень чувствительны к объемам изме- нениям

Примечания:

1. CEA (Франция) — французский научно-исследовательский институт, основной задачей которого является разработка всех видов использования атомной энергетики, как гражданской, так и военной. CEA был создан в 1945 году и проводит фундаментальные и прикладные исследования во многих областях, включая разработку ядерных реакторов, производство встроенных микросхем, использования радионуклидов для лечения болезней, сейсмологии и распространении цунами и др.

2. METI (Япония) — Министерство экономики, торговли и промышленности Японии, включает: Агентство по природным ресурсам и энергетике, Агентство ядерной и промышленной безопасности, Агентство малого и среднего бизнеса, Японское патентное ведомство.

3. SKB (Швеция) — национальная организация по управлению отходами.

Таблица 3. Сводные результаты оценки стоимости СЭ по типам реакторов

Источник информации	Тип реактора	Стоимость СЭ	Комментарии	Стоимость СЭ в ценах 2006 года
Nuclear Energy Agency / Organisation for Economic Co-operation and Development 2003 [8]	PWR — несколько стран	Средняя 320 млн \$/ГВт (в диапазоне 200—400 млн \$/ГВт для больших реакторов)	Значения стоимости СЭ указаны в ценах июля 2001 года, согласно сведениям по 19 PWR реакторам	Среднее значение 220 млн \$/ГВт (в диапазоне 135—270 млн \$/ГВт)
Dominion Energy for US Department of Energy 2004 [9]	4 проекта AP1000	416 млн \$ для 1150 МВт энергоблока	Цитируется в ценах 2003 года, не включает полный демонтаж, но достигается лицензирование в США	250 млн \$/ГВт (хотя, вероятно, выше для полного демонтажа)
Bayliss and Langley [10]	PWR разных мощностей — USA	368 млн \$	Цены 1998 года с прекращением лицензирования. Исследование NEI для 60 реакторов PWR мощностью от 500 до 1095 МВт, с и без полного захоронения отходов и реабилитации площадки	265 млн \$ (для средней мощности PWR 750 МВт)
	BWR разных мощностей — USA	420 млн \$	Цены 1998 года с прекращением лицензирования. Исследование NEI для 30 реакторов PWR мощностью от 540 до 1140 МВт, с или без полного захоронения отходов и реабилитации площадки	300 млн \$ (для средней мощности PWR 800 МВт)
	Разные реакторы	275—600 млн €	Исследование 1997—2000 г., охватывающее 12 стран (из них 10 в Европе), цены 1998 года	230—500 млн \$ (без привязки к мощности PWR)
Morgan Stanley Research [11]	Реакторы в Европе	260—800 млн €/ГВт	На основе открытых данных компаний E.ON, RWE, Electabel, Fortum и CEZ (как правило, цены 2004 года)	190—590 млн \$/ГВт (в среднем)
	PWR	110—1100 млн €/ГВт	На основании данных с 21 площадки. Среднее значение 396 млн € в ценах 2001 года	311 млн \$/ГВт (в среднем)

Таблица 4. Сводные результаты исследования 2009 года в рамках обновления оценки стоимости СЭ 2006 года

Источник информации	Тип реактора	Стоимость СЭ, млн €/ГВт	Комментарии	Стоимость СЭ в ценах 2009 года, млн €/ГВт
International Atomic Energy Association 2005 [12]	PWR	150—750	Значения стоимости СЭ указаны в ценах 2005 года	140—560
Nuclear Energy Agency 2008 [13]	PWR	320	Средняя оценка стоимости СЭ на реактор в ценах 2001 года	270
	BWR	420		350
County Report Sweden 2007 [14]	PWR	100	Средняя оценка стоимости СЭ на реактор в ценах 2004 года	97
	BWR	130		126

Таблица 5. Финансовые аспекты затрат, непредвиденные затраты и управление рисками на СЭ

Страна	Год финансового отчета	NPV в отчете	С учетом инфляции	Эскалация	Уровень дисконтирования	Непредвиденные затраты	Управление рисками
Бельгия	Фиксированный год 5-летнего цикла	—	Да	Значительное влияние на оценки	Да	15 % от суммы	Не разработано для оценки расходов, но рассматривается в рамках финансирования
Франция	Текущий год (год оценки)	—	Да	—	Выбирается оператором, но под нормативным ограничением (5 % — EdF, AREVA и CEA)	5 уровней (5—50 %)	—
Италия	Текущий год	Нет	Нет	Нет	Нет	—	—
Япония	Текущий год	Да	Да	Да	Да	Нет	Не учитывается
Испания	Затраты в различные годы	Да	Да	Умеренное влияние	1,5%	15—25 %	Не учитывается
Швеция	Текущий год	Да	Нет	Нет	Определяется властями	6—20 %	Рассматривается в вероятностных анализах будущих расходов по обращению с отходами, захоронению и СЭ
Канада	—	—	—	—	—	10—30 %	Не учитывается
Германия	Текущий год	Нет	Нет	Нет	Нет	Нет	Не учитывается
Нидерланды	Текущий год	Да	Да (2%)	—	4%	Нет	Не учитывается
Словакия	Текущий год	Да	Да	Да	Нет (требования к финансированию СЭ пересматриваются ежегодно)	25 % для предварительных оценок; 20 % для детальных оценок	Не учитывается
Великобритания	—	—	—	—	—	—	—
США	Текущий год	Да	Да	Да	3—5 % (указывается владельцем)	10—75 %	Высококвалифицированное, иногда добавляют 25—50 %

Примечание: NPV — чистая приведенная стоимость

ЯУ и основных зданий, хранение или размещение ОЯТ, обращение с отходами, транспортировку и окончательное захоронение или долгосрочное хранение РАО. Однако некоторые страны не включают затраты на размещение ОЯТ, унаследованных отходов, их утилизацию или длительное хранение в смету затрат на снятие с эксплуатации.

4. Разнообразие подходов при составлении сметы затрат зависит от поставленной основной цели: или обеспечить основу для будущего финансирования, или сделать предварительное проектное и экономическое исследование до проведения фактических работ по СЭ.

5. Большинство стран, либо путем законодательного регулирования, или по предпочтению владельца / оператора ЯУ, приняли формальную структуру сметы затрат. В целом подробные оценки готовятся, особенно для ядерных установок, которые уже находятся в эксплуатации. Перечень необходимых работ по СЭ обычно формируется в виде некоторой иерархической структуры, которая основана либо на формате Стандартного списка "Желтая книга" [5], или на эквивалентном национальном формате.

6. Многие страны приняли структуру разбивки финансовой оценки либо в форме деятельности по мероприятиям СЭ, либо в форме деятельности по времени. Форма оценки деятельности по времени может быть использована для разделения финансирования СЭ на отдельные транши, чтобы

снизить общие неопределенности. Некоторые страны применяют этот подход, имея различные факторы неопределенности для отдельных этапов проекта СЭ.

7. Методы расчета затрат различны для разных стран. Некоторые страны задают тип сметы затрат, которую ожидают получить от операторов, а другие страны оставляют возможность оператору самому ее определить. Использование моделей планирования жизненного цикла ЯУ распространено в некоторых странах, при этом используются наилучшие сценарии для составления сметы расходов.

8. Некоторые страны требуют представлять структуру затрат в деталях, в то время как другие определяют лишь основные составляющие затрат, оставляя большую свободу действий для структурирования оценки затрат.

9. Предприняты значительные усилия и разработан стандартный шаблон отчетности [6], в котором национальные сметы затрат на СЭ могут быть отображены для целей сравнения на национальном и международном уровне. Такие сравнения в будущем будут способствовать прозрачности оценок и повысят уверенность в правильности оценки.

10. Последние оценки стоимости СЭ для реакторов PWR лежат в пределах 97...560 млн £/ГВт, а для реакторов BWR — 126...350 млн £/ГВт в ценах в 2009 года (соотношение британского фунта к доллару на 28.12.2009 составляло 1,61).

Список использованной литературы

1. НП 306.2.141-2008. Загальні положення безпеки атомних станцій (ЗПБ АС-2008). — К.: Державний комітет ядерного регулювання України, 2008. — 62 с.
2. Порядок звільнення майданчиків атомних електростанцій від регулюючого контролю після завершення робіт із зняття з експлуатації: Затверджено Наказом Державної інспекції ядерного регулювання України 28.11.2013 № 136. [Електронний ресурс]. — Режим доступу: <http://zakon2.rada.gov.ua/laws/show/z2099-13>
3. Nuclear Power Reactors in the World. [Електронний ресурс]. — Режим доступу: http://www-pub.iaea.org/MTCD/Publications/PDF/rds2-33_web.pdf
4. Cost Estimation for Decommissioning: An International Overview of Cost Elements, Estimation Practices and Reporting Requirements. (NEA, No. 6831, 2010) [Електронний ресурс]. — Режим доступу: <https://www.oecd-neo.org/rwm/reports/2010/nea6831-cost-estimation-decommissioning.pdf>
5. A Proposed Standardised List of Items for Costing Purposes in the decommissioning of nuclear installations: Interim Technical Document. (OECD/NEA, Paris, 1999) [Електронний ресурс]. — Режим доступу: <https://www.oecd-neo.org/rwm/reports/1999/costlist.pdf>
6. International Structure for Decommissioning Costing (ISDC) of Nuclear Installations. (NEA-EC-IAEA, 2012) [Електронний ресурс]. — Режим доступу: <http://www.oecd-neo.org/rwm/reports/2012/ISDC-nuclear-installations.pdf>
7. Consultation on a Methodology to Determine a Fixed Unit Price for Waste Disposal and Updated Cost Estimates for Nuclear Decommissioning, Waste Management and Waste Disposal. (Department of Energy and Climate Change, 2010) [Електронний ресурс]. — Режим доступу: https://www.gov.uk/government/uploads/system/uploads/attachment_data/file/42533/1_20100324145948_e_ConsultationonFixedUnitPricemethodologyandupdatedcostestimates.pdf
8. Decommissioning Nuclear Power Plants: Policies, Strategies and Costs. (OECD, 2003) [Електронний ресурс]. — Режим доступу: <http://www-ns.iaea.org/downloads/rw/projects/r2d2/workshop6/references/others/oecd-neo-decom-npps-eng-2003.pdf>
9. Study of Construction Technologies and Schedules, O&M Staffing and Cost, Decommissioning Costs and Funding Requirements for Advanced Reactor Designs: Report for US Department of Energy by Dominion Energy Inc., Bechtel Power Corporation, TLG Inc. and MPR Associates. (United States Department of Energy, 2004) [Електронний ресурс]. — Режим доступу: <http://pbadupws.nrc.gov/docs/ML1018/ML101820632.pdf>

10. Nuclear Decommissioning, Waste Management, and Environmental Site Remediation / C. Bayliss, K. Langley. — 2003. [Електронний ресурс]. — Режим доступу : <http://www.sciencedirect.com/science/book/9780750677448>
11. Nuclear Prospects. — Morgan Stanley. — September 2005.
12. Financial Aspects of Decommissioning : Report by an Expert Group. (IAEA, 2005) [Електронний ресурс]. — Режим доступу : http://www-pub.iaea.org/MTCD/publications/PDF/te_1476_web.pdf
13. Nuclear Energy Outlook 2008. (NEA, No. 6436) [Електронний ресурс]. — Режим доступу : <http://www.oecd-neo.org/pub/2008/6436-nuclear-energy-outlook-2008.pdf>
14. Comparison among different decommissioning funds methodologies for nuclear installations : Country Report Sweden on behalf of the European Commission Directorate-General Energy and Transport. [Електронний ресурс]. — Режим доступу : http://www.wupperinst.org/uploads/tx_wiprojekt/EUDecommFunds_SE.pdf

Получено 14.07.2014

УДК 621.311.25:621.039.58

*С. В. Барбашев¹, Г. В. Лисиченко², О. О. Попов²*¹ *Одеський національний політехнічний університет, м. Одеса*² *ДУ “Інститут геохімії навколишнього середовища НАН України”, м. Київ*

РОЗШИРЕННЯ ФУНКЦІОНАЛЬНИХ МОЖЛИВОСТЕЙ РАДІОЕКОЛОГІЧНОГО МОНІТОРІНГУ ПРИРОДНОГО СЕРЕДОВИЩА В РАЙОНАХ РОЗТАШУВАННЯ АЕС ЩОДО ПРИЙНЯТТЯ УПРАВЛІНСЬКИХ РІШЕНЬ

Розглянуто основні завдання комплексного радіоекологічного моніторингу району розташування АЕС. Показано, що для того, щоб перетворити систему моніторингу з інформаційної в управлінську, тобто розширити її функціональні можливості, треба включити до її складу аналітичну інформаційно-експертну систему оцінки екологічного впливу АЕС на навколишнє середовище (ЕкоІЕС), яка призначена для накопичення, збереження, систематизації, аналізу, обміну та відображення даних комплексного радіоекологічного моніторингу / контролю в зонах спостереження АЕС, що забезпечить підтримку прийняття рішень щодо екологічної безпеки на території впливу АЕС. Наводиться варіант концепції створення ЕкоІЕС, який враховує державні та європейські норми щодо інформатизації систем моніторингу об'єктів потенційної небезпеки.

Ключові слова: радіоекологічний моніторинг, атомна електростанція, інформаційна експертна система, екологічна безпека.

Атомна станція, як будь-який крупний промисловий комплекс, є джерелом підвищеного ризику для навколишнього середовища. Це проявляється у різних видах забруднення навколишнього природного середовища (НПС) — тепловому, радіаційному, хімічному та біологічному, що активізує небезпечні процеси в екосистемах. Зазначені види техногенного навантаження становлять реальну загрозу здоров'ю населення та погіршують стан довкілля.

Екологічні ризики від впливу АЕС та інших об'єктів ядерно-паливного циклу (ЯПЦ) здебільшого обумовлені радіаційною складовою, яка спричинена утворенням і зберіганням радіоактивних матеріалів та радіоактивних відходів (РАВ).

При викиді або скиді радіонуклідів (РН) з АЕС в зовнішнє середовище (навіть у дуже незначних кількостях, за яких вони не викликають радіаційних ефектів) відбувається їх розповсюдження ланками природних і харчових ланцюжків. Надалі РН можуть потрапити до складу раціону людини і в її організм та створити значні дозові навантаження (рис. 1). Тому, разом з контролем радіаційної ситуації, що полягає у визначенні рівнів радіоактивного забруднення природного середовища і доз опромінювання людини, необхідно враховувати спрямованість процесів біогеохімічного круговороту РН і їх вміст в об'єктах НПС у районі розташування АЕС, виявляти критичні ситуації, критичні чинники впливу і найбільш вразливі щодо радіаційного впливу елементи НПС, в яких формується доза опромінювання, тобто в яких радіаційний ризик буде максимальним. Зробити це можна за допомогою системи радіоекологічного моніторингу [1—3].

Основним завданням радіоекологічного моніторингу наземних екосистем є поглиблене вивчення процесів міграції і накопичення РН та інших

забруднюючих речовин у ландшафтах регіонального та локального масштабів і оцінка наслідків цього явища.

За своєю суттю моніторинг територій навколо АЕС повинен бути перш за все радіаційним, але екологічним за методологією, тобто повинен враховувати екологічні особливості НПС (ландшафти, геохімію тощо), міграційні характеристики середовища (метеоумови, стоки, місця накопичення РН тощо), фізико-хімічні властивості забруднювачів різної природи (ізоморфізм, ізотопні і неізотопні аналоги тощо), поєднану дію забруднювачів різної природи та інші чинники, що визначають ризики радіаційного впливу для населення і НПС. Це означає, що моніторинг повинен бути комплексним [2].

Комплексний моніторинг довкілля включає фізичні, хімічні і біологічні спостереження та оцінку стану різних компонентів екосистем, які спостерігаються в зоні впливу АЕС. Результати оброблюються, аналізуються і зв'язуються між собою та характеристиками навколишнього природного і техногенного середовища за допомогою методів математичного моделювання і, використовуючи ці дані, розробляється багатофакторний прогноз стану НПС. Іншими словами, в ході виконання комплексного радіоекологічного моніторингу НПС у районах розташування АЕС розв'язуються такі завдання [1, 2]:

спостереження за всіма факторами впливу АЕС і станом НПС;

оцінка існуючого рівня забруднення елементів НПС;

визначення чинників і шляхів їх впливу;

створення моделей поведінки пріоритетних забруднювачів, особливо РН, у НПС і харчових ланцюжках;

визначення критичних елементів НПС та критичних ланок у харчових ланцюжках з метою прогнозування рівня забруднення НПС, дозових навантажень на населення, визначення критичних груп населення тощо;

управління станом НПС у районах розташування АЕС.

Управління станом НПС у районах розташування АЕС — це процес, що забезпечує існування системи “АЕС—наколишнє природне середовище—людина” в межах прийнятих технологічних регламентів і еколого-гігієнічних норм, та розробка рішень щодо заходів впливу на неї з метою повернення в регламентні і нормативні рамки у разі порушень, які відбулися на АЕС або в НПС, і зниження радіаційних ризиків до прийнятного рівня.

Виходячи з завдань забезпечення екологічної безпеки АЕС, населення і НПС, визначаються програма і регламент моніторингу. Відповідно до визначених завдань моніторинг може проводитись з різною періодичністю, мати різні об’єкти контролю, певні параметри та призначення.

Всі РН, які надходять в НПС, можуть бути джерелами ризиків. Тому, на перших етапах комплексного радіоекологічного моніторингу у районі розташування АЕС розглядаються всі можливі шляхи та рівні радіаційного впливу від надходження РН в атмосферу, водні об’єкти, ґрунт і біоту в результаті викидів і скидів АЕС, радіоактивного забруднення території в результаті попередньої діяльності

об’єктів ЯПЦ, зокрема в результаті радіаційних аварій та інцидентів, радіаційного забруднення внаслідок трансграничного перенесення РН (рис. 2 [2, 3]).

Результати оцінки стану НПС, отримані по даним комплексного радіоекологічного моніторингу, використовують при розробці і ухваленні рішень щодо ступеня зниження ризику або необхідності його обмеження. Управління радіаційним ризиком здійснюється, виходячи з основних принципів забезпечення радіаційної безпеки: виправданість, не перевищення та оптимізація [3, 4].

Оцінку екологічного ризику можна здійснити на методологічних засадах, що представлені в роботах [3, 5, 6]. Схема організації робіт для оцінки радіаційного ризику в районі розташування об’єктів підвищеної радіаційної небезпеки наведена на рис. 3 [3].

Обсяг радіаційного моніторингу неминує обмежений даними, що надходять з певної кількості постів спостереження, які не завжди здатні охопити всі забруднені місця навколо АЕС. Ніяка програма моніторингу, як би добре вона не була спланована і профінансована, не здатна забезпечити отримання всеосяжних кількісних просторово-часових характеристик забруднення від АЕС. Таким чином, використання лише даних “точкових” вимірювань концентрації забруднювальних речовин на постах спостереження не дає можливості повною мірою приймати ефективні управлінські рішення щодо забезпечення нормативного стану екологічної безпеки на території, прилеглій до АЕС [3].

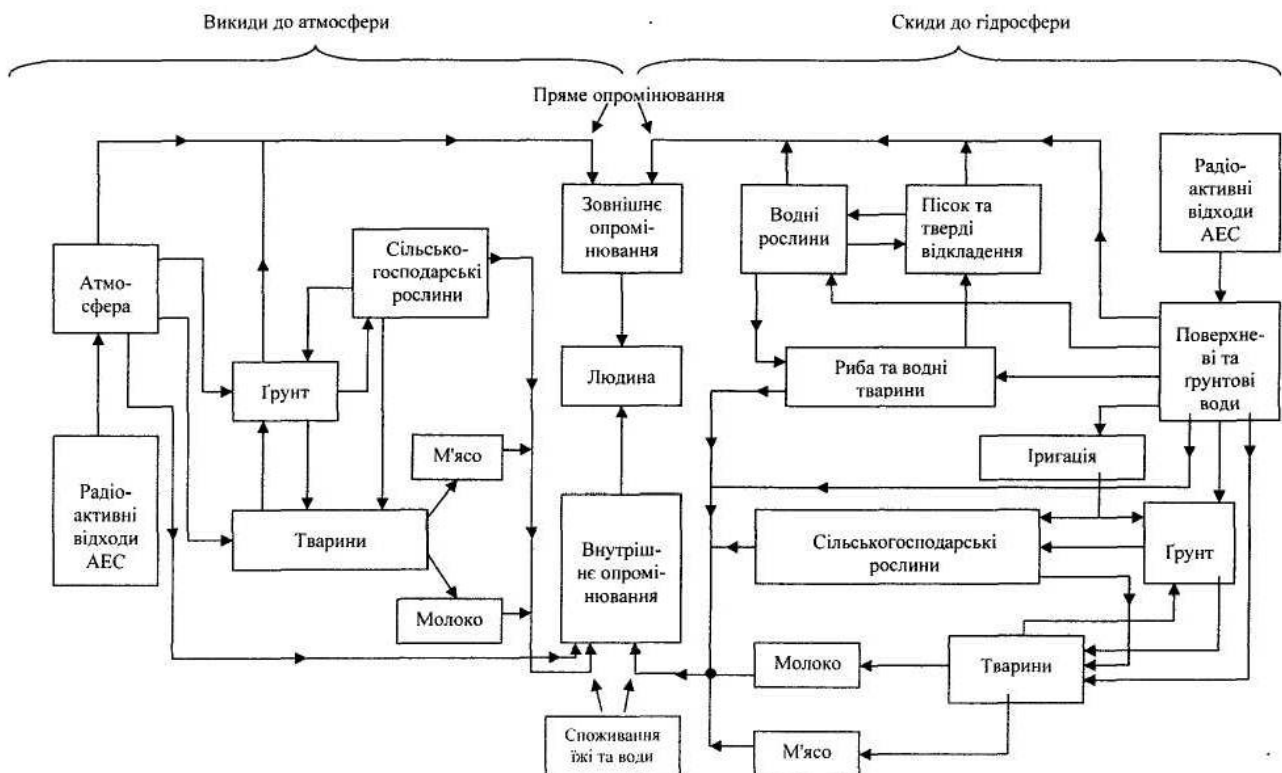


Рис. 1. Шляхи впливу АЕС на людину

При управлінні станом НПС та радіоекологічним ризиком результати радіоекологічного моніторингу можуть виявитись неадекватними, якщо:

точки експозиції, тобто місця, в яких оцінюється концентрація забруднювачів НПС, просторово ізольовані від пунктів моніторингу на території, де відбувається моніторинг / контроль стану НПС (спостереження та оцінка), наприклад, у разі переходів від одного середовища до іншого або міграції хімічної речовини;

наявні аналітичні дані лише про частину тих забруднювачів, які дійсно присутні в тому чи іншому оцінюваному об'єкті, причому вони прив'язані до конкретного поста спостереження, а число постів є недостатнім;

часовий розподіл даних відсутній (типовою ситуацією є збирання даних про якість НПС за обмежений інтервал часу; такі дані добре характеризують умови на момент дослідження, проте не відображають тривалі або дуже короточасні події).

Для вирішення проблеми репрезентативності результатів вимірювань необхідно забезпечити таку кількість постів і їх розташування, які б давали

найбільш повну об'єктивну інформацію про стан забруднення всієї території, яка контролюється. Така методика розроблена у [2]. Для цього можна також використовувати математичне моделювання процесу формування забруднення в різних екосистемах (повітрі, ґрунті, воді тощо) від різних потенційно небезпечних джерел та методи планування експерименту. Математичні методи можуть забезпечити розв'язання функціональних і загальносистемних задач, моделювання і прогнозування розповсюдження забруднень і розвитку надзвичайних ситуацій.

Для оцінки стану окремих елементів НПС (екосистем) та екологічної обстановки в цілому на контрольованій території, прогнозу її змін під впливом природних і антропогенних факторів, управління станом НПС на основі отриманих даних авторами розроблена концепція створення аналітичної інформаційно-експертної системи оцінки екологічного впливу АЕС на НПС (ЕкоІЕС), яка призначена для накопичення, зберігання, систематизації, аналізу, обміну та відображення даних комплексного радіоекологічного моніторингу / контролю в зонах спостереження (ЗС) АЕС.

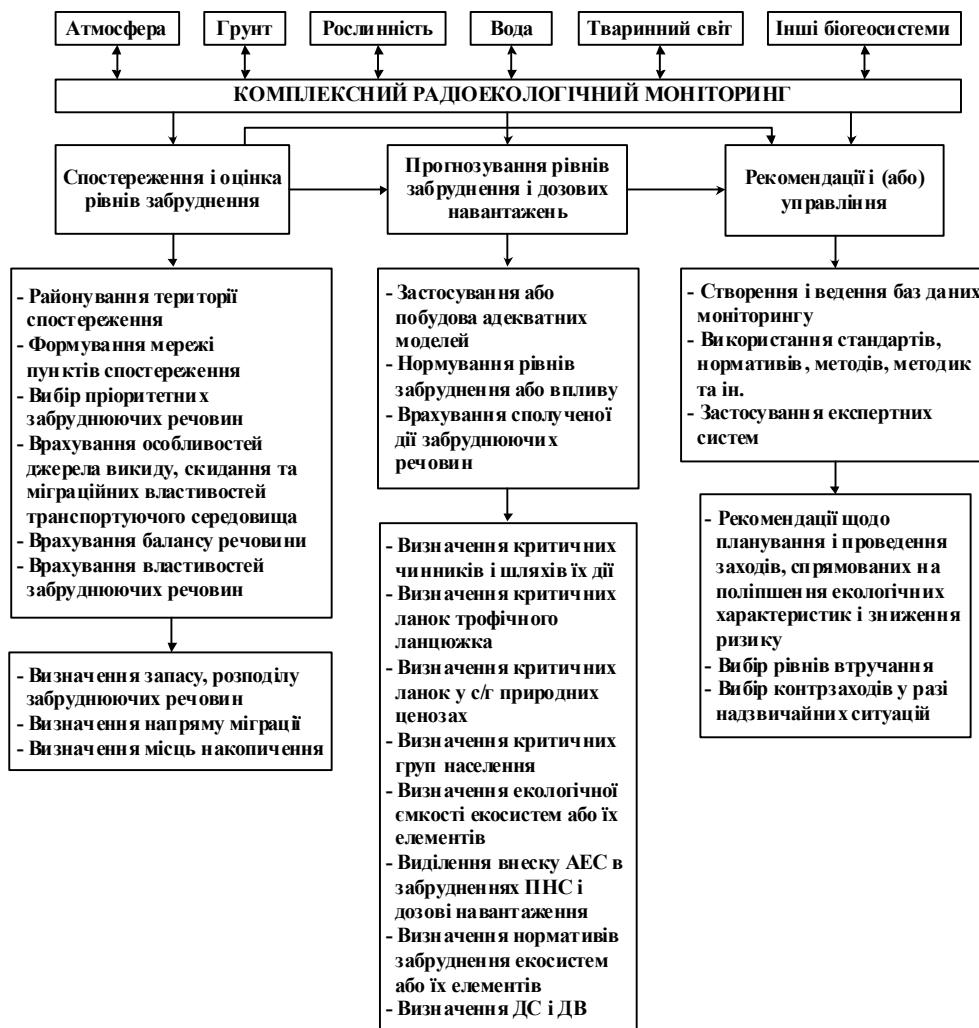


Рис. 2. Схема комплексного радіоекологічного моніторингу НПС у районі розташування АЕС

Створення ЕкоІЕС для оцінки екологічного впливу АЕС на НПС є одним з тих завдань, вирішення яких необхідне для забезпечення високого рівня екологічної та радіаційної безпеки в ЗС АЕС. Його реалізація передбачає застосування сучасних інформаційно-технічних засобів і сприятиме підвищенню рівня інформатизації енергетичної галузі та її техногенно-екологічної безпеки.

ЕкоІЕС вирішуватиме наступні *основні завдання*:

1. Збирання та зберігання даних за факторами радіоекологічного впливу АЕС щодо:

радіонуклідного складу та активності газо-аерозольних викидів та радіоактивних скидів, включаючи інформацію про об'єкт контролю, умови експозиції та об'єми проб, типи фільтрів і засоби контролю, види і умови вимірювань;

моніторингу атмосферного повітря на контрольованій території, включаючи інформацію про точки (пости) контролю, де здійснюються збір проб повітря і вимірювання концентрації забруднювачів, умови експозиції та об'єми проб, типи фільтрів і обладнання, види та умови вимірювань;

контролю атмосферних опадів, аналізу снігового покриву, ґрунтів, рослинності, сільськогосподарських продуктів, біологічних об'єктів (хвоя, гриби тощо), включаючи інформацію про точки контролю, умови відбору та об'єми відібраних проб, методики вимірювань;

контролю води в поверхневих водоймах, донних відкладів і водних біологічних об'єктів (водорості, риби тощо), включаючи інформацію про точки контролю, умови відбору та об'єми відібраних проб, методики вимірювань;

контролю доз та потужностей доз, включаючи інформацію про точки контролю і типи встановлених датчиків, умови експозиції та періодичність контролю.

2. Збирання та зберігання даних за факторами нерадіаційного впливу на атмосферне повітря, поверхневі та підземні води, поводження з небезпечними нерадіоактивними відходами щодо:

контролю об'єму та концентрації забруднюючих речовин, що викидаються та скидаються АЕС в НПС (хімічне та біологічне забруднення стічної та оборотної води, фізико-хімічний стан та тепловий режим водних об'єктів в районах розташування АЕС — водойм-охолоджувачів, річок, водосховищ, хімічного контролю джерел викидів забруднюючих речовин в атмосферне повітря);

об'ємів утворення та видалення з АЕС нерадіоактивних небезпечних відходів (відпрацьованих нафтопродуктів, люмінесцентних ламп, акумуляторних батарей, електричних конденсаторів тощо).

3. Збирання та зберігання даних щодо гідрологічних та гідрогеологічних спостережень водойм-охолоджувачів, фільтраційних витрат через греблі водойм-охолоджувачів, природних водойм, шламо-накопичувачів тощо.

4. Збирання та зберігання даних метеорологічних спостережень.

5. Накопичення і зберігання баз даних та надання довідкової інформації щодо:

картографічної інформації про НПС АЕС, у тому числі отриманої з застосуванням геоінформаційних технологій (топографічні, геологічні, ґрунтові карти, дані аеро- та космічної зйомки, моделі рельєфу тощо); законодавчих актів, нормативно-правової документації та методичних довідників;

рекомендацій та методик вимірювання.

6. Аналіз взаємозв'язку між факторами та об'єктами екологічного впливу (з застосуванням картографічних даних). Аналіз експертних оцінок щодо екологічного ризику від негативних впливів на НПС. Автоматизація процесу формування звітної документації результатів комплексного радіоекологічного моніторингу в зонах спостереження АЕС. Надання користувачам систематизованих результатів аналізу у вигляді тематичних карт, 3D-моделей, таблиць, графіків, діаграм, методичних рекомендацій. Оцінка використання природних ресурсів.

Для моделювання та прогнозування в системі ЕкоІЕС пропонується застосування наступних математичних моделей:

атмосферного розсіювання забруднень, що дають їх концентрацію в будь-якій точці місцевості в залежності від фактичних викидів і метеорологічної обстановки;

розповсюдження забруднення у водних об'єктах, що дозволяє оцінити їх екологічний стан;

розподілу забруднень у ґрунтах, зоні аерації та підземних водах;

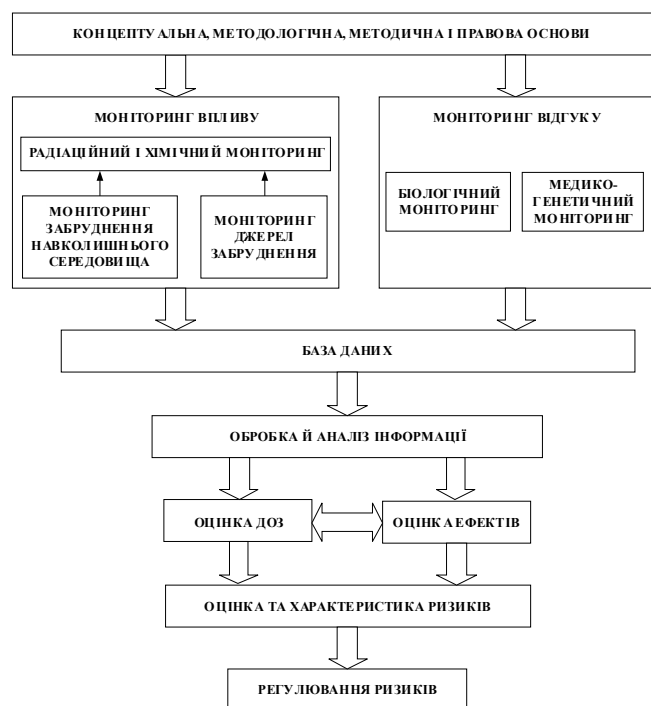


Рис. 3. Схема організації робіт для оцінки ризику у районі розташування радіаційно небезпечних об'єктів

біогеоценозів на контрольованих територіях, що дають інформацію про реакцію біологічних систем на вплив забруднювачів;

оцінення шкоди від погіршення екологічного стану НПС і витрат на його поліпшення;

оцінки дозових навантажень та ризику для здоров'я населення при хімічних і радіаційних забрудненнях.

До переліку даних, які повинна підтримувати ЕкоІЕС, згідно стандарту [7] повинні бути включені параметри, що отримують при здійсненні спостережень наступних характеристик та складових компонентів НПС:

клімат та мікроклімат;

повітряне середовище;

геологічне середовище;

гідросфера, включаючи поверхневі та ґрунтові води;

ландшафти і ґрунти;

тваринний і рослинний світ та природні заподилки.

Створити ЕкоІЕС можна декількома шляхами. Але автори вважають, що найбільш оптимальним є такий варіант системи, який би повністю враховував державні та європейські рекомендації та вимоги щодо інформатизації систем моніторингу об'єктів потенційної небезпеки [8]. Відповідно до цих рекомендацій та вимог створення ЕкоІЕС вимагає розробки уніфікованих форм збирання та обробки даних для всіх АЕС України. Для цього на кожній АЕС має бути встановлений сервер для накопичення та попередньої обробки даних первинної інформації з сучасними базами даних моніторингової інформації, нормативно-правової документації, звітної документації тощо з відповідним рівнем захисту інформації від різних можливих способів втрати збережених даних (це можна забезпечити, наприклад, встановленням дублюючого серверу, в якому резервуються раніше введені та збережені дані на основному сервері). Також на кожній атомній станції встановлюється потужний ГІС-сервер (спеціалізована апаратура та програмне забезпечення, які призначені для здійснення віддаленого доступу до картографічних даних) з відповідними програмними модулями для моделювання, прогнозування, аналізу, розрахунку ризиків та збитків з візуалізацією результатів на електронних картах. Інтеграція ЕкоІЕС з використовуваними на АЕС інформаційними системами моніторингу та системами підтримки прийняття рішень (СППР) при радіаційних аваріях, наприклад, КАДО, РОДОС тощо, надасть можливість в повній мірі розв'язувати задачі екологічної та радіаційної безпеки і буде ефективним інструментом підтримки прийняття рішень при управлінні станом НПС в ЗС АЕС.

Для оперативного отримання достовірних даних та зменшення ризику від втручання людського фактору в даному варіанті створення ЕкоІЕС

передбачається автоматизація контролю найбільш небезпечних речовин та важливих параметрів екологічного стану НПС (індикаторів) в ЗС АЕС.

Крім того, передбачається можливість доступу (з відповідним рівнем) до даних моніторингу кожної АЕС, що сприятиме успішному вирішенню задач екологічної та радіаційної безпеки в ЗС АЕС України.

В ДП НАЕК "Енергоатом" передбачається встановлення серверу для накопичення та збереження моніторингових даних, які будуть передаватись з АЕС організованими каналами зв'язку, а також ГІС-серверу, що дасть можливість керівництву Компанії незалежно від станцій здійснювати оцінку стану НПС в ЗС АЕС, розраховувати ризики та збитки, здійснювати екологічний прогноз.

Для комплексного захисту інформації застосовується так званий LDAP-сервер, який організує авторизований доступ користувачів до ресурсів системи.

Щоб забезпечити взаємодію між серверами та іншими інформаційними системами моніторингу, що використовуються на АЕС України, встановлюється WEB-сервер, який приймає запити від клієнтів системи, видає їм відповіді разом з відповідним зображенням, медіа-потокм та іншою інформацією.

Geoportal-сервер буде забезпечувати інтеграцію ЕкоІЕС з зовнішніми інформаційними ресурсами, тобто допомагати користувачам співпрацювати і обмінюватися даними. Доступ до інформації будуть мати як зовнішні (громадяни, громадські організації, представники ЗМІ тощо), так і внутрішні користувачі. Даний сервер буде надавати основні дані щодо стану НПС в ЗС АЕС та іншу додаткову супровідну інформацію.

Всі внутрішні та певна частина зовнішніх користувачів з відповідними рівнями доступу матимуть можливість через LDAP-сервер отримувати дані з серверу накопичення та попередньої обробки інформації, що знаходиться в ДП НАЕК "Енергоатом".

На рис. 4 показана принципова схема структурної організації та взаємозв'язків між системою ЕкоІЕС, яка встановлюється на АЕС України, та іншими суб'єктами моніторингу довкілля, що входять до складу державної системи моніторингу довкілля.

Планується, що зазначена система ЕкоІЕС після її введення в експлуатацію буде представляти собою універсальний програмний ресурс, який включатиме вже існуючі на АЕС України інформаційні системи моніторингу довкілля та матиме власні функціональні модулі. Це дозволить в повній мірі вирішувати найважливіші задачі радіоекологічного моніторингу та забезпечить осіб, які приймають рішення, всією необхідною інформацією про негативні впливи АЕС на НПС.

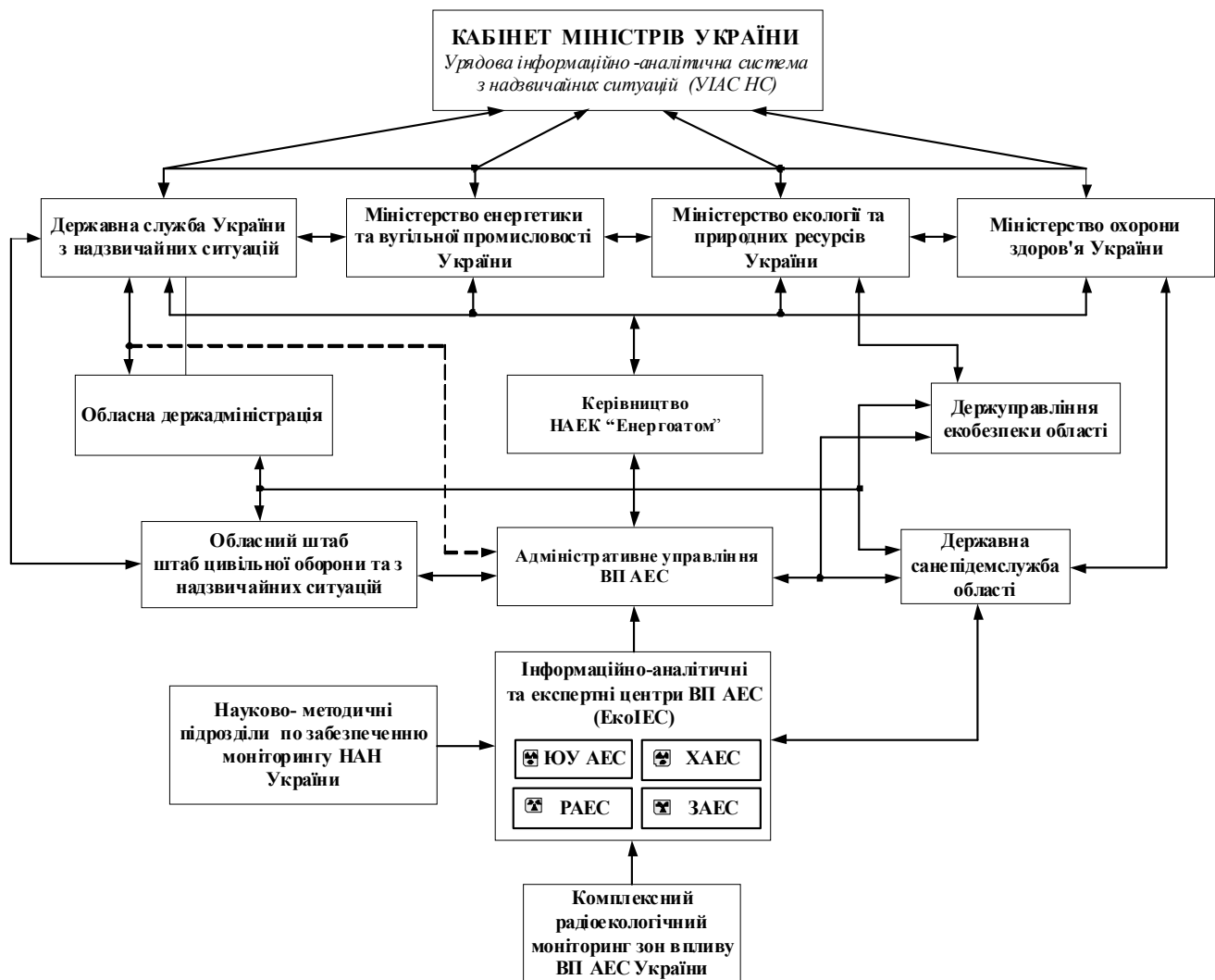


Рис.4. Принципова схема структурної організації та взаємозв'язків між ЕкоІЕС та іншими суб'єктами моніторингу

Система ЕкоІЕС буде потужним інструментом підтримки прийняття рішень в галузі екологічної безпеки НПС на території впливу АЕС та перетворить моніторинг з інформаційної системи в систему управлінську, тобто розширить її функціональні можливості. Створення системи такого моніторингу слід розглядати як важливу складову превентивних заходів із забезпечення безпеки об'єктів ядерної енергетики, що дозволить суттєво підвищити рівень

обґрунтованості управлінських рішень щодо екологічної і радіаційної безпеки, та заходів із захисту територій і населення, яке мешкає в районі потенційного впливу АЕС.

Впровадження системи комплексного радіоекологічного моніторингу, яка включає ЕкоІЕС, в практику роботи АЕС стане одним з необхідних компонентів успішного та безпечного розвитку атомної енергетики в цілому.

Список використаної літератури

1. Бадяев В. В. Охрана окружающей среды при эксплуатации АЭС / В. В. Бадяев, Ю. А. Егоров, С. В. Казаков. — М. : Энергоатомиздат, 1990. — 224 с.
2. Барбашев С. В. Система комплексного радиоекологического мониторинга районов расположения АЭС Украины : дис. ... доктора техн. наук : спец. 05.14.14 "Тепловые та ядерные энергоустановки" / С. В. Барбашев. — Одесса, 2009. — 394 с.
3. Лисиченко Г. В. Методология оцінювання екологічних ризиків : Монографія. / Г. В. Лисиченко, Г. А. Хміль, С. В. Барбашев. — Одеса : Астропринт, 2011. — 368 с.
4. ДСП 6.074.120-01. Основні санітарні правила протирадіаційного захисту України (ОСПУ). — Київ, 2011. — 136 с.
5. Лисиченко Г. В. Природний, техногенний та екологічний ризики: аналіз, оцінка, управління / Г. В. Лиси-

- ченко, Ю. Л. Забулонов, Г. А. Хміль. — К. : Наукова думка, 2008. — 542 с.
6. Моніторинг і методи вимірювання параметрів навколишнього середовища : навч. посібник / В. М. Ісаєнко, Г. В. Лисиченко, Т. В. Дудар та ін. — К. : Вид-во Нац. авіац. ун-ту “НАУ-друк”, 2009. — 312 с.
7. *СОУ НАЕК 004:2011*. Екологічна оцінка енергоблоків АЕС. Загальні вимоги до складу та змісту матеріалів оцінювання : Стандарт національної атомної енергогенеруючої компанії “Енергоатом”. — К. : НАЕК “Енергоатом”, 2011. — 20 с.
8. Впровадження європейських стандартів і нормативів у Державну систему моніторингу довкілля України: Наук. метод. посіб / О. І. Бондар, О. Г. Тараріко, Є. М. Варламов та ін. — К. : Інрес, 2006. — 264 с.

Отримано 13.11.2014

UDC 621.039

*O. O. Klyuchnykov¹, V. I. Skalozubov¹, T. V. Gablaya¹, V. N. Vascshenko², I. L. Kozlov³,
T. V. Gerasimenko², A. A. Hudyma², K. V. Skalozubov¹*

¹ *Institute for Safety Problems of Nuclear Power Plants NAS of Ukraine, Kyiv*

² *State ecological Academy of postgraduate education and management, Kyiv*

³ *Odessa national polytechnic university, Odessa*

ON THE NECESSITY TO ENHANCE GENERAL SAFETY REQUIREMENTS FOR NUCLEAR POWER PLANTS

Based on the lessons learned of the accident at Fukushima Daiichi nuclear power plant it is proposed to enhance the General Safety Requirements for Nuclear Power Plants in Ukraine concerning the classification of emergencies, deterministic vs. probabilistic safety criteria, and requirements to computer modeling tools and guidelines for severe accident management.

Keywords: safety, general requirements, nuclear power station, emergency.

According to recommendations of IAEA and leading nuclear countries regulating authorities Ukrainian NPP service providers (National Nuclear Energy Generating Company of Ukraine “Energoatom” (NNEGC “Energoatom”) and State Nuclear Regulatory Inspectorate of Ukraine (SNRI)) developed a Plan for further improvement of nuclear power safety considering lessons of heavy emergency at Fukushima Daiichi NPP (further on — the Plan). The first short-term phase of the Plan was carrying out of stress-tests for safety analysis [1] with main goal to determine additional actions for the Complex (composite) program for safety increase (CxPSIU-2010) considering lessons and conclusions of the heavy emergency at Fukushima Daiichi NPP.

One of the important focus areas of the Plan in [1] was determined as the necessity for re-considering the legal and technical guidelines that regulate NPP safety. During the Plan implementation in 2013 a draft for fundamental legal document “General requirements for nuclear power stations safety” (GRS) was developed to replace the “General statements on nuclear power stations safety” (GSS-2008) [2]. The importance and fundamental level of these legal documents determine active dialogue and many proposals on their improvement.

Further we propose our commentaries to different statements of the GRS which are not justified enough or are contradictory considering lessons of Fukushima emergency.

Terminology for the emergencies. The GRS draft introduces a term of ‘emergency with multiple failures’ (practically replacing ‘beyond-design emergency’ term of GSS-2008) which is determined as an emergency with additional (comparing to design emergencies) system failures and staff faults.

Concerning such approach to emergency classification it is necessary to stress the following:

1. The terms ‘design emergency’ and ‘emergency with multiple failures’ practically do not ‘cover’ a group

of emergencies with beyond-design initial events but without ‘multiple failures’. E. g. Fukushima Daiichi NPP emergency [3] was a result of a beyond-design earthquake (with magnitude of about 9 in the epicenter) and tsunami (about 15 m high at the coast) which were not foreseen by the power units design (a beyond-design initial event). Due to multiple flaws in the power units design it lead to ‘multiple failures’. But we can imagine a better situation — due to a beyond-design initial events (not foreseen by the design) a single failure takes place that would be specific to design emergencies.

2. On the other hand, the development experience of guidelines / instructions on control and liquidation of the emergencies shows [3] that the algorithms of design and beyond-design emergencies control are almost identical (in case no critical safety functions failure cause nuclear fuel damage). Therefore it is more efficient to classify the emergencies in two groups: emergencies without nuclear fuel damage and heavy emergencies with nuclear fuel damage.

The boundary condition for these two emergencies groups are system failures (including staff faults) that provide critical safety function to prevent nuclear fuel damage.

Probability criteria for the safety. The GRS draft ‘preserved’ the probability criterion-based approach to regulating nuclear safety accepted in GSS-2008 [2]:

heavy emergencies frequency is $<10^{-4} \dots 10^{-5} \text{ year}^{-1}$;
maximal emergency radiation release frequency is $<10^{-6} \dots 10^{-7} \text{ year}^{-1}$.

Such approach corresponds to generally-accepted world practice of nuclear regulation in ‘pre-Fukushima’ period. However, it contradicts to lessons of Fukushima Daiichi NPP emergency:

1) all the power units corresponded to such safety criteria until the emergency (including justification on prolongation of the power units operation period a month before the emergency);

2) the emergency events and their sequence didn't violate conditions of safety probability criteria.

I. e. Fukushima emergency lessons revealed that probability indexes of heavy emergencies and maximal radioactive release cannot be the basic safety criteria. The priority should be given to alternative deterministic criteria which should more adequately reflect the nuclear power units safety state.

Sufficient qualification of the equipment, systems, constructions in conditions of emergency situations and emergencies may be proposed as one of such deterministic safety criteria. The qualification means justification of operability and / or reliability of carrying out the designated functions by experimental and calculation methods.

We should stress that even in 'pre-Fukushima' period IAEA developed and recommended guidelines on implementing programs for equipment and systems qualification (including 'hard' operation conditions).

The measures on qualification of equipment and systems of PWR are successfully implemented in Ukraine. That is why introduction of qualification safety criterion into the GRS does not require development of new programs and guidelines. On the other hand it is a deterministic alternative to probability criteria which is insufficient for safety estimate.

Efficiency of qualification safety criterion may be hypothetically demonstrated on example of Fukushima emergency. It is known that one of the main reasons for complete loss of stationary electric supply at emergency power units (initial event for heavy emergencies) was flooding of diesel-generators at lower levels of turbine rooms through trenches of cabling and pipeline [3]. In case the before-the-fact and thorough qualification of the buildings for the 'hard' flooding conditions had been made and corresponding compensating measures taken, then the heavy emergency might had never happened and wouldn't cause catastrophic environmental consequences.

Safety analysis requirements. The GRS draft determines the requirements to safety analysis methods and approval of the used means. Concerning this a note should be made:

1. Legislation document of such level, in our opinion, should not specify the methods for safety analysis, which are constantly being improved and expanded. Particularly one of the reasons for wide application of probability safety analysis methods is caused by limited possibilities of deterministic methods. However, contemporary scientific-and-technical development of methodological basis and computing technologies improvement may lead in future to full dominance of deterministic methods for safety analysis.

2. There are no sufficiently justified and reliable criteria for approval of software for modeling the emergency processes. E. g. at present due to "Fukushima events" numerical qualification of equipment and systems

sustainability during beyond-design seismic events became more actively developed based on contemporary software. Its guidelines may differ from 'obsolete' but current norms for sustainability estimation [4].

The same situation arises for so-called code of heat-and-hydraulics and neutron physics methods [5].

Such situation may lead to subjectivity of the software approval by SNRI experts, and inadmissible consequences at safety regulation: hidden 'backstairs influence', interdependence of regulating and operating organizations, etc. We should remind, that Japanese government officially stated (not justified enough in our opinion) that one of the main specific causes of the heavy emergency at Fukushima Daiichi NPP was absence of necessary independence between regulating and operating organizations of TEPCO [3].

Therefore we consider the statements of GRS concerning specific methods of safety analysis and approval of software to be inappropriate.

The requirements of GRS should reflect the necessity of adaptation, verification, validation of the software used and analysis of uncertainties of numerical modeling to the safety analysis reports and / or technical safety justification.

Requirements for guidelines on heavy emergencies control. The root reasons for heavy emergencies at Fukushima Daiichi NPP were flaws in power units design in determination of relatively low-probability beyond-design events and also insufficient readiness of the staff to controls such emergencies. That is why IAEA recommendations, committees of European authorities and stress-tests results [1] pay a special attention to necessity of adequate guidelines on heavy emergencies control (GHEC) development.

The major GRS draft demand to GHEC is the necessity of considering all potential sources of radioactive release and influence of extreme external events. To some extent these requirements consider lessons of Fukushima disaster: the GHEC known in 'pre-Fukushima' period were generally oriented at internal and external (considering the reactor shell) phases of the heavy emergencies. But the measures on control of heavy emergencies, e. g. in cooling pool for 'fresh' spent nuclear fuels were either not prescribed, either were insufficiently considered. Also not enough attention has been paid to organizing control of heavy emergencies under extreme environmental conditions like during heavy emergency at Fukushima Daiichi NPP [3].

However, the lessons of Fukushima emergency in our opinion must determine other fundamental requirements to GHEC which should determine efficient strategies of heavy emergencies control (SHEC) considering initial emergency events and current state, accessibility and working capacity of the systems providing control for:

prevention of safety protection barriers destruction;
stabilizing and returning under control the fuel-containing masses (FCM).

The native GHEC projects (e. g. see [3]) determine SHEC as measures on prevention of separate effects of heavy emergencies (e. g. “pressure reduction in hermetic volume”, “cooling of the damaged fuel”, “prevention of hydrogen explosion” etc.). Such approach has obvious limitations, because it is inadmissible e. g. to implement pressure reduction strategy without cooling of the FCM and / or prevention of the steam-and-gas explosions. SHEC must implement all the array of efficient measures to reach the main goal: to prevent destruction of the protective safety barriers and stabilization of FCM. The list of SHEC must be mainly determined by the history of heavy emergency and access and work capacities of the critical safety function systems.

Conclusions

Considering the Fukushima Daiichi emergency lessons in the new version of General requirements for nuclear power stations safety we propose:

1. Classification of emergencies into two groups: emergencies without nuclear fuel damage; heavy emergencies with nuclear fuel damage.

The boundary condition for these two emergencies groups are system failures (including staff faults) that provide critical safety function to prevent nuclear fuel damage.

2. In addition to probability safety criteria, the deterministic safety criteria of sufficient equipment, systems qualification in conditions of emergency situations and emergencies (qualification safety criteria) must be applied.

3. Specification of methods and software for safety analysis are inappropriate. The requirements should reflect only necessity for their verification, validation and analysis of uncertainties in the numerical modeling.

4. Additional requirements for guidelines on heavy emergencies control should determine the necessity for efficient heavy emergencies controls strategies considering initial events and also access and work capacity of the system that enables control of emergency processes to prevent destruction of safety barriers and stabilizing the fuel-containing masses.

List of references

1. National report on results of implementation of the “stress tests” / State Nuclear Regulatory Inspectorate of Ukraine. — 2012. (Russian)
2. *NP 306.2.141-2008*. General statements on nuclear power stations safety (GSS-2008). (Ukrainian)
3. *Skalozubov V. I.* Analysis of reasons and consequences of accident at Fukushima NPP as a factor of prevention of severe accidents at tank reactors. / V. I. Skalozubov, A. A. Klyuchnykov, V. N. Vascshenko, S. S. Yarovoy. — Chernobyl : Institute for Safety Problems of Nuclear Power Plants of Ukraine, 2012. — 280 p. (Russian)
4. Rules and norms in nuclear power-7-002-86. Norms of calculation of equipment and pipelines durability. (Russian)
5. *Skalozubov V. I.* Basis for control of beyond-design emergencies at NPPs with PWR / V. I. Skalozubov, A. A. Klyuchnykov, V. N. Kolykhanov. — Chernobyl : Institute for Safety Problems of Nuclear Power Plants of Ukraine, 2010. — 400 p. (Russian)

Received 13.11.2014

УДК 621.039.587/.588

*С. В. Васильченко¹, И. Л. Козлов², В. Ю. Кочнева³, В. И. Скалозубов³*¹ *Институт поддержки эксплуатации АЭС, г. Киев*² *Одесский национальный политехнический университет, г. Одесса*³ *Институт проблем безопасности АЭС НАН Украины, г. Киев*

О НЕОБХОДИМОСТИ СОВЕРШЕНСТВОВАНИЯ МЕТОДОВ КВАЛИФИКАЦИИ БЫСТРОДЕЙСТВУЮЩЕГО ЗАПОРНО-ОТСЕЧНОГО КЛАПАНА НА ВОДУ / ПАРОВОДЯНУЮ СРЕДУ

Проведен анализ результатов квалификации быстродействующего запорно-отсечного клапана (БЗОК) на воду / пароводяную среду для малосерийных энергоблоков с ВВЭР-1000. Показано, что квалификация БЗОК на воду для малосерийных ВВЭР-1000 проведена недостаточно обоснованно и не может быть адаптирована для серийных ВВЭР-1000. Квалификация БЗОК на воду должна быть проведена также для “глубокозапроектных” аварий с учетом возможных ошибок персонала и множественных отказов на базе достаточно обоснованных критериев квалификации.

Ключевые слова: квалификация, быстродействующий запорно-отсечной клапан, пароводяная среда.

Проектные основы функционирования БЗОК.

Система быстродействующих запорно-отсечных клапанов предназначена для изоляции парогенератора (ПГ) по пару путем отсечения паропроводов на участке между ПГ и главным паровым коллектором (ГПК) в целях:

исключения аварийного расхолаживания 1-го контура при авариях с разрывом в системе паропроводов высокого давления;

ограничения заброса теплоносителя 1-го контура в ГПК при авариях с течью 1-го контура во 2-й.

В границы БЗОК включены следующие элементы: собственно задвижка по фланцы врезки в трубопровод, электродвигатель, привод, цепи силового питания, управляющие вентили, паропроводы обвязки, цепи питания управляющих вентилях.

Затвор задвижки приводится в действие рабочим цилиндром, управляемым от собственной среды или от электропривода. Рабочее положение запорной задвижки — открытое; при этом корпус и рабочий цилиндр находятся под давлением среды. Открытие БЗОК при наличии перепада давления $P > 1 \text{ кгс/см}^2$ осуществляется собственной средой. При $P \leq 1 \text{ кгс/см}^2$ открытие может производиться с помощью встроенного электропривода и автоматической муфты. При необходимости быстрого закрытия БЗОК муфта автоматически деблокируется.

Проектом предусматривается автоматическое закрытие БЗОК при совпадении следующих условий (защита выполнена по принципу “2 из 3-х”):

а) скорость падения давления в паропроводе — до $0,5 \text{ (кгс/см}^2\text{)/с}$;

б) снижение давления во 2-м контуре (паропроводе от данного ПГ) — до 55 кгс/см^2 ,

или

а) снижение давления в паропроводе от данного ПГ — ниже $50 \text{ (кгс/см}^2\text{)/с}$;

б) разность температур насыщения 1-го и 2-го контуров (в паропроводе) — более $75 \text{ }^\circ\text{C}$;

в) температура 1-го контура — более $200 \text{ }^\circ\text{C}$.

В соответствии с проектными основами энергоблоков с ВВЭР функционирование БЗОК требуется при возникновении следующих исходных событий:

разрыв паропровода внутри гермообъема (ГО);

разрыв паропровода за пределами ГО;

разрыв ГПК;

разрыв трубопровода питательной воды внутри ГО.

Основания для квалификации БЗОК на “жесткие” условия и истечение пароводяной среды.

Система БЗОК проектировалась с учетом выполнения требования обеспечить быстрое (не более 10 с) и надежное отсечение ПГ от течи при разрывах парового коллектора таким образом, чтобы истечение происходило не более чем из одного ПГ. Исполнительные органы БЗОК питаются от источников надежного электроснабжения 1-й категории; при этом БЗОК является системой, важной для безопасности, и совмещает функции защитной и локализирующей систем безопасности. Оборудование системы относится к 1-й категории сейсмостойкости.

Действующая управляющая арматура обвязки БЗОК на закрытие и открытие клапанов не соответствует требованиям квалификации по условиям внешних воздействий в части требований выполнения функций безопасности при “жестких” условиях окружающей среды. БЗОК не обладают рядом свойств оборудования реакторной установки, которые должны удовлетворять требованиям [1] по следующим пунктам:

п. 8.1.9 “Системы и элементы безопасности выполняют свои функции в установленном проектом объеме с учетом обусловленных авариями воздействий (механические, тепловые, химические и др.)”, а именно: эксплуатируемые ОП АЭС в настоящее

время БЗОК не квалифицированы на “жесткие” условия внешних воздействий, а также не исключена вероятность отказа БЗОК при выполнении функций безопасности из-за повреждения трубопроводов линий управления вследствие внешних или внутренних воздействий;

п. 8.1.18 “Для запроектных аварий, в том числе тяжелых аварий, предусматриваются меры по управлению такими авариями с целью снижения радиационного воздействия на персонал, население и окружающую природную среду”, в частности, трубопроводы управляющих линий и арматура управления закрытием БЗОК должны обеспечивать управляющие воздействия без снижения функциональных требований на закрытие БЗОК при наличии в паропроводах пароводяной смеси и насыщенной жидкости.

В карточке мероприятия № 27201 Комплексной (сводной) программы повышения безопасности энергоблоков АЭС Украины (КсППБУ) перечислены следующие дефициты безопасности БЗОК:

“Действующая управляющая арматура обвязки БЗОК на закрытие и открытие клапанов не соответствует требованиям квалификации по условиям внешних воздействий при “жестких” условиях окружающей среды.

Арматура обвязки управляющих линий подачи рабочей среды на поршень и сброса пара из-под поршня БЗОК для обеспечения функции закрытия БЗОК должны быть квалифицированы на условия внешних воздействий, а именно: ввиду возможного заполнения паропровода аварийного ПГ пароводяной смесью или водой при течи теплоносителя 1-го контура арматура обвязки управляющих линий подачи рабочей среды на поршень и сброса пара из-под поршня БЗОК, а также поршневой привод БЗОК должны быть квалифицированы на работу с пароводяной смесью и водой”.

Анализ результатов квалификации БЗОК на пароводяную среду для малосерийных ВВЭР-1000. Режим попадания пароводяной среды на рабочие органы задвижки БЗОК возможен в условиях аварий с межконтурными течами в ПГ. На основе анализа проектных и запроектных аварий с межконтурными течами для малосерийных энергоблоков с ВВЭР-1000 [2—4] были сделаны следующие основные выводы в отношении квалификации БЗОК на пароводяную среду:

1. Вода появится в паропроводе перед БЗОК приблизительно через 600 с, а сигнал на закрытие БЗОК аварийного ПГ от автоматики программного алгоритма управления течью (ПАУТ) сработает на 400-й секунде (т. е. приблизительно на 200 с раньше).

2. В случае отказа автоматики ПАУТ (возможное попадание воды до закрытия БЗОК) “... инженерный анализ ... не выявил причин для отказа на закрытие БЗОК”.

3. Отказ БЗОК на воде — “глубокозапроектная” авария, а квалификация на запроектные аварии не является обязательной. В проектных условиях воды в БЗОК не будет, так как должны сработать предохранительные клапаны (ПК) ПГ.

4. Отказ БЗОК слабо влияет на частоту повреждения активной зоны (ЧПАЗ).

Анализ полученных результатов квалификации БЗОК на воду для малосерийных энергоблоков с ВВЭР-1000 позволяет дать следующие комментарии:

1. Оценка времени появления воды перед БЗОК (600 с) сделана по “... грубым оценкам (расчеты не проводились) ...” времени заполнения паропроводов (около 300 с). Однако именно эти недостаточно обоснованные оценки времени заполнения паропровода после ПГ и определили вывод о том, что БЗОК закроется до попадания воды. Кроме того, также вызывает сомнение, что время заполнения “свободного” объема ПГ меньше времени заполнения водой паропровода БЗОК, т. к. “свободный” объем ПГ больше объема паропровода до БЗОК.

2. Проектные уставки автоматического закрытия БЗОК не учитывают симптомы аварий с межконтурными течами (исходное событие аварии (ИСА) Т42). Поэтому закрытие БЗОК при ИСА Т42 должно осуществляться оператором с возможными ошибками и задержками, а оценка времени для оператора на закрытие БЗОК (400 с) может быть избыточно оптимистичной.

Планируемая для малосерийных ВВЭР-1000 непроектная система ПАУТ для идентификации ИСА Т42 на закрытие БЗОК требует дополнительных обоснований по времени срабатывания в “жестких” и запроектных условиях.

3. Расчетное моделирование воздействия динамики водяного потока на шток клапана вообще не проводилось, а основано на “авантюрном” предположении, что “... в условиях равных давлений до, после и в корпусе БЗОК нет существенной разницы, в какой среде будет двигаться запорный орган”. Это предположение абсолютно необоснованно и противоречит всем фундаментальным законам гидравлики.

4. Влияние гидроудара на функционирование БЗОК основано на известном механизме развития волн давления в однофазном потоке. Однако для рассматриваемых условий этот механизм не является определяющим. В рассматриваемом ИСА Т42 основным механизмом возможного гидроудара на паровой коллектор ПГ и БЗОК является теплогидродинамическая неустойчивость процессов наполнения ПГ, при которой уже в начальные моменты аварии может произойти резкое повышение уровня и гидроудар [5].

5. Необходимость квалификации систем, важных для безопасности, на запроектные условия определена КсППБУ и результатами стресс-тестов. Например, полный пересмотр запроектной сейсмики.

“Слабое” влияние на ЧПАЗ отказа БЗОК сегодня не может быть серьезным аргументом. Например, по результатам Отчета по анализу безопасности (ОАБ) ВВЭР ИСА “Полное обесточивание станции” имеет вероятность порядка 10^{-7} год⁻¹ (при базовых ЧПАЗ $10^{-4} \dots 10^{-5}$ год⁻¹). Однако, после Фукусимы уже ни у кого нет сомнений, что это ИСА *надо рассматривать* (как и другие маловероятные ИСА).

Уроки Фукусимы также показали, что развитие аварий может сопровождаться множественными отказами как систем безопасности (в том числе пассивных и систем контроля), так и ошибочными действиями персонала.

В отношении возможной адаптации результатов квалификации на воду БЗОК реакторных установок В-302 и В-338 для серийных реакторных установок В-320 необходимо отметить следующее:

1. Квалификация для БЗОК на воду для реакторной установки В-320 *не может* быть адаптирована

на результаты квалификации БЗОК реакторных установок В-302 и В-338 по следующим причинам:

квалификация на воду для БЗОК реакторных установок В-302 и В-338 недостаточно обоснована и базируется в большинстве случаев на неадекватных предположениях и крайне грубых оценках;

не учитываются специфические особенности развития аварийных процессов в реакторной установке В-320 (в том числе в отношении наличия системы ПАУТ).

2. Квалификация на воду для БЗОК реакторной установки В-320 должна основываться на результатах ОАБ В-320 и учитывать полный спектр критериев квалификации (консервативное соотношение времени на закрытие и попадание воды в БЗОК; на динамическое воздействие водяного потока на шток при закрытии; на условия гидроударов, вызванных неустойчивостью, и т. п.).

Список использованной литературы

1. НП 306.2.141-2008. Общие положения обеспечения безопасности атомных станций (ОПБ АС-2008). — К. : Государственный комитет ядерного регулирования Украины, 2008. — 62 с.
2. Техническое обоснование безопасности сооружения и эксплуатации АЭС. Южно-Украинская АЭС. Блок 1. Кн. 3 : 23.1.27.ОБ.05.03. — ОАО ХИ “Энергопроект”.
3. Анализ нарушений нормальной эксплуатации и проектных аварий при работе энергоблока на мощности. Корректировка ОАБ энергоблока № 1 ЮУАЭС. Анализ проектных аварий : техн. отчет. Согласован ГКЯРУ 17.01.2007, исх. № 15-32/274. — ГП НАЭК “Энергоатом”.
4. Анализ запроектных аварий. Выполнение расчетных анализов для отобранных сценариев ЗПА при работе реакторной установки на мощности. Южно-Украинская АЭС. Блок 1: 23.1.27.ОБ.03.00. — ГП НАЭК “Энергоатом”.
5. Скалозубов В. И. Научно-технические основы мероприятий повышения безопасности АЭС с ВВЭР : монография / В. И. Скалозубов, А. А. Ключников, Ю. А. Комаров, А. В. Шавлаков. — Чернобыль : Ин-т проблем безопасности АЭС НАН Украины, 2010. — 200 с.

Получено 28.07.2014

УДК 630*18:504.064.2(477.41)

М. М. Давидов, Т. І. Протас, М. П. Савущик

ДП “Київська лісова науково-дослідна станція”

Українського науково-дослідного інституту лісового господарства та агролісомеліорації (ДП “КЛНДС”)

НАКОПИЧЕННЯ РАДІОНУКЛІДІВ В ОСНОВНИХ КОМПОНЕНТАХ ЛІСОВИХ ЕКОСИСТЕМ КИЇВСЬКИХ ПОЛІССЯ ТА ЛІСОСТЕПУ

Наведено основні результати багаторічного експериментального вивчення динаміки розповсюдження радіонуклідів ^{137}Cs і ^{90}Sr в лісових екосистемах Київських Полісся та Лісостепу, що були забруднені внаслідок аварії на Чорнобильській АЕС.

Ключові слова: радіоекологія, Чорнобильська атомна електростанція, лісові екосистеми, Київське Полісся, Київський Лісостеп.

Сучасний радіаційний стан лісів Київських Полісся та Лісостепу визначається двома головними факторами: вмістом радіонуклідів у ґрунтах, який сформувався внаслідок аварійних викидів Чорнобильської АЕС у 1986 році, та ступенем радіоактивного забруднення компонентів лісових екосистем та тваринного світу.

Ці фактори обумовлюють надходження радіонуклідів у нижній шар лісової підстилки та верхній шар гумусо-елювіального горизонту мінеральної частини ґрунту, де міститься більшість всмоктуючих коренів рослин.

Інтенсивність накопичення радіонуклідів у компонентах фітомаси рослин визначається ботанічною особливістю виду, а також агрохімічними та фізико-хімічними властивостями ґрунту, а саме: механічним та мінералогічним складом, кислотністю, вмістом органічних речовин, вологістю тощо.

Ліси зони Київського Полісся мають суттєві розбіжності за лісорослинними умовами та породним складом дерев порівняно з Київським Лісостепом, тому спостерігається відмінність коефіцієнтів переходу ^{137}Cs і ^{90}Sr з ґрунту до рослин, що обумовлює різний ступінь накопичення радіонуклідів фітомасою лісонасаджень.

Об'єкти та методика досліджень. Вивчення міграції ^{137}Cs і ^{90}Sr в лісових екосистемах Київських Полісся і Лісостепу проводилось на постійних

пробних площах (ППП), які розташовані в типових у лісорослинному відношенні умовах цих зон. ППП розташовані на території Богуславського, Іванківського та Поліського держлісгоспів (ДЛГ) Київської області (табл. 1).

У лісових насадженнях Київського Полісся дослідження проводились у свіжих соснових досягаючих суборах. Дані кругообігу радіонуклідів в екосистемах Полісся порівнювались з розповсюдженням радіонуклідів у лісових змішаних грабово-дубових досягаючих насадженнях Лісостепу, що розташовані в Таращанському лісництві Богуславського ДЛГ.

Натурні та лабораторні дослідження радіаційного стану лісонасаджень проводили за загальноприйнятими методиками [2—5].

Сучасний розподіл радіонуклідів у лісових ґрунтах. Дослідження розподілу радіонуклідів у компонентах лісового біоценозу показали, що в лісових насадженнях основна частка сумарної активності радіонуклідів припадає на ґрунт та лісову підстилку. У лісовій підстилці виділяють три шари: верхній A_0L — опад; середній A_0F — слабо розкладена підстилка; нижній A_0H — сильно розкладена підстилка. В соснових насадженнях зазвичай наявні всі три шари, така лісова підстилка має товщину 5—7 см і є повнопрофільною. В листяних насадженнях певні шари лісової підстилки можуть бути відсутні.

Таблиця 1. Таксаційна характеристика об'єктів досліджень за даними лісовпорядження 1993—94 рр.

Код ППП	Місцезнаходження		Квартал/ділянка	Породний склад дерев ¹	Вік, років	Висота, м	Діаметр, см	Повнота	Бонітет	Тип лісу ²	ЩПЗ ³ , кБк/м ²	
	Держлісгосп	Лісництво									^{137}Cs	^{90}Sr
I2	Іванківський	Оранське	18/4	10С	35	12	16	0,8	I	В ₂ ДС	90	34
П12	Поліський	Котовське	19/5	7СЗБ	25	14	16	1,0	I	В ₂ ДС	1600	12
БТ1	Богуславський	Таращанське	22/2	6Д2Я2Г+Лп	38	17	18	0,9	I	Д ₂ ГД	260	22
БТ2	Богуславський	Таращанське	19/5	8Д1Я1Г	60	22	26	0,7	I	Д ₂ ГД	170	16

Примітки:

1. Породний склад дерев — кількість дерев даної породи у групі з 10 дерев: С — сосна, Б — береза, Д — дуб, Я — ясен, Г — граб, Лп — липа.

2. Тип лісу: В₂ДС — свіжий дубово-сосновий субір, Д₂ГД — свіжа дубово-грабова діброва.

3. Щільність поверхневого забруднення (ЩПЗ) станом на 2001 р.

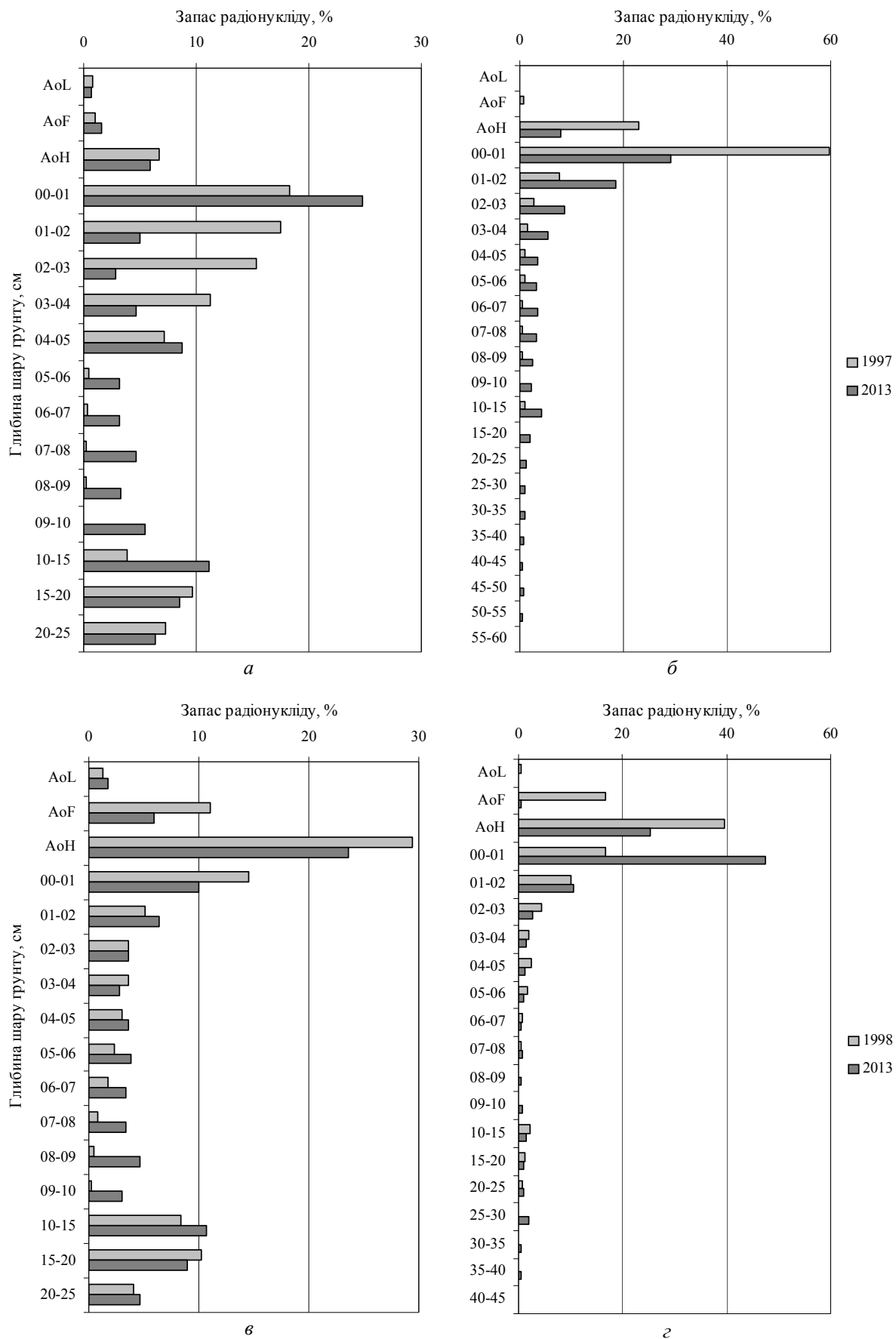


Рис. 1. Діаграми розподілу радіонуклідів ^{90}Sr (а, в) і ^{137}Cs (б, г) у свіжому дерновому слабопідзолистому піщаному ґрунті пробної площі П12 (а, б) та пробної площі І2 (в, г) у різні роки.

Таблиця 2. Динаміка перерозподілу ^{137}Cs та ^{90}Sr між лісовою підстилкою (П) та ґрунтом (Г) під сосновими насадженнями Київського Полісся, %

Рік спостереження	Пробна площа І2				Пробна площа ПІ2			
	^{137}Cs		^{90}Sr		^{137}Cs		^{90}Sr	
	П	Г	П	Г	П	Г	П	Г
1994	—	—	—	—	25,3	74,7	—	—
1997	52,3	47,7	—	—	44,6	55,4	31,9	68,1
2001	73,6	26,4	43,7	56,3	—	—	—	—
2002	38,7	61,3	60,4	39,6	—	—	—	—
2003	39,0	61,0	56,3	43,7	15,4	84,6	27,6	72,4
2008	14,4	85,6	14,5	85,5	4,1	95,9	2,9	97,1
2013	26,0	74,0	31,3	68,7	8,2	91,8	8,2	91,8

У шарах лісової підстилки відбувається повільна зміна перерозподілу запасу радіонуклідів, причому найбільша кількість радіонуклідів накопичується в сильно розкладеній підстилці.

Одночасно радіонукліди переміщуються з лісової підстилки переважно у верхній 0—2-сантиметровий шар ґрунту та мігрують вздовж ґрунтового профілю (рис. 1, табл. 2).

Як видно, за останні 15 років запас радіонуклідів у повнопрофільній підстилці лісових насаджень Київського Полісся зменшився на 15—25 % за рахунок того, що частина радіонуклідів перейшла у верхній 0—1-сантиметровий шар ґрунту.

Листяна підстилка лісонасаджень Київського Лісостепу містить незначну кількість радіонуклідів (0,4—0,6 % ^{137}Cs і 0,9—2,5 % ^{90}Sr) порівняно з валовим вмістом радіонуклідів у ґрунті (табл. 3).

Основна частина радіонуклідів ^{137}Cs і ^{90}Sr міститься у верхньому 0—10-сантиметровому шарі ґрунту та лісовій підстилці. У сірих лісових суглинистих ґрунтах ці радіонукліди мігрують вглиб інтенсивніше, ніж у дерново-підзолистих піщаних ґрунтах.

Якщо у дерново-підзолистих піщаних ґрунтах до 90 % ^{137}Cs і до 80 % ^{90}Sr містяться у верхньому 0—5-сантиметровому шарі ґрунту та у підстилці, то в сірих лісових ґрунтах ^{137}Cs розповсюдився глибше та накопичився у 0—10-сантиметровому шарі, а ^{90}Sr — у 0—15-сантиметровому шарі ґрунту. Сірі лісові ґрунти містять більше органічної речовини, а також мулистої фракції. Ці обидва чинники, як відомо, мають зменшувати інтенсивність міграції. Натомість у природних умовах, за рахунок біогенної міграції, спостерігається протилежний процес — вертикальна міграція в сірих лісових ґрунтах відбувається інтенсивніше.

Таблиця 3. Динаміка перерозподілу ^{137}Cs та ^{90}Sr між лісовою підстилкою (П) та ґрунтом (Г) під листяними насадженнями Київського Лісостепу, %

Рік спостереження	Пробна площа БТ1				Пробна площа БТ2			
	^{137}Cs		^{90}Sr		^{137}Cs		^{90}Sr	
	П	Г	П	Г	П	Г	П	Г
2002	0,4	99,6	2,5	97,5	0,6	99,4	1,4	98,6
2008	0,4	99,6	0,9	99,1	0,6	99,4	2,3	97,7

Водночас, внаслідок іонного обміну та процесів сорбції та десорбції, відбувається проникнення радіонуклідів у глибше лежачі шари ґрунту. Розподіл радіонуклідів вздовж ґрунтового профілю (q , (Бк/м²)/см) носить експоненціальний характер і може бути описаний рівняннями стандартної дифузійної моделі виду

$$q(x,t) = \frac{Q}{\sqrt{4\pi Dt}} e^{-\frac{x^2}{4Dt}}$$

або

$$q(x,t) = \frac{Qd}{\sqrt{4\pi D_m t}} e^{-\frac{x^2}{4D_m t}} + \frac{Q(1-d)}{\sqrt{4\pi D_b t}} e^{-\frac{x^2}{4D_b t}},$$

де x — глибина шару ґрунту, см; t — час з моменту забруднення ґрунту радіонуклідом, с; Q — повний запас радіонуклідів, Бк/м²; D — коефіцієнт квазі-дифузії, см²/с; d — повільна компонента міграції, частки; D_m , D_b — коефіцієнти повільної та швидкої міграції, відповідно, см²/с.

У свіжому дерново-слабопідзолистому піщаному ґрунті лісорослинних умов Київського Полісся та у свіжих сірих лісових ґрунтах Київського Лісостепу ^{90}Sr показує більшу рухомість (табл. 4): він має більшу долю швидкої компоненти $(1-d)$ і вище значення швидкої компоненти D_b . Його швидка компонента на порядок вища, ніж у ^{137}Cs , що відповідає збільшенню відносної кількості ^{90}Sr в 5—25-сантиметровому шарі ґрунту.

За даними коефіцієнтів квазідифузії шляхом варіювання часового параметру можна розрахувати розподіл радіонуклідів в ґрунті в наступні 30—50 років. Ці розрахунки показують, що головний запас ^{137}Cs (90 %) і ^{90}Sr (75 %) буде міститися в 0—25-сантиметровому коренезаселеному шарі ґрунту, отже головним механізмом очищення вищезгаданого шару ґрунту буде природний розпад цих радіонуклідів.

У листяних лісонасадженнях підстилка малопотужна та неповнопрофільна; отже, окремі шари підстилки можуть бути відсутні (табл. 5, 6).

Разом підстилка і верхній 0—5-сантиметровий шар дерново-слабопідзолистих лісових ґрунтів Полісся містять 70—90 % ^{137}Cs та 60—75 % ^{90}Sr . Найбільший запас радіонуклідів спостерігається в 1—2-сантиметровому шарі ґрунту — близько 30 % ^{137}Cs та близько 20 % ^{90}Sr .

Таблиця 4. Параметри дифузії ^{137}Cs і ^{90}Sr в ґрунтах Київського Полісся та Київського Лісостепу

Параметри дифузії	Київське Полісся		Київський Лісостеп	
	^{137}Cs	^{90}Sr	^{137}Cs	^{90}Sr
$D, \times 10^{-8} \text{ см}^2/\text{с}$	0,22±0,04	1,0±0,6	2,6±0,1	15,1±2,2
$D_m, \times 10^{-9} \text{ см}^2/\text{с}$	1,1±0,3	0,5±0,1	23±10	150±21
$D_b, \times 10^{-7} \text{ см}^2/\text{с}$	0,10±0,04	1,0±0,4	0,4±0,2	1,5±0,2
d , частки	0,59±0,01	0,5±0,1	0,71±0,16	0,84±0,06

Таблиця 5. Динаміка розподілу ^{137}Cs вглиб ґрунтового профілю в лісонасадженнях Київського Полісся і Київського Лісостепу, %

Шар підстилки та ґрунту, см	Київське Полісся						Київський Лісостеп	
	1994	1997	2001	2003	2008	2013	2002	2008
A ₀ L	0,01	0,05	0,02	0,50	0,10	0,05	0,04	0,01
A ₀ F	1,10	2,25	3,70	3,70	0,90	0,40		
A ₀ H	24,2	45,9	59,0	28,7	18,3	17,5	0,5	0,5
0—1	54,0	36,7	22,3	28,0	36,1	38,4	9,1	14,5
1—2	5,5	7,0	5,8	18,0	17,9	14,6	16,6	20,3
2—3	1,4	3,4	2,1	5,4	7,0	5,7	18,9	18,3
3—4	1,0	1,5	1,2	3,1	4,9	3,5	14,2	12,3
4—5	0,6	1,2	1,7	2,0	3,1	2,3	13,0	9,9
5—10	1,6	0,4	2,0	5,5	6,8	9,1	22,9	22,4
10—15	5,4	0,6	1,2	2,3	2,3	2,9	3,3	1,6
15—20	4,5	0,6	0,7	1,5	1,3	1,6	1,2	0,2
глибше 20	0,7	0,6	0,3	1,4	1,6	4,3	0,5	0,1

Підстилка і верхній 0—5-сантиметровий шар сірих лісових ґрунтів Лісостепу містить близько 70 % ^{137}Cs і 40 % ^{90}Sr . Найбільший запас радіонуклідів у 1—3-сантиметровому шарі ґрунту — 15—20 % ^{137}Cs та 7—12 % ^{90}Sr . При цьому ^{90}Sr в ґрунтовому профілі розподіляється рівномірніше, ніж ^{137}Cs .

Діяльність зоо- та ентофауни і вплив коренів трав'яної рослинності суттєво впливають на перерозподіл радіонуклідів, особливо у верхньому 0—5-сантиметровому шарі лісового ґрунту, де заселеність цією фауною максимальна. Внаслідок цього впливу верхні шари ґрунту мають “пористу” структуру, яка зберігається тривалий час. Наявність таких “порожнин” призводить до зменшення запасу радіонуклідів в цих шарах ґрунту. При цьому ^{90}Sr має більшу швидкість міграції, ніж ^{137}Cs .

Таблиця 7. Питома активність ^{137}Cs і ^{90}Sr у компонентах фітомаси сосни і берези на пробних площах І2 та ПІ2 у 2013 р., Бк/кг

Компонент фітомаси	І2		ПІ2			
	Сосна		Сосна		Береза	
	^{90}Sr	^{137}Cs	^{90}Sr	^{137}Cs	^{90}Sr	^{137}Cs
Деревина без кори, низ	223	<10,0	134	2700	256	1240
Деревина без кори, середина	347	<10,0	108	2270	145	1100
Деревина без кори, верх	357	21,4	121	2820	144	1630
Деревина з корою, низ	336	32,8	137	3700	344	2120
Деревина з корою, середина	424	<10,0	150	3310	302	1410
Деревина з корою, верх	425	18,9	141	3360	293	1670
Хвоя (листя) 1-річна	491	66,0	109	35800	903	7140
Хвоя 2-річна	965	24,9	387	6320	—	—
Хвоя 3-річна	1340	68,5	791	6370	—	—
Пагони 1-річні	639	130	172	38900	900	4540
Пагони 2-річні	578	28,3	220	9590	—	—
Пагони 3-річні	1044	57,2	303	7230	—	—
Гілки	637	15,0	234	4890	471	1620

Таблиця 6. Динаміка розподілу ^{90}Sr вглиб ґрунтового профілю у лісонасадженнях Київських Полісся і Київського Лісостепу, %

Шар підстилки та ґрунту, см	Київське Полісся						Київський Лісостеп	
	1997	1998	2001	2003	2008	2013	2002	2008
A ₀ L	0,8	1,3	0,3	1,7	1,3	1,2	0,4	0,1
A ₀ F	11,1	11,0	2,6	7,6	2,6	3,8		
A ₀ H	30,1	33,9	40,8	26,8	4,9	14,9	1,7	1,6
0—1	18,3	14,6	12,5	22,3	35,1	17,4	6,1	10,2
1—2	7,5	5,1	6,0	7,3	8,3	5,7	9,5	9,7
2—3	6,5	3,6	3,2	6,7	3,7	3,2	8,1	7,2
3—4	3,5	3,6	2,5	4,6	2,1	3,8	6,9	6,7
4—5	1,3	3,1	2,8	3,9	1,9	6,2	6,9	6,3
5—10	5,2	1,1	11,0	9,5	9,3	18,9	28,7	26,0
10—15	3,8	8,3	6,1	5,8	16,8	10,9	11,2	11,8
15—20	9,7	10,3	9,1	2,2	8,5	8,7	11,0	10,5
глибше 20	2,2	4,1	3,1	1,7	5,7	5,5	9,9	10,0

Сучасний розподіл радіонуклідів у компонентах фітомаси лісонасаджень. Розглянувши розподіл радіонуклідів у біомасі лісонасаджень, відмітимо, що деревний полог лісонасаджень Полісся і Лісостепу утримує незначний відсоток активності радіонуклідів порівняно з їх загальним запасом в екосистемі: 5—15 % ^{90}Sr і 5—10 % ^{137}Cs залежно від бонітету і повноти насаджень — характеристик, які визначають кількість біомаси насаджень.

Інтенсивність накопичення радіонуклідів виражається коефіцієнтами переходу радіонуклідів у компоненти фітомаси лісонасаджень. У табл. 7 наведено середні значення питомої активності, а в табл. 8 — середні коефіцієнти переходу ^{137}Cs і ^{90}Sr до деревини на висоті 1,3 м (низ), $\frac{1}{2}$ висоти (середина) і $\frac{3}{4}$ висоти (верх) стовбура.

Таблиця 8. Коефіцієнти переходу ^{137}Cs і ^{90}Sr у компоненти фітомаси сосни і берези на пробних площах І2 та ПІ2 у 2013 р., (Бк/кг)/(кБк/м²)

Компонент фітомаси	І2		ПІ2			
	Сосна		Сосна		Береза	
	^{90}Sr	^{137}Cs	^{90}Sr	^{137}Cs	^{90}Sr	^{137}Cs
Деревина без кори, низ	11,2	<0,2	14,3	2,6	27,3	1,2
Деревина без кори, середина	17,4	<0,2	11,5	2,2	15,5	1,1
Деревина без кори, верх	17,9	0,4	12,9	2,8	15,4	1,6
Деревина з корою, низ	16,9	0,5	14,6	3,6	36,7	2,1
Деревина з корою, середина	21,3	<0,2	16,0	3,2	32,2	1,4
Деревина з корою, верх	21,4	0,3	15,0	3,3	31,2	1,6
Хвоя (листя) 1-річна	24,7	1,1	11,6	35,0	96,3	7,0
Хвоя 2-річна	48,5	0,4	41,3	6,2	—	—
Хвоя 3-річна	67,3	1,1	84,3	6,2	—	—
Пагони 1-річні	32,1	2,1	18,3	38,1	95,9	4,4
Пагони 2-річні	29,0	0,5	23,5	9,4	—	—
Пагони 3-річні	52,5	0,9	32,3	7,1	—	—
Гілки	32,0	0,2	24,9	4,8	50,2	1,6

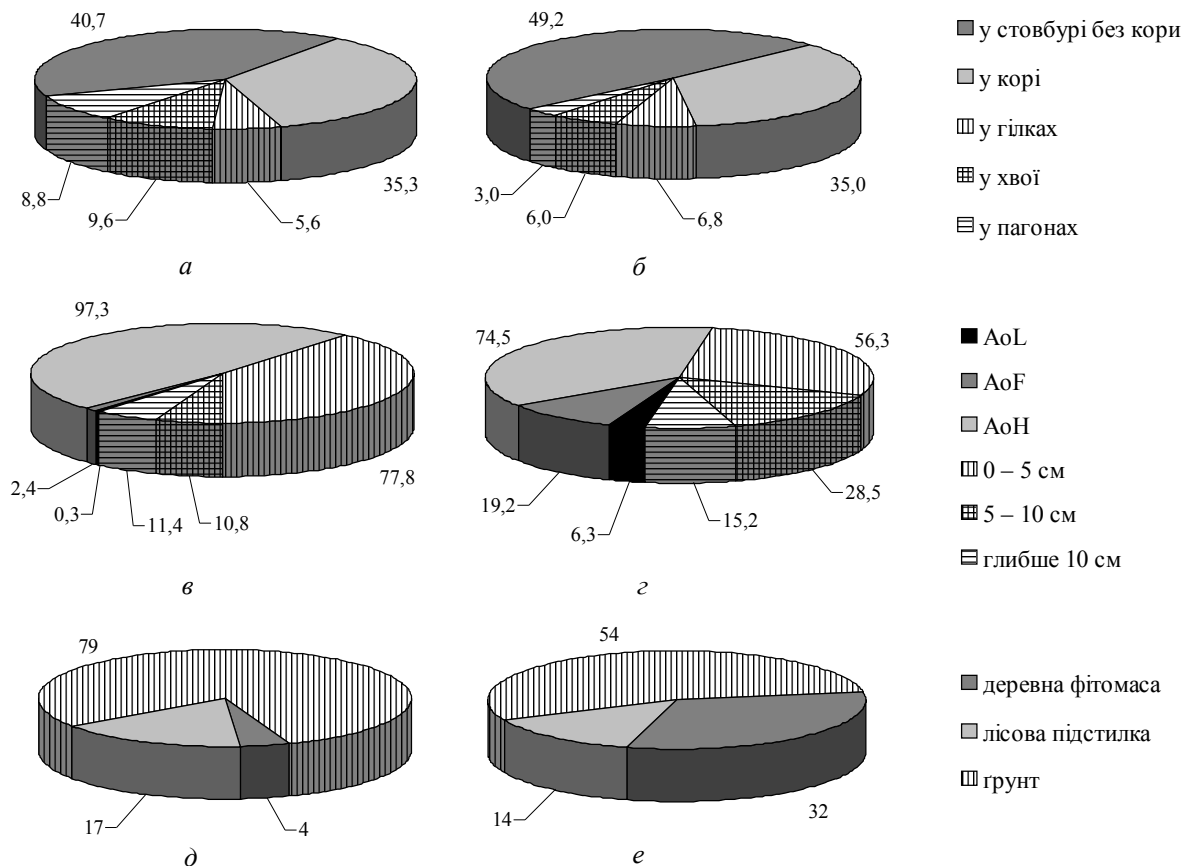


Рис. 2. Відносний розподіл ^{137}Cs (а, в, д) і ^{90}Sr (б, г, е), Київське Полісся, 2013 р., %:
 а, б — у компонентах деревного пологусоснового насадження;
 в, г — у ґрунті і лісовій підстилці соснового насадження;
 д, е — між ґрунтом, лісовою підстилкою та деревною фітомасою соснового насадження

Розподіл ^{90}Sr у компонентах фітомаси крони сосни відрізняється від відповідного розподілу ^{137}Cs . ^{137}Cs максимально накопичується у хвої та пагонах поточного року, його питома активність у цих компонентах більша за питому активність минулорічних приростів у 5—10 разів. ^{90}Sr , навпаки, максимально накопичується в минулорічних приростах, його питома активність в них у 2—5 разів більша, ніж у приростах поточного року. Враховуючи те, що загальна фітомаса пагонів і хвої попередніх років в кілька разів більша, ніж фітомаса поточного року, можна зробити висновок, що міграція ^{90}Sr в лісових екосистемах з опадом та подальший його кругообіг відбуваються інтенсивніше, ніж ^{137}Cs .

Відносний розподіл радіонуклідів розраховувався у такий спосіб. За даними таксаційних вимірів, таких як повнота, середні висота і діаметр насадження (див. табл. 1), за Нормативами оцінки наземної фітомаси деревостанів [1] визначався запас компоненти $[\text{кг}/\text{м}^2]$. Множенням питомої активності радіонукліда в компоненті фітомаси $[\text{Бк}/\text{кг}]$ на кількість

її на квадратному метрі пробної площі $[\text{кг}/\text{м}^2]$ отримували величину запасу радіонуклідів у даній компоненті фітомаси на квадратному метрі $[\text{Бк}/\text{м}^2]$. Далі запаси радіонуклідів усіх компонент підсумовували та переводили у відносні одиниці. Аналогічно розраховувався розподіл запасу радіонуклідів у ґрунті та шарах підстилки, а також у деревостой (рис. 2).

У табл. 9 наведено коефіцієнти переходу радіонуклідів в окремі компоненти деревного намету головних лісових порід, що зростають в умовах свіжої дубово-грабової діброви Київського Лісостепу. Коефіцієнти переходу ^{137}Cs з ґрунту в деревину дуба становлять близько $0,1 (\text{Бк}/\text{кг})/(\text{кБк}/\text{м}^2)$, а ^{90}Sr — $1,6 (\text{Бк}/\text{кг})/(\text{кБк}/\text{м}^2)$. Відповідні значення коефіцієнтів переходу ^{137}Cs для деревини дуба, що зростає в умовах Київського Полісся, склали близько $2,5 \dots 3,0 (\text{Бк}/\text{кг})/(\text{кБк}/\text{м}^2)$, а ^{90}Sr — $8 \dots 10 (\text{Бк}/\text{кг})/(\text{кБк}/\text{м}^2)$. Отже, надходження радіонуклідів в деревину головної породи дерева — дуба — в умовах Лісостепу в 2—4 рази менше, ніж в умовах Полісся.

Таблиця 9. Коефіцієнти переходу ^{137}Cs і ^{90}Sr для окремих компонентів деревостану в умовах Київського Лісостепу у 2002 році, (Бк/кг)/(кБк/м²)

Компонент деревостану	Граб		Дуб		Ясен	
	^{137}Cs	^{90}Sr	^{137}Cs	^{90}Sr	^{137}Cs	^{90}Sr
Деревина без кори	0,08±0,09	4,3±0,9	0,09±0,08	1,6±0,6	0,10±0,03	2,4±0,6
Кора	1,4±0,9	51,6±27,3	2,2±1,8	17,5±7,2	2,0±1,1	39,2±16,4
Луб	0,5±0,3	51,6±23,4	0,14±0,09	30±7	0,2±0,1	59,6±35,2
Гілки	0,12±0,02	29,2±0,7	0,11±0,01	6,6±1,7	0,10±0,02	17,1±7,8
Листя	0,56±0,08	25,7±8,9	0,6±0,1	5,1±0,8	0,4±0,1	22,2±5,5

Фітомаса найпоширеніших свіжих грабово-дубових лісів Київського Лісостепу (1-й бонітет, повнота 0,7—0,9) утримує в собі ^{137}Cs від 0,2 % для середньовікових до 0,4 % для дозріваючих вікових груп валового запасу радіонуклідів у лісовій екосистемі і, відповідно, від 8 % до 11 % ^{90}Sr (табл. 10). Ці значення дещо збільшуються (на 15—25 %), якщо до накопичення радіонуклідів надземною фітомасою насадження додати накопичення радіонуклідів кореневою системою дерев.

Коефіцієнти переходу ^{137}Cs у деревину соснових лісонасаджень залишаються досі сталими, але запас ^{137}Cs у лісонасадженнях збільшується за рахунок збільшення біомаси дерев з щорічним приростом (рис. 4). Коефіцієнти переходу ^{90}Sr в деревину соснових лісонасаджень останнім часом мають тенденцію до зростання (рис. 4, а), особливо зросло забруднення ^{90}Sr деревини берези (рис. 4, б).

Висновки

1. Деревний полог соснового насадження утримує незначну частку радіонуклідів від їх загального запасу в екосистемі — 5...12 % ^{90}Sr і 3...8 % ^{137}Cs залежно від бонітету і повноти лісонасаджень, які визначають кількість біомаси насадження.

2. Середнє значення коефіцієнта переходу ^{90}Sr з ґрунту до деревини сосни, яка зростає в найпоширеніших умовах для Київського Полісся — свіжих соснових суборах — 10 (Бк/кг)/(кБк/м²), а ^{137}Cs — 1,2 (Бк/кг)/(кБк/м²).

Таблиця 10. Розподіл ^{137}Cs і ^{90}Sr у компонентах деревостану в умовах Київського Лісостепу у 2002 р., %

Компонент деревостану	Пробна площа БТ1		Пробна площа БТ2	
	^{137}Cs	^{90}Sr	^{137}Cs	^{90}Sr
Стовбур у корі	0,2	5,6	0,4	7,9
Гілки у корі	0,02	2,1	0,02	2,7
Листя	0,01	0,4	0,01	0,5
Р а з о м	0,2	8,1	0,4	11,1
Ґрунт	99,8	91,9	99,6	88,9

3. Останні роки спостерігається тенденція стабілізації запасу ^{137}Cs у фітомасі дерев і забруднення деревини головної лісоутворюючої породи Київського Полісся — сосни — залишається постійним.

4. Середнє значення коефіцієнта переходу ^{90}Sr до деревини сосни за останні 15 років збільшилося майже вдвічі, а середнє значення коефіцієнта переходу ^{90}Sr до деревини берези — майже в 10 разів.

5. Запас радіонуклідів ^{90}Sr і ^{137}Cs у деревній фітомасі продовжує збільшуватися внаслідок надходження радіонуклідів з ґрунту та збільшення фітомаси з щорічним приростом.

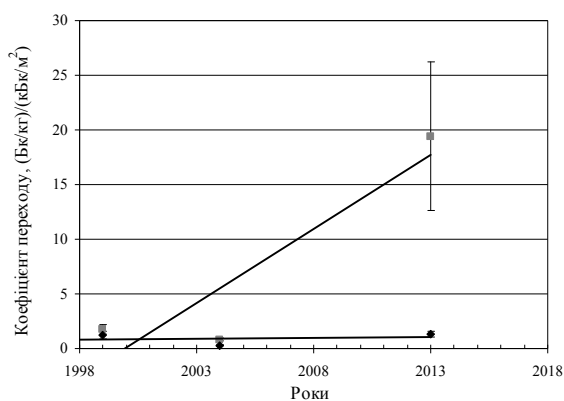
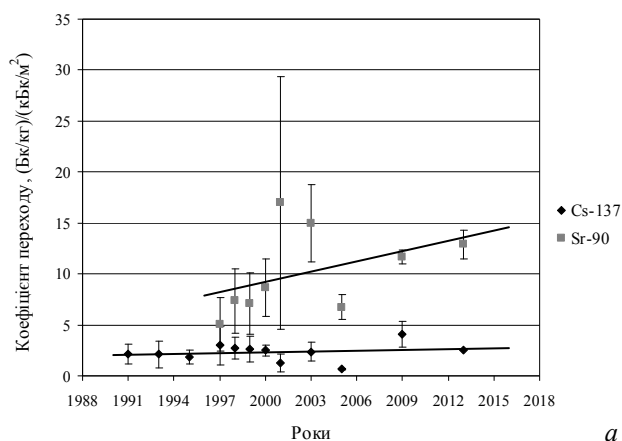


Рис. 3. Динаміка зміни коефіцієнтів переходу ^{90}Sr і ^{137}Cs до деревини сосни звичайної (а) та берези звичайної (б) з лінійними трендами в умовах свіжого дубово-соснового субору Київського Полісся

Список використаної літератури

1. Лакида П. И. Фитомасса лесов Украины / П. И. Лакида. — Тернополь : Збруч, 2002. — 256 с.
2. Активность радионуклидов в объемных образцах. Методика выполнения измерений на гамма-спектрометре : МИ 2143-91. — М. : НПО ВНИИФТРИ, 1991. — 17 с.
3. Методичні рекомендації з оцінки природної радіоактивності об'єктів навколишнього середовища : Затв. Головним державним санітарним лікарем УРСР 24.08.1987 р.
4. Активность бета-излучающих радионуклидов в счетных образцах. Методика выполнения измерений с использованием сцинтилляционных спектрометров и программного обеспечения АК-1. — Киев : Атом-КомплексПрилад, 1998.
5. Методика визначення об'ємної та питомої активності бета-випромінюючих нуклідів у воді, продуктах харчування, рослинності та ґрунту методом прямого виміру "товстих проб" : Затверджена Держстандартом, Держагропромом, Головним державним санітарним лікарем СРСР. — 1987.

Отримано 04.05.2014

УДК 66.081:[546.36+546.42]

Г. Н. Пишико, С. А. Кобец, В. М. Федорова

Институт коллоидной химии и химии воды им. А. В. Думанского НАН Украины, г. Киев

СОРБЦИЯ-ДЕСОРБЦИЯ ^{137}Cs И ^{90}Sr В ПРОЦЕССАХ МИГРАЦИИ И ДЕЗАКТИВАЦИИ

Исследованы процессы сорбции-десорбции в системах “радионуклид (^{137}Cs , ^{90}Sr)—природные глинистые минералы” и “радионуклид (^{137}Cs , ^{90}Sr)—модифицированные формы природных глинистых минералов с осажденными гумусовыми кислотами и гидроксидами железа”. Установлено, что наличие на поверхности глинистых минералов гуминовых кислот и $\text{Fe}(\text{OH})_3$ приводит к увеличению сорбции радионуклидов в широкой области pH (4...9). Ионы Na^+ , Ca^{2+} с повышением их концентрации в водном растворе, наоборот, снижают фиксацию ^{137}Cs , ^{90}Sr и способствуют их миграции в окружающей среде. Показано, что аммонийные соли являются эффективными выщелачивающими реагентами по отношению к ионам цезия и по десорбирующей способности их можно расположить в ряд $\text{NH}_4\text{Cl} < \text{NH}_4\text{H}_2\text{Cit} < (\text{NH}_4)_2\text{Ox} < (\text{NH}_4)_2\text{HCit}$.

Ключевые слова: радионуклиды ^{137}Cs и ^{90}Sr , сорбция-десорбция, природные и модифицированные глинистые минералы, выщелачивающие реагенты.

На современном этапе развития ядерная энергетика все еще остается потенциально опасной отраслью индустрии в мире, о чем свидетельствуют две самые крупные аварии на АЭС Украины и Японии. Из большого количества радионуклидов техногенного происхождения наиболее опасны в биотическом цикле ^{137}Cs и ^{90}Sr , которые являются одними из основных дозообразующих радионуклидов загрязненных почв и водных сред [1—3]. Известно, что почвы являются аккумулятором загрязняющих веществ, в т. ч. радионуклидов, причем их способность самоочищения слабо выражена, в отличие от других компонентов окружающей среды (воздух, вода). Поэтому вопросы дезактивации почв все еще остаются важными практически для всех развитых стран, использующих ядерную энергетику, поскольку с каждым годом роль АЭС, как источника электроэнергии, возрастает. Целый ряд катастроф техногенного и антропогенного характера с выбросом радиоактивных веществ из хранилищ радиоактивных отходов, при аварийных и штатных ситуациях на АЭС, атомных подводных лодках подтверждает актуальность исследований поведения долгоживущих радионуклидов как в различных объектах окружающей среды, так и при дезактивации.

Исследованиям уровня загрязнения почв ^{137}Cs , ^{90}Sr и другими радионуклидами техногенного происхождения как в 30-км зоне ЧАЭС, так и за ее пределами (в Центральной лесостепи Украины [4], в типичных склоновых и горных экосистемах [5]), уделено много внимания. Проведен анализ перераспределения техногенных радионуклидов в абиотических компонентах осушаемых ландшафтов зоны отчуждения ЧАЭС [2]. Экспериментально определены уровни загрязнения разных территорий Украины и разработаны модели для оценки долгосрочного влияния радиоактивных загрязнений

на локальные экосистемы, в частности, объекта “Укрытие” Чернобыльской АЭС [6]. Такие данные позволяют оценить влияние ландшафтных факторов на поведение радионуклидов и, в какой-то степени, прогнозировать радиоэкологическую ситуацию в данном регионе. Однако такой подход не дает возможность оценить влияние различных факторов на подвижность радионуклидов в окружающей среде, а именно: величины ионной силы водного раствора, заряда катионов, концентрации гумусовых веществ (ГВ) в растворе и осажденных на поверхности минералов, природы твердой фазы и содержания в ней глинистых компонентов и др. Поэтому важно оценить вклад в этот процесс каждой составляющей как водных сред, так и грунтов.

На сегодняшний день хорошо изучена сорбция ^{137}Cs и ^{90}Sr различными минералами, в частности природными алюмосиликатами, оксидами и гидроксидами металлов (Fe, Al, Mn) [7]. Достаточно полно в литературе представлено взаимодействие радионуклидов с растворимыми ГВ. В [8] показано, что связывание ^{90}Sr наблюдается в большей степени именно с ними, обуславливая тем самым высокую его подвижность в почвах. Для радионуклидов цезия характерно образование прочных комплексов с природными алюмосиликатами — типичными минеральными компонентами почв, а присутствие растворимых ГВ — фульвокислот (ФК) — в водных растворах способствует снижению сорбции ^{137}Cs глинистыми минералами [9]. Работ относительно влияния осажденных на поверхности алюмосиликатов как ГВ, так и, особенно, гидроксидов железа на процессы сорбции ^{137}Cs и ^{90}Sr нами не обнаружено, хотя их роль в связывании токсиантов может быть весьма существенной.

Большое количество работ посвящено исследованиям геохимических форм нахождения ^{137}Cs и ^{90}Sr в объектах окружающей среды [10—12].

При этом, используя природные образцы почв и донных отложений, авторы указанных работ определяют содержание водорастворимой, обменной и кислоторастворимой фракций, а также потенциально подвижных форм радионуклидов, связанных в комплексы с органическими, органоминеральными составляющими почв и аморфными оксидами железа и алюминия. Проведение таких исследований позволяет оценить прочность иммобилизации радионуклидов в почвах в зависимости от их агрохимических свойств, а также выбрать наиболее эффективные и в то же время щадящие методы их дезактивации. Выбор способов ремедиации почв, не наносящих существенного вреда окружающей среде, несмотря на многообразие методов и природы выщелачивающих реагентов (комплексобразующих, растворяющих и/или выщелачивающих по механизму автодесорбции) все еще остается весьма актуальным [8]. Некоторые авторы, исследуя возможность реабилитации радиоактивно-загрязненных почв, рассматривают влияние на подвижность радионуклидов ГВ, где до сих пор нет единого мнения о таком “неспецифическом” взаимодействии [12, 13]. В работе [12] показана взаимосвязь основных химических характеристик почв, содержащих аморфные оксиды алюминия и железа, с прочностью иммобилизации радионуклидов. Авторы [12, 13] определяют растворимые формы радионуклидов в разных условиях, выбор которых не обосновывается (не приводятся зависимости влияния pH, концентрации выщелачивающих реагентов, а также состава раствора при совместном использовании нескольких реагентов на долю той или иной формы радионуклидов).

Цель данной работы — оценить влияние гуминовых кислот (ГК) и гидроксидов железа, осажденных на поверхности глинистых минералов с различной обменной емкостью, на закономерности процессов сорбции-десорбции ^{137}Cs и ^{90}Sr в модельных почвенно-водных системах.

Методика эксперимента. Исследование процессов сорбции-десорбции ^{137}Cs и ^{90}Sr проводили на очищенных образцах природных алюмосиликатов — монтмориллоните (М) Черкасского и каолините (К) Глуховецкого месторождений, а также на образцах этих же глинистых минералов с осажденными на их поверхности ГК (М-ГК, К-ГК) и гидроксидами Fe(III) (М-Fe, К-Fe) с массовой долей 5 % (50 мг ГК или Fe(III)/г глинистого минерала). Полная обменная емкость природных монтмориллонита и каолинита составляла 0,72 мг-экв/г и 0,013 мг-экв/г, соответственно. Методика получения глинистых минералов, модифицированных ГК и гидроксидами железа, и их рентгенографические характеристики описаны в работе [14].

Процессы десорбции изучали на вышеуказанных образцах, загрязненных ионами цезия, адсорбция

которого глинистыми компонентами почв является высокоспецифичной [3]. Для исследования десорбции готовили глинистую суспензию с $\text{pH} \approx 6$ — область pH наиболее высокой сорбции. Концентрацию ионов цезия в исходном растворе задавали расчетом навески монтмориллонита и количества раствора цезия, введенного в суспензию глинистого минерала. Содержание Cs^+ в образцах контролировали путем выщелачивания загрязненного образца (навеска 1 г) 6 М раствором азотной кислоты (50 см^3) с многократной промывкой дистиллированной водой до нейтрального значения pH промывных вод. Количество вымытого цезия в растворе определяли атомно-абсорбционным методом на спектрофотометре “С-115-М1” при длине волны $\lambda = 852,1 \text{ нм}$. Установлено, что полученные образцы содержали 21 мг Cs^+ /г сорбента.

Исследования сорбции-десорбции проводили в статических условиях при непрерывном встряхивании в течение одного часа (объем водной фазы — 50 см^3 , навеска образцов глинистых материалов — 0,1 г). После сорбции водную фазу отделяли центрифугированием (5000 об/мин) и определяли в ней активность ^{137}Cs и ^{90}Sr на бета-радиометре КРК-1-01А (в качестве стандарта использовали образцовые радиоактивные растворы (ОРР): средняя энергия β -излучения для ^{137}Cs — $1,87 \cdot 10^{-1} \text{ МэВ/Бк}\cdot\text{с}$, для ^{90}Sr — $1,96 \cdot 10^{-1} \text{ МэВ/Бк}\cdot\text{с}$) по сухому остатку аликвоты, одинаковой для всех исследуемых растворов [15]. В экспериментах по десорбции после установления равновесия водную фазу отделяли центрифугированием (5000 об/мин) и определяли в ней pH, а также равновесную концентрацию цезия атомно-абсорбционным методом.

При исследовании процессов сорбции удельная активность исходных растворов, приготовленных с добавлением радиоактивных меток из ОРР ^{137}Cs и ^{90}Sr , составляла $5 \cdot 10^4 \text{ Бк/дм}^3$, что позволяло надежно проводить ее измерение. В качестве носителей использовали растворы стабильных изотопов цезия (CsCl) и стронция (SrCl_2) с исходной концентрацией $5 \cdot 10^{-5} \text{ М}$. Эксперименты проводили с модельными и природными образцами вод с разным солевым составом с добавлением радиоактивных меток, которые выдерживали в течение одних суток для достижения изотопного обмена в системе.

Для десорбции ионов цезия использовали растворы хлорида железа (III), солей аммония — хлорида, оксалата, одно- и двухзамещенного цитрата, лимонной и щавелевой кислот, исходные растворы которых готовили из навесок соответствующих реагентов квалификации “хч”. Также использовали в качестве десорбирующих реагентов водорастворимые органические комплексообразующие вещества природного происхождения — ФК — практически беззольные препараты (зольность $< 0,1 \%$), выделенные из донных отложений Святошинских озер, г. Киев.

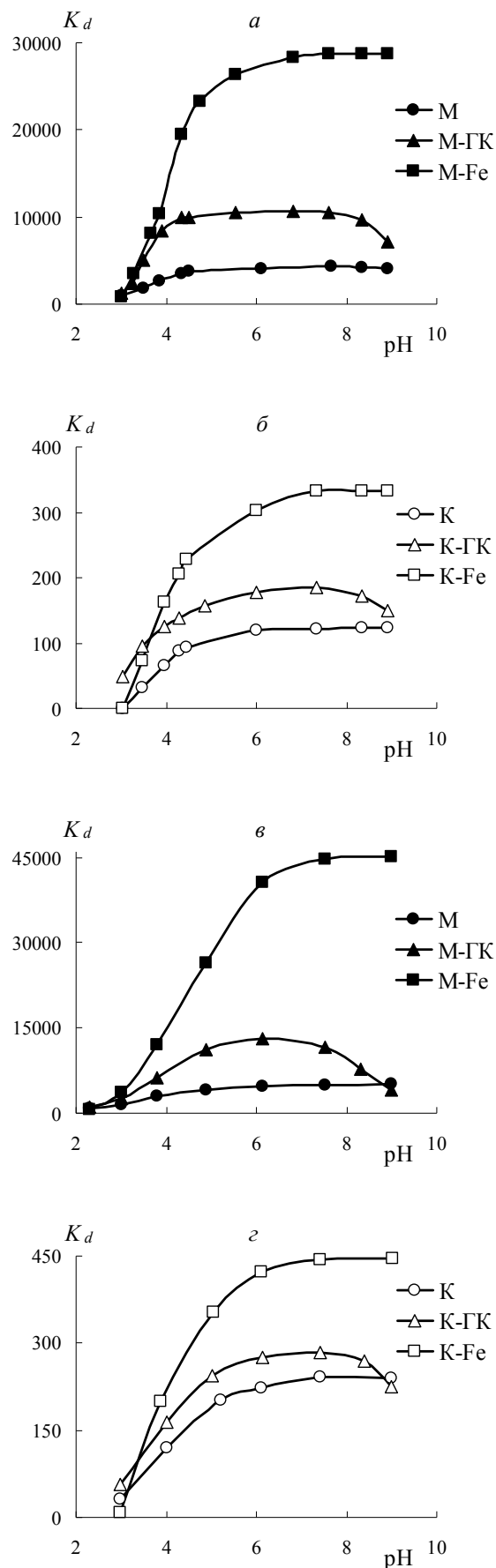


Рис. 1. Зависимость коэффициентов распределения ^{137}Cs (а, б) и ^{90}Sr (в, г) от pH водной среды на монтмориллонитовых (а, в) и каолинитовых (б, г) образцах

Долю сорбированных ионов цезия и стронция (α , %), величину сорбции (a_s , мкмоль/г), коэффициент распределения (K_d , см³/г), остаточное содержание цезия (a/a_0 , %) и степень десорбции (СД, %) в образцах рассчитывали следующим образом:

$$\alpha = \frac{C_0 - C_p}{C_0} \cdot 100;$$

$$a_s = (C_0 - C_p) \cdot \frac{V}{m};$$

$$K_d = \frac{C_0 - C_p}{C_p} \cdot \frac{V}{m};$$

$$\frac{a}{a_0} = \left(1 - C_p \cdot \frac{V}{m \cdot a_0} \right) \cdot 100;$$

$$\text{СД} = 100 - \frac{a}{a_0}$$

где C_0 , C_p — исходные и равновесные концентрации ионов цезия и стронция, мкмоль/дм³; V — объем водной фазы (при расчете α и a_s — в дм³, K_d — в см³); m — навеска глинистого образца, г; $a_0=21$ — исходное содержание цезия в образце, мг/г; a — содержание цезия в образце после десорбции, мг/г.

Сорбция радионуклидов в зависимости от pH водного раствора. На рис. 1 приведены зависимости коэффициентов распределения ^{137}Cs и ^{90}Sr на образцах М, М-ГК, М-Fe и К, К-ГК, К-Fe от pH исходного водного раствора. Как видно, для обоих природных минералов сорбция радионуклидов максимальна при pH > 4, однако природа исследованных минералов влияет на величины коэффициентов распределения ^{137}Cs и ^{90}Sr : для М они значительно выше, чем для К, что обусловлено особенностями кристаллохимии глинистых минералов. В отличие от К, сорбция ^{137}Cs и ^{90}Sr на М происходит не только по механизму ионного обмена на активных центрах базальных граней частиц, обусловленного изоморфными замещениями в структуре минералов, но и за счет диссоциированных поверхностных гидроксильных групп на боковых гранях [9, 16].

Для минералов, модифицированных ГК и Fe(OH)₃, максимальные значения K_d наблюдаются в области pH 4...8, что свидетельствует об участии ГК и ферринольных групп гидроксида железа (III) в связывании радионуклидов. При этом в широкой области pH для железосодержащих образцов K_d выше, чем для гумусосодержащих, и значительно выше, чем для природных форм глинистых минералов. Однако в кислой области pH большей сорбционной способностью обладают образцы минералов, модифицированные ГК, например К-ГК (рис. 1, б, г) (лучше видно на примере каолинитовых образцов), что обусловлено более прочным связыванием ГК с поверхностью матрицы минерала,

но при $pH > 8$ часть ГК, а также ионов цезия (стронция), связанных с ГК, переходят в раствор. Для минералов, модифицированных гидроксидами железа наиболее низкие значения K_d наблюдаются в области $pH < 3$ из-за частичного растворения гидроксидов железа, осажденных на поверхности матрицы минералов, и конкуренции с ионами H^+ .

Сорбция радионуклидов в присутствии ионов Na^+ и Ca^{2+} . Известно, что в природных водных средах, даже с относительно высоким уровнем радиоактивности, концентрации ^{137}Cs и ^{90}Sr значительно ниже, чем макрокомпонентов (Ca^{2+} , Mg^{2+} , Na^+ и K^+), характерных для природных вод. Поэтому было исследовано влияние ионов натрия и кальция на сорбцию радионуклидов минеральными и органоминеральными образцами (рис. 2).

Как видно из рис. 2, повышение концентраций катионов Na^+ и Ca^{2+} , характерных для природных водных сред, приводит к снижению сорбции ^{137}Cs и ^{90}Sr , что обусловлено конкурентным влиянием этих катионов. Показано (рис. 2, а, б), что катионы Na^+ оказывают большее влияние на сорбцию ^{137}Cs , чем ^{90}Sr . При концентрации 0,1 М Na^+ доля сорбированного ^{137}Cs исследованными образцами составляет 5...15 %, а ^{90}Sr — 15...30 %. В присутствии Ca^{2+} сорбция ^{137}Cs (рис. 2, в) во всем исследуемом диапазоне концентраций выше, чем ^{90}Sr (рис. 2, г), а при концентрации Ca^{2+} 400 мг/дм³ практически весь ^{90}Sr остается в растворе, в отличие от ^{137}Cs , значительная сорбция которого наблюдается даже при концентрации Ca^{2+} 1200 мг/дм³.

Влияние конкурирующих ионов на перераспределение радиоизотопов в присутствии минеральных и органоминеральных взвешенных веществ было изучено на образцах подземных вод с различным химическим составом и морской воде, отобранной в районе Феодосии (табл. 1). В образце № 1 (подземная скважина, пос. Новый Свет, Крым) преобладают ионы Na^+ , в образце № 2 (подземная скважина, г. Киев) — ионы Ca^{2+} , а морская вода (образец № 3) характеризуется высоким содержанием и высокой концентрацией ионов натрия по сравнению с ионами кальция.

Таблица 1. Химический состав образцов природных вод

Показатель	Образцы воды		
	подземные скважины	морская	
	№ 1	№ 2	№ 3
pH	7,92	7,41	7,94
Сухой остаток, мг/дм ³	1200	670	21800
Жесткость, мг-экв/дм ³	0,5	9,9	13,5
Щелочность, мг-экв/дм ³	13,7	7,0	3,2
Железо (общ.), мг/дм ³	0,18	0,34	0,026
Ca^{2+} , мг/дм ³	6	142	230
Mg^{2+} , мг/дм ³	2,4	33,6	24,0
Na^+ , мг/дм ³	450	12	6500
K^+ , мг/дм ³	1,6	1	200

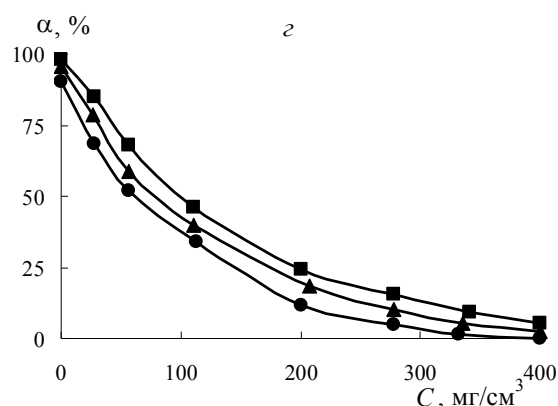
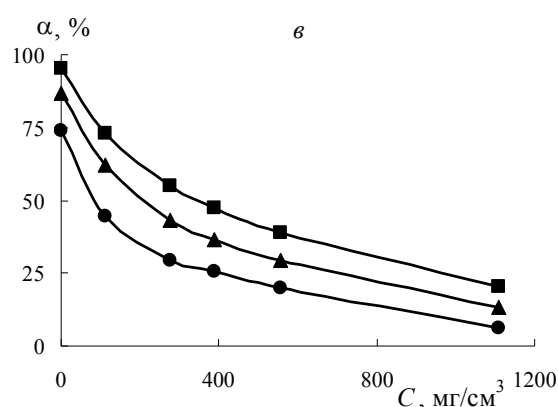
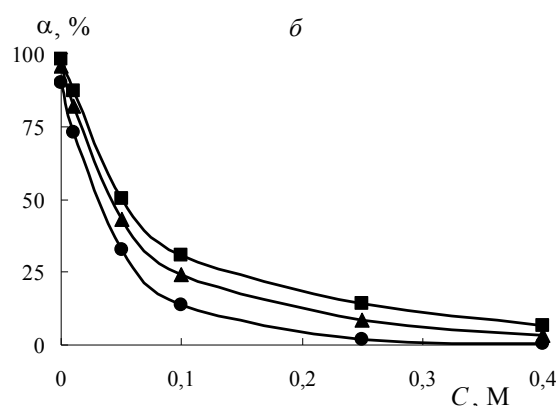
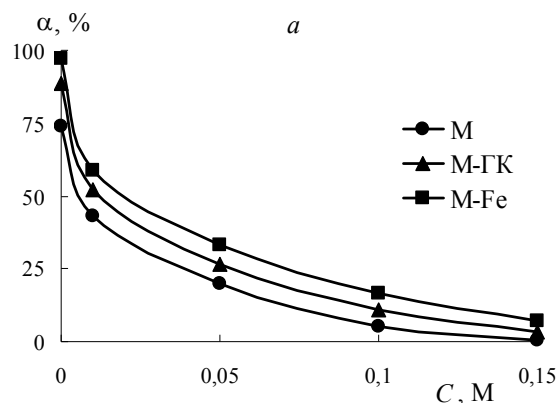


Рис. 2. Влияние концентрации катионов Na^+ (а, б) и Ca^{2+} (в, г) на сорбцию ^{137}Cs (а, в) и ^{90}Sr (б, г) монтмориллонитовыми образцами, pH 6,5

Установлено (табл. 2), що катиони природної води знижують величини сорбції радіонуклідів. Як і для модельних вод, підвищене вміщення Na^+ в образці води № 1 приводить до більшого зниження K_d для ^{137}Cs , ніж для ^{90}Sr , і навпаки — при підвищеному вміщенні Ca^{2+} в воді (образець № 2) величини K_d більш високі для ^{137}Cs , ніж для ^{90}Sr .

Дані табл. 2 підтверджують той факт, що подвижність ^{90}Sr зростає при підвищеному вміщенні в воді Ca^{2+} (^{90}Sr в геохімічних процесах — аналог макроелемента кальція: $r_{\text{Sr}}=1,2 \text{ \AA}$, $r_{\text{Ca}}=1,04 \text{ \AA}$). Почти повне подавлення сорбції як ^{137}Cs , так і ^{90}Sr спостерігається в морській воді з високим солесодержанням і високими концентраціями іонів кальція і натрія (образець № 3), незалежно від форми монтмориллоніта. Поєднанню при “очистці” таких вод від радіонуклідів ^{137}Cs і ^{90}Sr сорбційними методами не вдасться досягти задовільного результату дезактивації, незалежно від природи сорбентів і механізму їх дії. Така ситуація спостерігалася після аварії на АЕС в г. Фукусіма, де значительна частка радіонуклідів потрапила в море. Захорою від накоплення цих радіонуклідів живими організмами морської середовища може в якій-то мірі служити високе вміщення конкуруючих іонів натрія і інших макрокатіонів, характерних для морської води.

Влияние pH водных растворов на десорбцию цезия. На рис. 3 показано вплив pH водного розчину ($I_{\text{NaCl}}=0,01$) на десорбцію цезія з усіх досліджуваних образців — М, М-ГК, М-Fe. Як видно, залишкове вміщення цезія на образцях М, М-ГК в широкій області pH практично однаково і становить $\approx 70\%$. Для образця М високе значення a/a_0 пояснюється процесами сорбції в основному на активних центрах базальних граней, які проявляють більше спорідненість до іонам цезія порівняно з центрами бокових граней поверхності монтмориллоніта. Значительне залишкове вміщення цезія для М-ГК дозволяє зробити висновок про зв'язування його з ГК, осажденими на поверхності монтмориллоніта з утворенням комплексів типу $[\text{R}-\text{COOCs}]$. В той же час, цезій, зв'язаний з ферринольними групами М-Fe, легше десорбується в досліджуваній області pH за рахунок

Таблиця 2. Коэффициенти распределения ^{137}Cs и ^{90}Sr в системе “природная вода—монтмориллонит”

Образец минерала	Радионуклиды	K_d радионуклидов для разных образцов природных вод		
		№ 1	№ 2	№ 3
М	^{137}Cs	550	400	30
М-Fe		1370	1270	45
М	^{90}Sr	840	140	10
М-Fe		1790	855	15

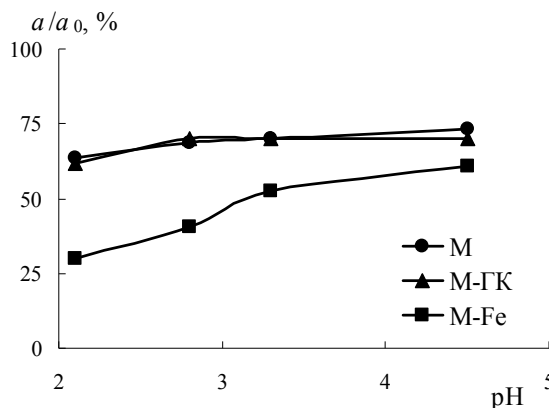


Рис. 3. Влияние pH водного раствора на десорбцию цезия из монтмориллонитовых образцов, $I_{\text{NaCl}}=0,01$

растворения аморфных гидроксидов железа с поверхности монтмориллонита (на основании данных о повышенной концентрации железа в растворе после десорбции), поэтому наблюдаются более низкие значения a/a_0 (при $\text{pH}>3,3$ составляет $\approx 52\%$). Cs^+ в области $\text{pH}\approx 2$ вымывается в значительно большей степени — $a/a_0\approx 30\%$.

Влияние концентрации фульвокислот на десорбцию цезия. Влияние комплексообразующих реагентов природного происхождения на десорбцию цезия з монтмориллонітових образців изучено на примере ФК — характерных органических компонентов поверхностных вод. В табл. 3 приведены значения a/a_0 цезия в исследованных образцах в зависимости от концентрации ФК в растворе.

В широком диапазоне концентраций ФК наблюдается незначительное выщелачивание цезия из исследованных образцов, что обусловлено, по-видимому, слабым связыванием ФК с ионами цезия, сорбированными поверхностью минерала. Для образця М-Fe меньшие значения остаточного содержания цезия в присутствии ФК также подтверждают образование менее прочных комплексов Cs^+ с $\text{Fe}(\text{OH})_3$, чем с ГК, осажденными на поверхности монтмориллоніта.

Влияние химической природы и концентрации солей аммония на десорбцию цезия. На рис. 4 показана эффективность десорбции цезия с поверхности исследованных образцов от концентрации выщелачивающих реагентов NH_4Cl , $(\text{NH}_4)_2\text{Ox}$,

Таблиця 3. Влияние концентрации ФК на остаточное содержание цезия в монтмориллонітових образцах (a/a_0 , %)

Образец минерала	$C_{\text{ФК}}$, мг/дм ³ (pH)			
	25 (pH 5,3)	50 (pH 5,4)	75 (pH 5,5)	100 (pH 5,7)
М	70,2	68,8	65,7	65,7
М-ГК	68,1	66,4	65,0	65,7
М-Fe	62,9	63,6	62,9	61,4

$\text{NH}_4\text{H}_2\text{Cit}$, $(\text{NH}_4)_2\text{HCit}$ в розчині. Вибір аммонійних солей обумовлений високою здатністю NH_4^+ витіснити обмінні катіони Ca^{2+} , Mg^{2+} , Na^+ , K^+ із ґрунту, а оксалат- і цитрат-аніони, представлені в природних об'єктах в основному як продукти життєдіяльності мікроорганізмів, проявляють достатньо високі комплексоутворюючі властивості. Як видно із рис. 4, десорбуючі реагенти за здатності вивільняти цезій із досліджуваних зразків можна розташувати в ряд $\text{NH}_4\text{Cl} < \text{NH}_4\text{H}_2\text{Cit} < (\text{NH}_4)_2\text{Ox} < (\text{NH}_4)_2\text{HCit}$. Більш висока десорбуюча здатність $(\text{NH}_4)_2\text{HCit}$ порівняно з $(\text{NH}_4)_2\text{Ox}$ обумовлена іонним обміном катіонів цезія не тільки з NH_4^+ , але й, можливо, з іонами H^+ , утворюючись в результаті дисоціації HCit^{2-} . Авторами [17] відмічено, що можливо також зв'язування оксалат-іонів в нерозчинні сполуки з іонами кальцію, присутніми в системах "радіонуклід—природні глинисті мінерали" і "радіонуклід—модифіковані форми природних глинистих мінералів з осажденими гумусовими кислотами і гідроксидами заліза" в якості обмінних іонів монтмориллоніта, що знижує ефективність його використання для дезактивації. Із рис. 4, б, в видно, що двохзаміщений цитрат аммонія $(\text{NH}_4)_2\text{HCit}$ більш ефективно вивільняє цезій з поверхні всіх досліджуваних зразків порівняно з однозаміщеним $\text{NH}_4\text{H}_2\text{Cit}$. Це свідчить про пряму залежність десорбуючої здатності цитратних солей по відношенню до цезію від ступеня заміщення іонів H^+ на NH_4^+ . Слід також відзначити, що 0,1 М $(\text{NH}_4)_2\text{Ox}$ і 0,1 М $(\text{NH}_4)_2\text{HCit}$ повністю вивільняють цезій із зразків М-ГК і М-Fe, в той час як із М цезій вивільняється вище зазначеними реагентами на 77 % і 86 %, відповідно.

Неповне вивільнення цезія для М можна пояснити тим, що сорбований цезій більш надійно зв'язаний високоселективними центрами міжшарового простору природної форми мінерала, ніж активними центрами бокової поверхні [18]. Для модифікованих зразків такі центри (дигриональні лунки, пропорційні до іонам заліза) заблоковані гідроксидами заліза і гуминовими кислотами [14].

Для оцінки впливу оксалат- і цитрат-іонів на десорбцію цезія досліджено вивільняючу здатність розчинів щавелевої і лимонної кислот при рН 2,5, де поряд з комплексоутворюючими аніонами має місце десорбція іонами H^+ (табл. 4). В якості розчину порівняння використовували дистильовану воду при тому ж значенні рН.

Величини десорбції a/a_0 цезія в зразках М, М-ГК після десорбції H_2O , H_2Ox , H_3Cit відрізняються незначально, що вказує на домінуюче

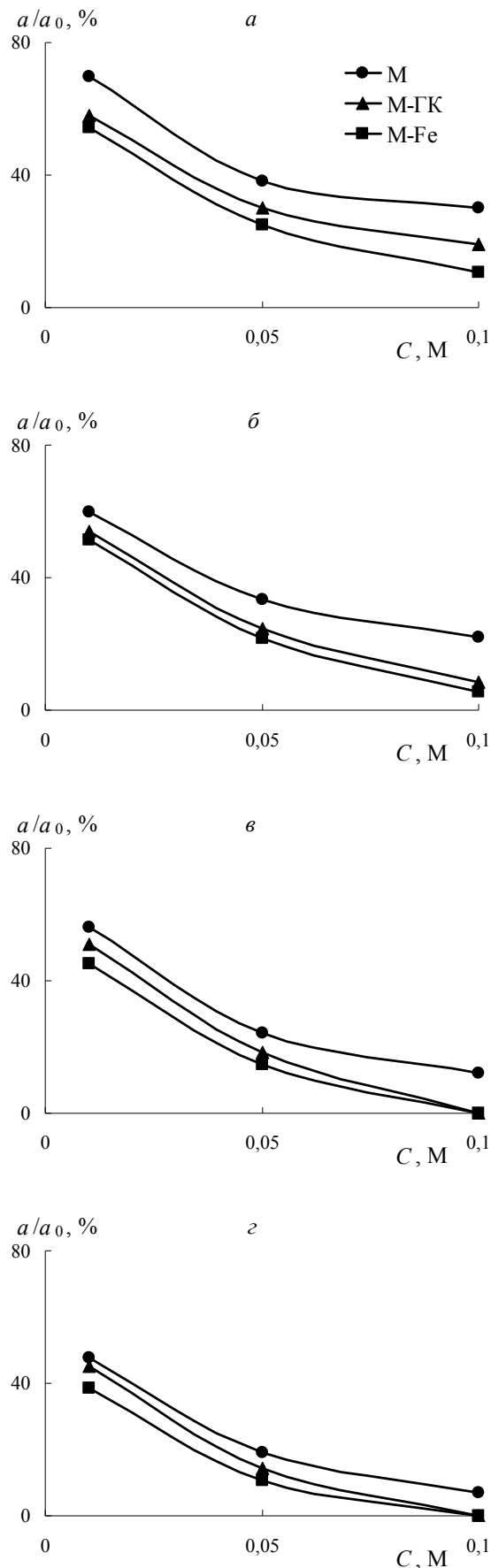


Рис. 4. Десорбція цезія NH_4Cl (а), $\text{NH}_4\text{H}_2\text{Cit}$ (б), $(\text{NH}_4)_2\text{Ox}$ (в), $(\text{NH}_4)_2\text{HCit}$ (г) з поверхні монтмориллонітових образців

Таблиця 4. Ефективність десорбції цезія (a/a_0 , %) растворами H_2Ox , H_3Cit и подкисленной дистиллированной водой

Образец минерала	0,01M H_2Ox	0,01M H_3Cit	$H_2O_{дист.}$ pH 2,5
М	67,1	68,8	70,2
М-ГК	64,3	70,5	70,2
М-Fe	71,4	66,7	32,4

влияние ионов H^+ на десорбцию цезия из исследуемых образцов. Из образца М-Fe водой вымывается цезия значительно больше, чем растворами H_2Ox и H_3Cit . При использовании дистиллированной воды, подкисленной до pH 2,5, гидроксид железа растворяется на поверхности монтмориллонита, и вместе с этим наблюдается значительная десорбция ионов Cs^+ , связанного с ферриольными группами М-Fe (гидроксиды железа практически полностью блокируют поверхность минерала [14]). В случае использования в качестве десорбирующего раствора H_2Ox происходит полное растворение гидроксидов железа на поверхности М-Fe (измеряли концентрацию железа в растворе после десорбции), однако значение a/a_0 остается достаточно высоким. Это обусловлено, по-видимому, тем, что растворенный Cs^+ повторно сорбируется активными центрами монтмориллонита. Можно предположить, что такая же картина наблюдается и при десорбции цезия раствором H_3Cit , несмотря на неполное вымывание железа с поверхности М-Fe. В [19], где приведено аналогичное полученное нами распределение Fe(III) в водном растворе для образца М-Fe, показано, что в области pH 2,5 наблюдается образование катионных форм цитрата железа, которые могут сорбироваться наряду с ионами Cs^+ отрицательно заряженной поверхностью минерала. В области pH 4...8, где образуются растворимые анионные формы железа $FeOHcit^-$, $Fe_2(OH)_2Cit_2^{2-}$, наблюдается максимальная десорбирующая способность лимонной кислоты из образцов М-Fe.

Выводы

1. В результате проведенных исследований показано, что как природные, так и модифицированные гидроксидами железа и ГК минералы играют роль “депо” ^{137}Cs и ^{90}Sr , в котором радионуклиды длительное время могут быть иммобилизованы, а степень их закрепления в значительной мере зависит как от природы матрицы глинистых компонентов грунтов, так и от содержания осажденных на их поверхности ГК и гидроксидов железа.

2. Показано, что присутствие в водных растворах ионов Na^+ и Ca^{2+} существенно снижает K_d и адсорбцию радионуклидов ^{137}Cs и ^{90}Sr исследованными глинистыми образцами. Однако влияние макрокомпонентов для разных образцов неодинаково и зависит от заряда и радиуса конкурирующего иона: на сорбцию ^{90}Sr большее влияние оказывают ионы Ca^{2+} , чем Na^+ , в то время как на сорбцию ^{137}Cs — ионы Na^+ .

3. Установлено влияние химической природы и концентрации выщелачивающих реагентов на десорбцию ^{137}Cs и ^{90}Sr из модельных систем “радионуклид—природные глинистые минералы” и “радионуклид—модифицированные формы природных глинистых минералов с осажденными гумусовыми кислотами и гидроксидами железа”. Среди изученных реагентов для десорбции цезия из глинистых образцов наиболее целесообразно использование 0,1 М растворов двухзамещенных цитратных солей аммония, которые эффективны в нейтральной области pH, что является одним из главных условий сохранения качества почвы. Достаточно высокая эффективность выщелачивания ионов цезия из глинистых образцов, на поверхности которых осаждены ГК и гидроксиды железа, достигнута и при использовании 0,1 М раствора оксалата аммония.

Список использованной литературы

1. Гудков И. Н. Современные задачи и проблемы радиоэкологии / И. Н. Гудков // Экологический вестник. — 2010. — Т. 13, № 3. — С. 48—52.
2. Закономірності міграції техногенних радіонуклідів на меліоративних системах чорнобильської зони відчуження за результатами досліджень 1986–2004 рр. / О. Л. Шевченко, О. М. Козицький, І. Ю. Наседкін та ін. — Херсон: Олді-плюс, 2011. — 416 с.
3. Соботович Э. В. Радиохимия в зоне влияния ЧАЭС / Э. В. Соботович, Г. Н. Бондаренко, Ю. А. Ольховик. — К.: Наукова думка, 1992. — 148 с.
4. Герасименко В. Ю. Стан орних угідь забруднених територій Білоцерківського району Київської області за активністю ^{137}Cs і ^{90}Sr / В. Ю. Герасименко, О. І. Розпутній // Аграрні вісті. — 2009. — № 1. — С. 16–18.
5. Петрусенко В. П. Оцінка і прогноз розподілу радіонуклідів у типовій екосистемі схилів для ландшафтів України / В. П. Петрусенко, Ю. О. Кутлахмедов // Вісник НАУ. — 2006. — № 2. — С. 134—136.
6. Порівняння радіоекологічних процесів на прикладі сіл, забруднених Cs-137 та Sr-90 оцінених за методом камерних моделей / І. В. Матвєєва, Ю. О. Кутлахмедов, В. М. Ісаєнко та ін. // Ядерна фізика та енергетика. — 2006. — № 2. — С. 93—98.
7. Кузнецов В. А. Исследование сорбционных свойств гидроксидов железа, марганца, титана, алюминия и кремния по отношению к ^{90}Sr и ^{137}Cs / В. А. Кузнецов // Радиохимия. — 2000. — Т. 42, № 2. — С. 154–157.
8. Генералова В. А. Роль гумусовых кислот в миграции радиостронция и радиоцезия в отложениях долины

- р. Сож / В. А. Генералова, М. П. Оношко // Радиохимия. — 2006. — Т. 48, № 1. — С. 92—96.
9. Корнилович Б. Ю. Влияние гуминовых веществ на сорбцию цезия-137 минеральными компонентами почв / Б. Ю. Корнилович, Г. Н. Пшинко, Л. Н. Спасенова // Радиохимия. — 2000. — Т. 42, № 1. — С. 92—96.
10. Гончарук В. В. Роль хімічних форм радіонуклідів в прогнозуванні їх поведінки в довкіллі / В. В. Гончарук, Г. Н. Пшинко // Вісн. НАН України. — 2011. — № 10. — С. 3—17.
11. Одинцов А. А. Распределение ^{137}Cs , ^{90}Sr , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am и ^{244}Cm по компонентам природных органических веществ почв ближней зоны отчуждения АЭС / А. А. Одинцов, Э. М. Пазухин, А. Д. Саженюк // Радиохимия. — 2005. — Т. 47, № 1. — С. 91—96.
12. Ивашкевич Л. С. Влияние основных химических свойств на закрепление радионуклидов в почве / Л. С. Ивашкевич, Ю. И. Бондарь // Радиохимия. — 2008. — Т. 50, № 1. — С. 87—90.
13. О влиянии гумуса и аморфных оксидов алюминия и железа на подвижность цезия-137 в почвах / В. П. Медведев, Г. Н. Романов, В. В. Базылев и др. // Радиохимия. — 1990. — Т. 32, № 6. — С. 113—118.
14. Effect of aluminum and iron hydroxides deposited on the montmorillonite surface on the U(VI) sorption / G. N. Pshinko, A. A. Bogolepov, S. A. Kobets, A. A. Kosorukov // Radiochemistry. — 2009. — V. 51, N 2. — P. 211—215.
15. Вредные химические вещества. Радиоактивные вещества / В. А. Баженов, Л. А. Булдаков, И. Я. Василенко и др.; под общ. ред. В. А. Филова и др. — Л.: Химия, 1990. — 464 с.
16. Тарасевич Ю. И. Обращенный ряд избирательности сорбции катионов щелочных металлов на боковых гранях кристаллов слоистых алюмосиликатов / Ю. И. Тарасевич // Теорет. и эксперим. химия. — 1998. — Т. 34, № 1. — С. 32—35.
17. Wolff-Boenisch D. The effect of desferrioxamine B, enterobactin, oxalic acid, and Na-alginate on the dissolution of uranyl-treated goethite at pH 6 and 25 °C / D. Wolff-Boenisch, S. J. Traina // Chem. Geol. — 2007. — V. 243. — P. 357—368.
18. Liu C. Desorption kinetics of radiocesium from subsurface sediments at Hanford Site, USA / C. Liu, J. M. Zachara, S. C. Smith // Geochim. Cosmochim. Acta. — 2003. — V. 67, N 16. — P. 2893—2912.
19. Кобец С. А. Сорбция U(VI) на монтмориллоните с осажденными на его поверхности гидроксидами Al(III) и Fe(III) в присутствии лимонной и щавелевой кислот / С. А. Кобец, Г. Н. Пшинко, А. А. Боголепов // Радиохимия. — 2009. — Т. 51, № 4. — С. 332—336.

Получено 28.10.2014

УДК [550.378:621.039.74]504.064.2(477.41)

І. В. Ярмош

ДУ “Інститут геохімії навколишнього середовища НАН України”, м. Київ

ПОРІВНЯЛЬНА ОЦІНКА ЗНАЧЕНЬ КОЕФІЦІЄНТІВ РОЗПОДІЛЕННЯ ^{90}Sr НА ПРИКЛАДІ ҐРУНТІВ ЧОРНОБИЛЬСЬКОЇ ЗОНИ ВІДЧУЖЕННЯ

Представлено огляд літературних даних щодо міграційної поведінки ^{90}Sr у ґрунтах зони аерації та водоносних горизонтів Чорнобильської зони відчуження (ЗВ). Встановлено, що значення коефіцієнтів розподілення ^{90}Sr для ґрунтів території Чорнобильської ЗВ зазнають змін з часом, відрізняються в залежності від методу проведення вимірювань та типів ґрунтів. Показано, що для побудови адекватних математичних моделей міграції радіонуклідів із приповерхневих сховищ радіоактивних відходів (РАВ) комплексу “Вектор” існує необхідність проведення додаткових комплексних досліджень саме для ґрунтів майданчика комплексу виробництв “Вектор” з метою визначення достовірних коефіцієнтів розподілення ^{90}Sr у ґрунтах.

Ключові слова: коефіцієнт розподілення ^{90}Sr , радіоактивні відходи, міграція, ґрунтові води, зона відчуження, майданчик комплексу виробництв “Вектор”.

Розвиток та використання ядерних технологій супроводжується утворенням і накопиченням РАВ. Ключовою науково-технічною проблемою розміщення РАВ у приповерхневих сховищах є обґрунтування довгострокової (до 300 років) безпеки системи захоронення для людини та довкілля [1, 2].

Згідно Закону України “Про загальнодержавну цільову екологічну програму поводження з РАВ” [3] та “Стратегії поводження з РАВ в Україні” [4] у ЗВ Чорнобильської АЕС (ЧАЕС) на майданчику комплексу виробництв “Вектор” (КВ “Вектор”) передбачено будівництво установок з переробки РАВ, сховищ для довгострокового зберігання РАВ і відпрацьованих джерел іонізуючого випромінювання (ВДІВ) та приповерхневих сховищ для захоронення короткоіснуючих низько- та середньоактивних твердих РАВ, що утворилися внаслідок Чорнобильської катастрофи. На майданчик КВ “Вектор” планується передати практично всі РАВ України, зокрема з державних міжобласних спеціалізованих комбінатів УкрДО “Радон”, діючих АЕС України, ЧАЕС та ЗВ [5].

Серед РАВ, передбачених для зберігання та захоронення в сховищах КВ “Вектор”, переважну частку складатимуть відходи чорнобильського походження, основний вклад в загальну активність яких вносять радіонукліди ^{137}Cs та ^{90}Sr (в сумі більше ніж 90 % станом на 01.01.2006) [6].

Дослідження гідрогеологічної міграції ^{90}Sr є особливо важливими, оскільки він є більш мобільним радіонуклідом у системі “ґрунт—ґрунтові води” за ^{137}Cs через менш міцне зв’язування мінеральною фазою ґрунтів [7—9].

Для розробки обґрунтованої стратегії поводження з РАВ, що плануються до захоронення на майданчику КВ “Вектор”, необхідно побудувати математичні моделі для довгострокових радіоекологічних прогнозів радіаційних впливів РАВ, що зберігаються в приповерхневих сховищах, а також оцінити радіаційні ризики від міграції радіонуклідів

у випадку розвитку найбільш критичного сценарію [10]. Для вирішення останньої задачі необхідні об’єктивні дані щодо гідрологічних умов та параметрів міграції радіонуклідів [11].

Коефіцієнт розподілення радіонуклідів. До важливих параметрів міграції відноситься коефіцієнт розподілення (K_d), що характеризує сорбцію (міцність утримання) радіонуклідів породами водоносного горизонту та дозволяє оцінити їх мобільність у ґрунті [11—13].

Коефіцієнт розподілення відображає розподіл радіонуклідів у двофазних природних системах — “ґрунт і ґрунтова волога”, “суспензія і вода”, “донні відклади і поровий розчин” — і дорівнює відношенню рівноважної концентрації радіонукліда у твердій фазі до його рівноважної концентрації у водній фазі [14]. Чим більше значення K_d , тим менша швидкість міграції радіонуклідів у водно-носному горизонті за рівнозначних умов.

Значення K_d залежать від численних геохімічних параметрів і процесів: рН розчину; мінерального складу; наявності органічних речовин, оксидів заліза; умов окислення / відновлення; хімічної форми радіонукліда тощо [15].

Очевидно, що значення коефіцієнтів розподілення не є універсальними, тому що область їх застосування не може бути поширена на райони з іншими показниками компонентного складу ґрунтів та / або природних вод. Окрім того, внаслідок мінливості мінерального складу ґрунтів величини K_d нерідко значно змінюються навіть у межах невеликих ділянок досліджуваної території [16].

Огляд даних із різних літературних джерел свідчить, що різні дослідники під час розрахунків використовують такі одиниці вимірювання коефіцієнта K_d : л/кг [11, 14, 17, 18]; мл/г [8, 19—21]; см³/г [22]; м³/кг [23].

Коефіцієнти розподілення визначаються в результаті лабораторного модельного експерименту

або польових досліджень [16]. Експериментальні умови цих методів можуть впливати на кінцевий результат. Зокрема, в [19] підкреслено, що в натуральних умовах значення коефіцієнтів розподілення можуть відрізнятися від значень, отриманих при використанні модельного розчину, що пов'язано з особливостями аніонного складу природної води.

В залежності від методу визначення коефіцієнт розподілення (K_d , л/кг) розраховується за різними формулами:

а) виходячи з визначення коефіцієнта розподілення:

$$K_d = \frac{C_T}{C_p},$$

де C_T — рівноважна сумарна концентрація радіонукліда у твердій фазі, г/кг; C_p — рівноважна концентрація радіонукліда у рідкій фазі, г/л;

б) оцінка в натурних умовах (*in-situ*) сорбційних властивостей порід водоносного горизонту по відношенню до радіонуклідів [18]:

$$K_d = \frac{A_T \cdot \rho - A_p \cdot W}{A_p \cdot \rho},$$

де A_T — питома активність твердої фази (грунт), Бк/кг; ρ — щільність скелету ґрунту, кг/дм³; A_p — об'ємна активність ґрунтової води, Бк/л; W — вагова вологість водовміщуючої породи, частки;

в) вимірювання на основі натурних спостережень в системі “вода—вміщуючі породи” [18]:

$$K_d = \frac{A_T \cdot \rho}{A_p \cdot W_0} - \frac{W_1}{W_0},$$

де W_1 та W_0 — кінцева та вихідна вологість водовміщуючих пісків, відповідно, частки.

Гідрогеологічні особливості та характеристика ґрунтів об'єктів досліджень. Для порівняльного аналізу коефіцієнтів розподілення ^{90}Sr з [8, 10, 11, 17, 19—21] було обрано дані щодо K_d ^{90}Sr для ґрунтів ділянок, розташованих в межах Чорнобильської зони відчуження: КВ “Вектор”; пункту тимчасової локалізації радіоактивних відходів (ПТЛРВ) “Рудий Ліс”; Чорнобильського пілотного майданчику, що охоплює територію ПТЛРВ “Рудий Ліс” (рис. 1).

Комплекс виробництв “Вектор”. Особливості гідрогеологічних умов території КВ “Вектор” визначаються її геоморфологічною приуроченістю до вододілу долин річок Прип'яті та Ужа. Ґрунтові води зафіксовано на різних глибинах від поверхні — 10,9...24,5 м, переважно 18...21 м. Води безнапірні [6].

На глибині 20 м зафіксований водоносний комплекс четвертинних відкладів вододільних просторів, приурочений до товщі середньочетвертинних флювіогляціальних відкладів, а також підстилаючих їх нижньосередньочетвертинних алювіально-флювіогляціальних порід. Потужність товщі — 20,6...37,7 м, в середньому — 25...30 м [6].

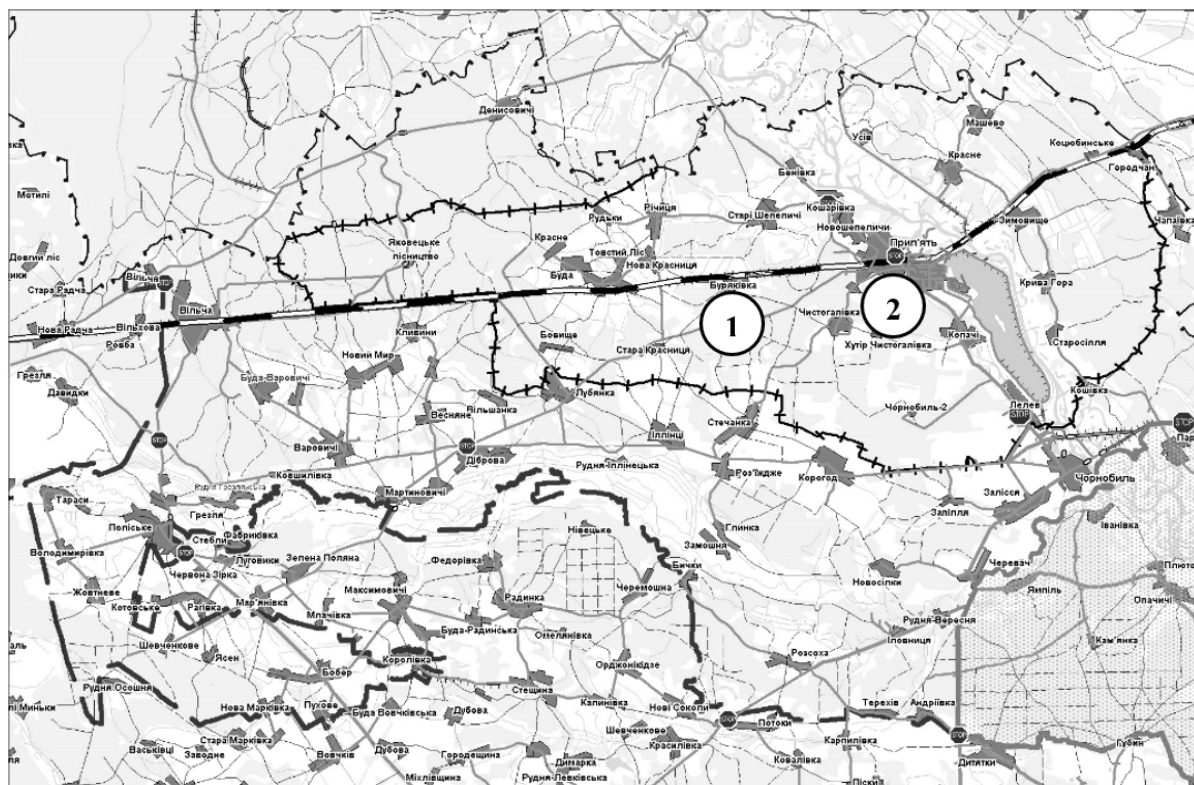


Рис. 1. Карта Чорнобильської зони відчуження та зони безумовного (обов'язкового) відселення (1 — Комплекс виробництв “Вектор”; 2 — ПТЛРВ “Рудий Ліс”, Чорнобильський пілотний майданчик)

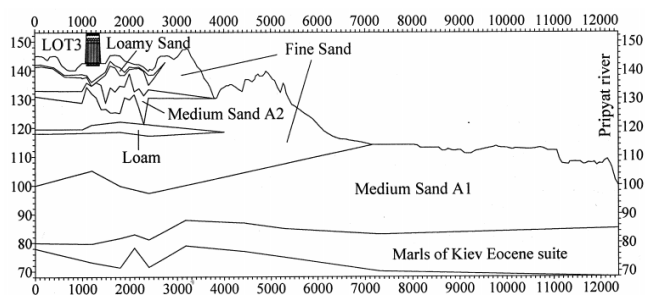


Рис. 2. Літологічна будова ґрунтів в районі розташування СОПСТРВ КВ “Вектор” (Loamy Sand — супіски; Fine Sand — дрібнозернистий пісок; Medium Sand A1 — середньозернистий пісок A1; Medium Sand A2 — середньозернистий пісок A2; Loam — суглинок; Marls of Kiev Eocene suite — мергельні глини київської свити еоцену)

Водовміщуючими є піски різного гранулометричного складу (від пилоподібних до середньої крупності), водонасичені, з включеннями великоуламкового матеріалу з тонкими прошарками глинистих ґрунтів. Водопором є мергельні глини Київської свити еоцену. Літологічний розріз ґрунтів у зоні розташування “Спеціально обладнаного приповерхневого сховища твердих РАВ” (СОПСТРВ, так званий Лот 3), спорудженого в складі КВ “Вектор”, представлено на рис. 2 [17]. У верхній частині розрізу спостерігаються дрібніші піски, нижче — середньої зернистості, далі — пілуваті або суглинки [6].

ПТЛРВ “Рудий Ліс”. ПТЛРВ “Рудий Ліс” розташований на південь від р. Прип’ять і на захід

від ЧАЕС. Загальна площа ПТЛРВ перевищує 2000 тис. м². У захороненнях розміщений забруднений радіонуклідами ґрунт, загиблі дерева, конструкції дачних будівель з сумарною активністю РАВ 1012 Бк [24].

Для визначення K_d для ґрунтів ПТЛРВ “Рудий Ліс” були проведені дослідження в районі захоронень (траншей) Т-22. Встановлено, що на цій ділянці захоронення забруднення водоносного горизонту зумовлено двома факторами: вертикальною міграцією через зону аерації та латеральною міграцією радіонуклідів, що потрапляють у ґрунтові води через відносно малопотужний шар ненасичених порід між дном траншеї та дзеркалом ґрунтових вод (рис. 3).

Покривні відклади представлені верхньочетвертинними однорідними дрібно-, середньозернистими алювіальними відкладами (головним чином суглинками та еоловими пісками) та еоловими пісками [11, 19]. Суглинки зустрічаються серед пісків у вигляді лінз та прошарків незначної потужності, глиниста речовина представлена каолінітом та монтморилонітом і сконцентрована у дрібнодисперсній фракції (0,06 мм).

Характерний гранулометричний склад ґрунту території розташування ПТЛРВ “Рудий Ліс” має такий вигляд: фракція більше 0,5 мм — (4,6±2) %; 0,25...0,5 мм — (26±2) %; 0,1...0,25 мм — (47±5) %; 0,01...0,05 мм — (21±3) %; 0,05...0,01 мм — (0,8±0,4) %; менше 0,01 мм — як правило, не більше 1...2 % [4].

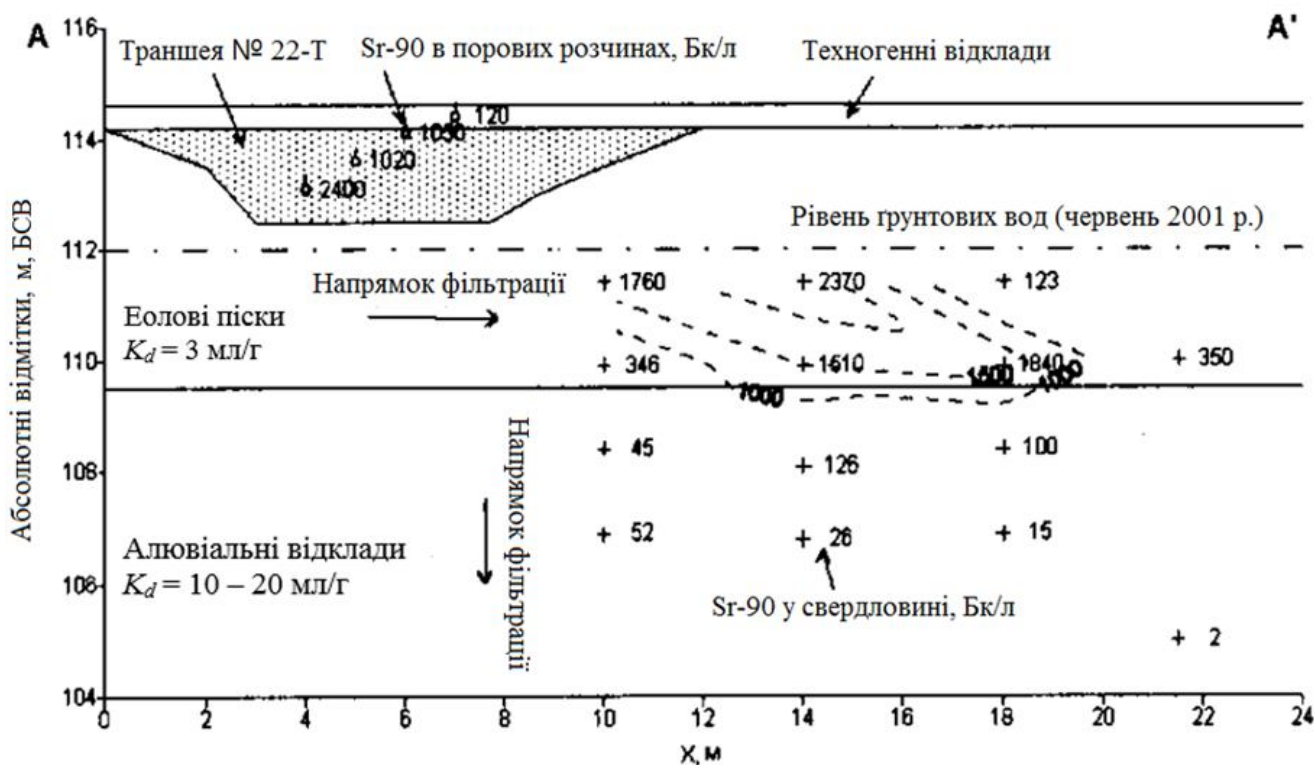


Рис. 3. Розподіл ⁹⁰Sr в зоні аерації та водоносному горизонті Чорнобильського пілотного майданчику в червні 2001 року (БСВ — Балтійська система висот) [10]

Шар еолових відкладів характеризуються низьким вмістом дрібних частинок (1...2 % частинок — менше 0,05 мм) і високим значенням гідравлічної провідності (3...5 м/день). Алювіальні відклади мають більш високий вміст дрібних частинок (8...25 % частинок — менше 0,05 мм), і є більш різномірними [25]. Піски складаються переважно з кварцу (84...89 %), а також польового шпату (11...16 %). Окремі прошарки часто мають жовто-руде забарвлення внаслідок озалізнєння.

Хімічний склад ґрунтових вод наступний, мг/л: Na^+ — 0,5...1,2; K^+ — 2...8,1; Ca^{2+} — 5...19; Mg^{2+} — 1,5...4,3; Fe^{2+} — 0,1...0,4; Fe^{3+} — 0,1...0,3; NH_4^+ — 0,3...0,5; Cl^- — 2,8...4,3; SO_4^{2-} — 13,2...45,3; NO_3^- — 0,8...19; NO_2^- — 0...0,01; HCO_3^- — 2,4...7,9; сумарна мінералізація — 36...101. Зафіксовано низькі значення рН ґрунтових вод (4,4...5,4), що може бути наслідком процесів контакту органічних речовин у захороненнях з підземними водами [11].

Чорнобильський пілотний майданчик (Chernobyl Pilot Site). Чорнобильський пілотний майданчик являє собою ділянку-полігон міжнародних радіоекологічних досліджень, яка розташована на відстані 2,5 км в південно-західному напрямку від ЧАЕС поблизу траншеї № 22-Т ПТЛРВ “Рудий Ліс” у межах “західного” сліду Чорнобильського радіоактивного викиду. Досліджувана траншея має довжину близько 70 м, ширину 5...6 м і глибину 2...3 м. Питома активність захоронених у траншеї РАВ по стронцію-90 і цезію-137 у середньому складає $n \cdot 10^5 \dots 10^6$ Бк/кг [26].

Зміна значень коефіцієнтів розподілення стронцію-90 в залежності від типів ґрунтів. У [17] наведено значення коефіцієнтів розподілення ^{90}Sr для різних типів ґрунтів території розміщення сховищ РАВ майданчика КВ “Вектор”: для супіску, дрібнозернистого й середньозернистого пісків та суглинку $K_d = 1$ л/кг, а для глини $K_d = 10$ л/кг. Для визначення коефіцієнтів розподілення використано

Таблиця 1. Гранулометричний склад та значення коефіцієнтів розподілення ^{90}Sr для ґрунтів ПТЛРВ “Рудий Ліс” (дата відбору проби — 05.11.1990 р.)

Зразок	Глибина, м	Дисперсний склад, %					K_d , мл/г
		+0,16	-0,16 +0,10	-0,10 +0,06	-0,06		
Пісок дрібнодисперсний	0...1,3	71,4	18,6	7,9	1,9	2,3	
	1,3...2,7	72,2	22,1	4,8	0,8	2,1	
Пісок дрібнозернистий, глинистий	2,7...4,2	70,5	11,0	7,7	1,7	6,3	
Пісок світло-сірий	4,2...5,8	68,5	15,3	7,3	8,9	4,5	
Пісок дрібнозернистий, світло-сірий	5,8...7,3	81,1	10,4	3,6	4,9	4,4	
	7,3...8,8	85,6	10,4	2,4	1,6	1,9	
Пісок дрібнозернистий, глинистий	8,8...10,3	59,8	20,0	11,3	8,9	10,1	
Пісок дрібнозернистий	10,3...11,8	97,3	8,2	2,5	2,0	3,0	
	11,8...13,3	92,9	5,4	1,2	0,5	1,1	
	13,3...14,8	65,3	22,7	8,6	3,4	4,0	
	14,8...16,3	—	—	—	—	4,1	

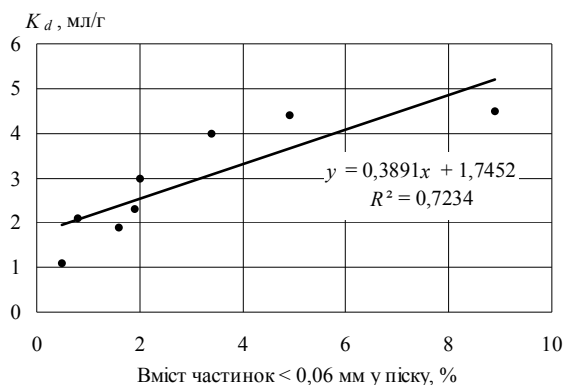


Рис. 4. Кореляція між коефіцієнтом розподілення ^{90}Sr та вмістом дрібнодисперсної фази дрібнозернистого піску

матеріали дослідно-фільтраційних досліджень [27, 28]. При цьому у [17] відсутні дані щодо методів визначення параметрів K_d , а наведені значення K_d носять індикативний характер.

У [19] представлено значення коефіцієнтів розподілення стронцію-90 для ґрунтів району розташування ПТЛРВ “Рудий Ліс”, які складають зону аерації і зону активного водообміну (табл. 1). Значення K_d отримано для реальних ґрунтів експериментально з використанням модельного розчину. Детальний опис методики проведення експерименту наведено в [19].

Сильний лінійний кореляційний зв’язок (коефіцієнт кореляції $R=0,85$) знайдено між коефіцієнтом розподілення ^{90}Sr та вмістом дрібнодисперсної фази (частинки розміром менше 0,06 мм) дрібнозернистого піску (рис. 4). Отже, сорбційні властивості відібраних [19] зразків піску (табл. 1) визначаються вмістом у ньому дрібнодисперсної фази, мінеральний склад якої представлено глинистими мінералами групи каолініту та монтморилоніту [4].

Динаміка значень коефіцієнтів розподілення стронцію-90. Для відслідковування зміни значень K_d ^{90}Sr з часом розглянемо результати досліджень ґрунтів району розташування ПТЛРВ “Рудий Ліс”.

Результати досліджень K_d стронцію-90 у 1990 р. з використанням модельного розчину і реальних ґрунтів наведено вище в табл. 1.

Розраховані в 1994 р. в натурних умовах (*in-situ*) коефіцієнти розподілення ^{90}Sr радіонуклідів для ґрунтів на ділянці ПТЛРВ “Рудий Ліс” [11] привертають до себе увагу вкрай низькими значеннями (табл. 2).

Таблиця 2. Оцінка коефіцієнтів розподілення ^{90}Sr за даними досліджень *in-situ* міграційних процесів на ділянці ПТЛРВ “Рудий Ліс” (1994 р.)

Точка відбору проби	Місяць відбору проби	Глибина, м	Активність ґрунту, Бк/кг	Активність води, Бк/л	K_d , л/кг
1/35	Вересень	2,7...3,0	68000	76700	0,8
4/35	Жовтень	2,9...3,2	58500	90000	0,5
12/22	Листопад	4,0...4,5	12150	5850	2,0

У роботах [20, 29] для ґрунтів зони аерації на території Чорнобильського пілотного майданчика з використанням тривимірної математичної моделі Modflow—MT3D було отримано величину “ефективного” (тобто усередненого за період 1987—2002 рр.) K_d стронцію-90, яка становить 0,5 мл/г. Таке низьке значення свідчить про інтенсивні процеси міграції стронцію-90 та узгоджується з наведеними в [11] даними. При цьому значення коефіцієнту уповільнення міграції становить $R_{Sr-90}=4$, а швидкості міграції ^{90}Sr в еоловому піску водоносного горизонту $v_{Sr-90}=2,5$ м/рік [11].

Вимірювання значення K_d ^{90}Sr *in-situ* шляхом пробовідбору відкладів із забрудненої зони водоносного горизонту, проведеного у 2000 р. [8], дало значення $K_d \approx 2 \dots 3$ мл/г ($R_{Sr-90} \approx 12 \dots 17$, $v_{Sr-90} \approx 0,7$ м/рік).

Дані спостережень за підземними водами за період 2004—2008 рр. [21] показують обмежені тенденції зміщення радіонуклідного сліду в геологічному середовищі в порівнянні з оціненими вище більш високими швидкостями міграції в період 1987—2002 рр., які узгоджуються з даними про еволюцію значень K_d ^{90}Sr .

Зрештою, результати лабораторних серійних експериментів з використанням модельних розчинів ґрунтових вод, які відображають умови, характерні для природного водоносного горизонту, дали високі значення K_d ^{90}Sr в діапазоні 25...43 мл/г [20]. Можна очікувати, що сорбція та уповільнення міграції ^{90}Sr будуть і надалі збільшуватися зі зменшенням швидкості його хімічного вилугування з траншеї [21].

Збільшення значень коефіцієнтів розподілення K_d ^{90}Sr , яке спричинене зменшеною конкуренцією зі сторони Са та стабільного Sr у центрах обміну матриці ґрунту, має подвійний вплив на міграцію радіонуклідів. По-перше, гальмується міграція радіонуклідів шляхом адвективного переносу. По-друге, концентрація радіонуклідів у ґрунтових водах зменшується за рахунок перерозподілу ^{90}Sr між твердою та рідкою фазами (збільшена адсорбція на матриці ґрунту) відповідно до рівноважних умов іонного обміну в ґрунтових водах [21].

Отже, у роботах [8, 20] простежується тенденція збільшення значень K_d за період 1987—2008 рр. Схему довгострокової міграційної поведінки ^{90}Sr від траншеї № Т-22 ПТЛРВ “Рудий Ліс” представлено на рис. 5.

Варіації значень коефіцієнтів розподілення ^{90}Sr в залежності від методу вимірювання. У [10] з метою визначення характеристик та моделювання процесу перенесення ^{90}Sr піщаними ґрунтами водоносного горизонту на експериментальному полігоні Чорнобильського пілотного майданчику середні значення K_d для еолових та алювіальних відкладів визначено різними способами:

1) визначенням *in-situ* розповсюдження ореолу ^{90}Sr (для еолових відкладів $K_d=2,7$ мл/г);

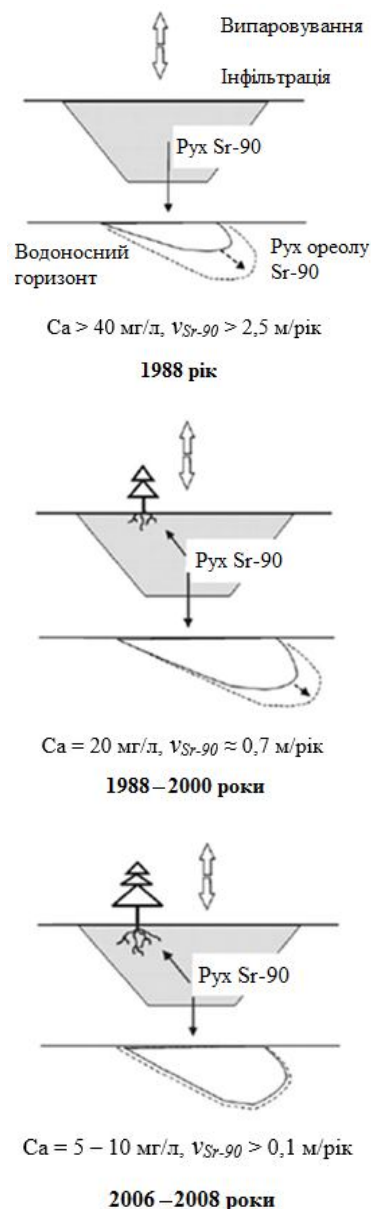


Рис. 5. Еволюція умов міграції ^{90}Sr з траншеї № Т-22 впродовж 1988—2008 рр. [21]

2) проведенням статичних експериментів (для еолових відкладів $K_d=2,8$ мл/г, для алювіальних — $K_d=20$ мл/г);

3) визначенням *in-situ* розподілення ^{90}Sr в системі “матриця—поровий розчин” (для еолових відкладів $K_d=2,0$ мл/г).

Середні значення коефіцієнтів розподілення ^{90}Sr для шару еолового піску, розраховані різними методами, добре узгоджуються (2...3 мл/г). Алювіальним відкладам властиві значно вищі значення K_d , ніж еоловим. Відповідно алювіальні відклади, які поширені в ближній зоні ЧАЕС, можуть являти собою суттєвий природний сорбційний бар’єр під час міграції радіонуклідів від захоронень РАВ [10].

Висновки

1. Визначення адекватних значень коефіцієнтів розподілення ^{90}Sr для ґрунтів Чорнобильської ЗВ має важливе значення для обґрунтування довгострокової безпеки приповерхневих сховищ РАВ на майданчику КВ “Вектор”, оскільки ці міграційні параметри необхідні для побудови математичних гідрогеологічних моделей для розрахунку радіаційних впливів РАВ в приповерхневих сховищах КВ “Вектор” та прогнозування міграції радіонуклідів в період після закриття сховищ.

2. Наявну інформацію про значення коефіцієнтів розподілення ^{90}Sr слід використовувати дуже зважено під час їх застосування для моделювання [25]. Наведені експериментальні значення K_d ^{90}Sr в більшості досліджень [8, 10, 11, 19, 21] розрізняються між собою за часом та місцем відбору

проб ґрунту та / або ґрунтової води, типами ґрунтів та їх відповідними властивостями, методом визначення K_d (модельний лабораторний експеримент або визначення *in-situ*). Приведений масив даних не узгоджується між собою та не дає можливості для побудови адекватних математичних моделей для розрахунку радіаційних ризиків від приповерхневих сховищ РАВ.

3. Для побудови адекватних математичних моделей для розрахунків максимально прийнятних активностей радіонуклідів у складі РАВ приповерхневих сховищ КВ “Вектор” необхідне проведення додаткових комплексних досліджень саме ґрунтів водоносного горизонту в районі розташування майданчика КВ “Вектор” на предмет визначення достовірних коефіцієнтів розподілення ^{90}Sr та встановлення кореляційних зв'язків з іншими міграційними параметрами.

Список використаної літератури

1. Geological disposal of radioactive waste, Safety requirements. — Vienna : IAEA, 2006. — 66 p. — (No. WS-R-4).
2. Disposal of Radioactive Waste. Specific Safety Requirements. — Vienna : IAEA, 2011. — 83 p. — (No. SSR-5).
3. Про Загальнодержавну цільову екологічну програму поводження з радіоактивними відходами : Закон України // Відомості Верховної Ради України. — 2009. — № 5.
4. Стратегія поводження з радіоактивними відходами в Україні : Затвердж. розпорядженням КМ України від 19.08.2009 № 990-р. [Електронний ресурс]. — Режим доступу : <http://zakon4.rada.gov.ua/laws/show/990-2009-%D1%80>
5. Комплексна оцінка безпеки поводження з радіоактивними відходами на майданчику “Вектор” / З. М. Алексєєва, С. М. Кондратьєв, Є. О. Ніколаєв, О. А. Миколайчук, О. А. Макаровська, Н. В. Рибалка // Ядерна та радіаційна безпека. — 2013. — № 2 (58). — С. 43—48.
6. Доработка и внесение изменений в ТЭО инвестиций II очереди комплекса производств “Вектор” (ЦПЗ) в связи с изменениями нормативной базы. Том 2. Оценка воздействия на окружающую среду. Книга 1. Пояснительная записка. — Желтые Воды : НТЦ КОРО, 2007. — 194 с.
7. ^{90}Sr migration to the geosphere from a waste burial in the Chernobyl exclusion zone / L. Dewiere, D. Bugai, C. Grenier, V. Kashparov, N. Ahamdach // Journal of Environmental Radioactivity. — 2004. — V. 74. — P. 139—150.
8. Bugai D. A. Strontium-90 transport parameters from source term to aquifer in the Chernobyl Pilot Site / D. A. Bugai, L. Dewiere, V. A. Kashparov, N. Ahamdach // Radioprotection—Colloques. — 2002. — V. 37. — P. 11—16.
9. Обоснование защитных свойств гидроизолирующего слоя и дренажных систем хранилищ ТРО пускового комплекса I-й очереди комплекса производств “Вектор”. — ОАО “Черниговбуд”, 2002. — 127 с.
10. Миграция стронция-90 в грунтовые воды из захороненный радиоактивных отходов “Рыжий лес” / Д. А. Бугай, С. П. Джепо, А. С. Скальский, В. А. Кашпаров и др. // Проблемы Чорнобильської зони відчуження. — 2001. — № 7. — С. 20—31.
11. Полигонные исследования миграции радионуклидов на участке пункта временной локализации радиоактивных отходов “Рыжий Лес” / С. П. Джепо, А. С. Скальский, Д. А. Бугай, В. В. Гудзенко, С. А. Могильный, Н. И. Проскура // Проблемы Чорнобильської зони відчуження. — 1995. — № 2. — С. 77—84.
12. Лисиченко Г. В. Моделирование миграции радионуклида ^{137}Cs в системе “грунт — растения” / Г. В. Лисиченко, О. В. Фаррахов // 36. наук. праць ІПМЕ НАН України. — 2001. — Вип. 14. — С. 138—144.
13. Исследование сорбции U (VI) почвой из района хранилища радиоактивных отходов / М. Ф. Филиппов, О. Д. Маслов, Г. А. Божиков, Ш. Цэрэнпил и др. — Дубна : Объединенный ин-т ядерных исследований, 2008. — 9 с. — (Препринт / Объединенный ин-т ядерных исследований; ОИЯИ 2008—5).
14. Пирнач Л. С. Радиоактивное загрязнение донных отложений водоема-охладителя ЧАЭС. II. Распределение ^{137}Cs , ^{241}Am , ^{90}Sr в твердой фазе грунта / Л. С. Пирнач // Ядерна фізика та енергетика. — 2011. — Т. 12, № 4. — С. 385—393.
15. Soil Screening Guidance for Radionuclides : Technical Background Document // U.S. Environmental Protection Agency. Publication 9355.4-16. — 2000. [Електронний ресурс]. — Режим доступу : <http://www.epa.gov/superfund/health/contaminants/radiation/pdfs/sstbd.pdf>
16. Дунаева А. Н. Физико-химическое моделирование сорбции радионуклидов (^{137}Cs и ^{90}Sr) в системе “природные воды — глинистые минералы” : дис. ... канд. хим. наук : спец. 25.00.09 / А. Н. Дунаева. — Москва, 2001. — 115 с.
17. Отчет по анализу безопасности СОПХТРО. Редакция 1. Дополнения и изменения. Редакция 2. Главы 1—6. — ГСП ЦПЗТО “Техноцентр”, 2009. — 228 с.
18. Гудзенко В. В. К определению коэффициентов распределения радионуклидов в системе вода — скелет

- породы / В. В. Гудзенко, С. Л. Джепо, Д. А. Бугай, А. С. Скальский // Проблемы Чернобыльской Зоны відчуження. — 1994. — Вип. 1. — С. 93—96.
19. Ольховик Ю. О. Оцінка сорбційної здатності піщаних ґрунтів ближньої зони ЧАЕС / Ю. О. Ольховик, Т. І. Коромисличенко, Л. І. Горогоцька, Е. В. Собо-тович // Доповіді Академії наук України. Математика, природознавство, технічні науки. — 1992. — № 7. — С. 167—171.
 20. Van Meir N. The experimental platform in Chernobyl : an international research polygon in the exclusion zone for soil and groundwater contamination / N. Van Meir, D. Bugai, V. Kashparov // *Radioactive Particles in the Environment*. — 2009. — P. 197—208.
 21. Geochemical influence of waste trench No. 22T at Chernobyl Pilot Site at the aquifer : Long-term trends, governing processes, and implications for radionuclide migration / D. Bugai, E. Tkachenko, N. Van Meir, C. Simonucci, A. Martin-Garin, C. Roux, C. Le Gal La Salle, Yu. Kubko // *Applied Geochemistry*. — 2012. — V. 27. — P. 1320—1338.
 22. Crookshanks C. Ukrainian Assessment. Probabilistic Safety Assessment calculations with MASCOT / C. Crookshanks // *Ukraine Report*. — EAE Technology, 1997. — 33 p.
 23. Шарафутдинов Р. Б. Моделирование диффузии радионуклидов из приповерхностных хранилищ жидких РАО / Р. Б. Шарафутдинов, О. Н. Ушанова, В. И. Корж // *Ядерная и радиационная безопасность*. — 2008. — № 1. — 18—25 с.
 24. Радиоактивные отходы АЭС и методы обращения с ними / А. А. Ключников, Э. М. Пазухин, Ю. М. Шигера, В. Ю. Шигера. — Чернобыль : Ин-т проблем безопасности АЭС НАН Украины, 2005. — 487 с.
 25. Migration of transuranic elements in groundwater from the near-surface radioactive waste site / S. Levchuk, V. Kashparov, I. Maloshtan, V. Yoschenko, N. Van Meir // *Applied Geochemistry*. — 2012. — V. 27. — P. 1339—1347.
 26. Дослідження міграції радіонуклідів на експериментальній ділянці-полігоні на ПТЛРВ “Рудий Ліс”. Частина 1 : Характеристика РАВ і процесів трансформації паливних частинок у похованні / В. О. Кашпаров, В. І. Йощенко, С. Є. Левчук, Д. О. Бугай, Л. Девієр, К. Ардуа // *Чернобыльский научный вестник. Бюлетень екологічного стану зони відчуження та зони безумовного (обов’язкового) відселення*. — 2007. — № 2 (30). — С. 3—15.
 27. Материалы инженерно-геологических изысканий. Опытнo-фильтрaционные исследования. Комплекс “Вектор” в 30-км зоне ЧАЭС. Выбор площадки. — ВГ НИПКИИ “Атомэнергопроект”, 1992.
 28. Материалы инженерно-геологических изысканий по комплексу “Вектор”, проект площадки “Северная” (пункт Буряковка) // КИИЗИ, НТЦ КОРО.
 29. Dewiere L. Validation of the global model for ^{90}Sr migration from the waste burial in the Chernobyl exclusion zone / L. Dewiere, D. Bugai, V. Kashparov, V. Barthes // *Radioprotection (Suppl. 1)*. — 2005. — V. 40. — P. 245—251.

Отримано 31.10.2014

УДК 621.039.586

*И. Л. Козлов**Одесский национальный политехнический университет, г. Одесса***ПАРОВЫЕ ВЗРЫВЫ ПРИ ТЯЖЕЛЫХ АВАРИЯХ В КОРПУСНЫХ ЯДЕРНЫХ РЕАКТОРАХ**

В статье представлены основные сведения о развитии тяжелых аварий (с повреждением ядерного топлива) в корпусных ядерных реакторах, а также подходы к их моделированию. Проведен анализ известных подходов моделирования паровых взрывов при тяжелых авариях. Показано, что исключение из рассмотрения паровых взрывов (как относительно маловероятных событий) не обосновано с учетом уроков Фукусимской аварии. На основании упрощенной модели развития тяжелых аварий в корпусных ядерных реакторах определены условия возникновения паровых взрывов при охлаждении поврежденного ядерного топлива.

Ключевые слова: паровой взрыв, корпусные ядерные реакторы, тяжелая авария.

В атомной энергетике аварии на ядерных энергетических установках традиционно классифицировались как:

проектные аварии (ПА) — аварии, для которых проектом определены возможные исходные события аварий при обеспечении проектными системами необходимых условий безопасности, не поврежденности ядерного топлива и защитных барьеров безопасности с учетом допустимости единичного отказа активных систем или ошибочного действия персонала;

запроектные аварии (ЗА) — аварии при непредусмотренных проектом исходных событиях и / или при развитии аварийных процессов с множественными отказами и / или ошибочными действиями персонала;

тяжелые аварии (ТА) — запроектные аварии с недопустимым для безопасности повреждением ядерного топлива.

Уроки известных тяжелых аварий на АЭС, например, Tree Mile Island (TMI-2) в США и Fukushima Daiichi в Японии, а также опыт разработки руководств / инструкций по управлению авариями выявили ограниченность такого подхода к классификации аварий. В частности, регламентируемые стратегии управления проектными и запроектными авариями без повреждения ядерного топлива фактически идентичны, но принципиально отличаются от стратегий управления тяжелыми авариями.

Анализ и моделирование тяжелых аварий. Более целесообразным представляется классифицировать аварии на ядерных реакторах следующим образом:

аварии без нарушения условий недопустимого повреждения ядерного топлива;

аварии с нарушением условий недопустимого повреждения ядерного топлива (тяжелые аварии).

В общем случае, критические условия повреждения ядерного топлива определяются комплексным взаимодействием нейтронно-физических, теплогидро- и газодинамических, физико-химических и механических процессов; а нарушения критических условий могут быть следствием:

отказов по обеспечению выполнения критических функций безопасности (КФБ) в процессе развития аварийных процессов;

экстремальных исходных событий, приводящих к разрушению всех защитных барьеров безопасности (ЗББ) ядерного топлива.

В корпусных ядерных реакторах обычно условно выделяют внутриреакторную и внереакторную стадии тяжелых аварий [1, 2].

Процессы на внутриреакторной стадии ТА можно разбить на следующие фазы:

Фаза 1. Нарушение геометрии тепловыделяющих элементов (ТВЭЛ) в результате “распухания” ядерного топлива и окисления оболочек. Начало расплавления внутрикорпусных конструкций и регулирующих стержней (с ограничением их перемещения).

Фаза 2. Расплавление и перемещение вниз веществ с низкой точкой плавления. Взаимодействие различных металлов и UO_2 приводит к формированию комплексных эвтектик с температурами текучести ниже, чем температура плавления исходных компонентов активной зоны. Постепенное плавление, перемещение под действием сил тяжести и повторное затвердевание обеспечивает передачу энергии в нижнюю часть корпуса реактора.

Фаза 3. Накопление на дне корпуса реактора фрагментированных частей и ранее расплавленных веществ. Термическое взаимодействие повторно разогревающихся обломков активной зоны и конструктивных структур в нижней части корпуса в конечном итоге может привести к разрушению днища корпуса реактора.

К основным процессам в контайнменте, происходящим вне корпуса реактора при ТА, относятся:

выброс расплава при разрыве днища корпуса реактора;

взаимодействие расплава с бетоном контайнмента;

нарушение герметичности системы 1-го контура на этапе внутрикорпусного повреждения активной зоны;

выход водорода в контайнмент;

паровой взрыв в контайнменте.

Разрыв днища корпуса реактора приводит к существенному изменению характеристик протекания ТА. Выброс обломков / расплава активной зоны в контайнмент представляет существенную угрозу целостности контайнмента, влияет на пути распространения радиоактивных продуктов и многие другие аспекты всего протекания аварии. Некоторые характеристики повреждения корпуса влияют на переход от периода протекания аварии “внутри корпуса” к периоду “вне корпуса” реактора. Наиболее важной из них является давление, при котором происходит разрыв корпуса реактора.

Развитие и многообразие аварийных последовательностей (АП) запроектной аварии, приводящих к возникновению тяжелой аварии, определяется в общем случае:

- группой исходных событий аварий (ИСА);
- надежностью и работоспособностью систем, обеспечивающих выполнение функций безопасности (ФБ) и управления авариями;
- действиями персонала по управлению и ликвидации последствий аварий.

Конечные состояния аварийных последовательностей запроектной аварии (АПЗА) в случае нарушения критериев повреждения топлива являются исходными состояниями ТА на первой (внутрикорпусной) стадии развития аварии (ИСТА1). Идентификация групп ИСТА1 определяется в общем случае:

- предысторией развития АП, которые могли привести к повреждению активной зоны (в том числе состоянием систем, обеспечивающих управление авариями);
- состоянием и условиями повреждений активной зоны реактора (вид, местоположение, объем, степень повреждения и другие характеристики поврежденной активной зоны).

Таким образом, развитие и многообразие аварийных последовательностей на внутриреакторной стадии тяжелой аварии (АПТА1) определяется в общем случае:

- группой ИСТА1;
- условиями межфазного взаимодействия внутрикорпусных структур, корпуса реактора, воды и парогazовой среды;
- надежностью и работоспособностью систем, обеспечивающих выполнение ФБ и управление тяжелой аварией;
- действиями персонала по управлению и ликвидации последствий ТА.

Конечные состояния аварийных последовательностей на внекорпусной стадии тяжелой аварии (АПТА2) в случае несоблюдения критериев разрушения контайнмента являются ИС для третьей (внеконтайнментной) стадии развития ТА (ИСТА3). Идентификация групп ИСТА3 определяется предысторией развития АПТА2 и состоянием и условиями повреждения контайнмента.

Развитие АП и условий несоблюдения критериев радиационной безопасности для населения и окружающей среды зависит от:

- группы ИСТА3;
- условий выхода и взаимодействия продуктов внекорпусной стадии ТА за пределы контайнмента;
- состояния окружающей среды;
- противоаварийных мероприятий по ликвидации последствий ТА.

Стадии и этапы возникновения и развития ТА на корпусных реакторах обобщены на рис. 1.

Уроки Фукусимской аварии показали, что моделирование и анализ тяжелых аварий актуальны не только для внутрикорпусной стадии в реакторе, но и для бассейнов выдержки отработанного ядерного топлива (БВ ОЯТ). В частности, для приреакторного БВ ОЯТ блока № 4 АЭС Fukushima Daiichi было бы актуальным моделирование и анализ тяжелых аварий при следующих исходных событиях:

- полное обесточивание систем охлаждения и потеря герметичности БВ ОЯТ;
- полное обесточивание систем охлаждения и поступление взрывоопасной смеси в БВ ОЯТ от соседних блоков;
- полное обесточивание систем охлаждения и потеря герметичности БВ ОЯТ, поступление взрывоопасной смеси от соседних блоков.

Анализ и моделирование паровых взрывов. Паровой взрыв может привести к резкому увеличению генерации пара и водорода, а также к сильному механическому воздействию на конструктивные элементы реактора и, в первую очередь, на корпус или гермооболочку реактора (в зависимости от того, где произошел взрыв). Паровой взрыв можно определить как высвобождение значительного количества энергии расплава в форме ударной волны сжатия вследствие высокоскоростного цепного

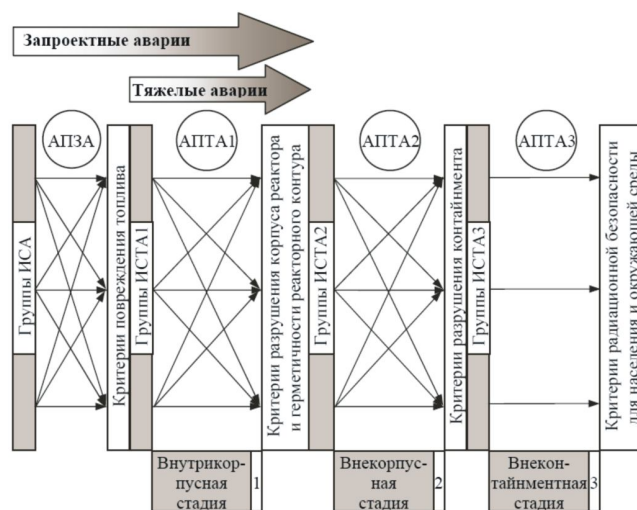


Рис. 1. Этапы и стадии возникновения и развития ТА на корпусных реакторах

процесса взаимодействия горячей жидкости (расплава) и холодной испаряющейся жидкости (теплоносителя). Процесс начинается с интенсивного взаимодействия между расплавленными обломками активной зоны и водой (рис. 2, слева). Если отводимая энергия достаточно велика и все происходит за достаточно короткий промежуток времени, то образующаяся ударная волна может разрушить днище корпуса реактора или создать гидроудар, направленный вверх и способный оторвать верхнюю крышку корпуса реактора (рис. 2, в центре). Крышка корпуса в этом случае становится снарядом, который может нанести удар по конструкциям контайнмента. Такая последовательность событий создает “альфа-вид” отказа контайнмента [2], который применим только к реакторам, конструкция которых допускает физическую возможность такого развития событий.

Физические исследования механизма термомеханического взаимодействия двух разнородных жидкостей различной температуры позволили выделить различные фазы возникновения и протекания парового взрыва [3]:

начальное “грубое” перемешивание горячей и холодной жидкостей (механизм теплообмена между жидкостями — пленочное кипение);

резкая интенсификация теплообмена при нарушении пленочного кипения под воздействием того или иного возмущения;

формирование ударной волны вследствие цепного процесса интенсивной генерации пара с прорывом паровой пленки и дальнейшей фрагментацией жидкостей;

распространение ударной волны в многофазной системе.

Начальная фаза парового взрыва в значительной мере определяет массу расплава активной зоны, которая достаточно эффективно перемешивается с водой и может принимать участие в последующих фазах парового взрыва. Возможны два принципиально различных механизма перемешивания расплава с водой. Один из них предполагает, что фрагментация капель расплава происходит до размера, соответствующего пределу противоточного движения падающей капли и восходящего потока пара. Во втором случае расплав, вода и пар считаются образующими единую систему, расширяющуюся в радиальном направлении по мере погружения в объем теплоносителя.

Определяющей для парового взрыва является третья фаза, при которой генерация пара в данном месте происходит со скоростью выше интенсивности его отвода. Это приводит к местному возрастанию давления и, как следствие, с одной стороны, к дальнейшей фрагментации частиц жидкости, развитию поверхности контакта и росту генерации пара; с другой — к распространению этого процесса на соседние частицы. В результате происходит детонационный процесс. Третья фаза (формирование ударной волны) определяется циклической последовательностью процессов, включая процессы перемешивания и формирования новой области контакта системы “расплав—теплоноситель”, в частности за счет фрагментации расплава, генерации пара и т. п.

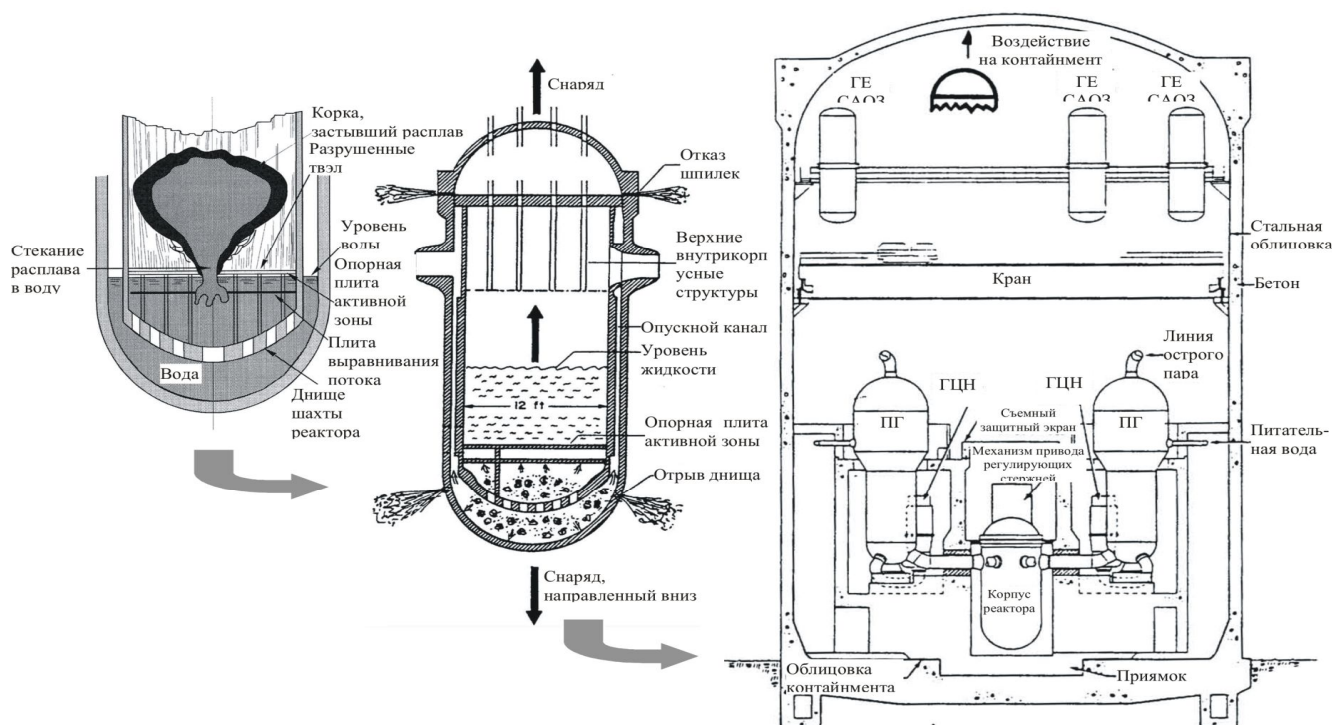


Рис. 2. Развитие парового взрыва внутри корпуса реактора [2]

Последняя фаза парового взрыва — распространение полностью сформировавшейся термической детонационной волны в первоначально грубо перемешанной смеси расплава, жидкого и парообразного теплоносителя. Прохождение ударной волны вызывает срыв парового слоя и частиц расплава с возникновением больших относительных скоростей. На этой стадии фрагментация частиц расплава может происходить либо вследствие вскипания при докритических давлениях, либо вследствие нарушения устойчивости поверхности при сверхкритических давлениях.

В качестве примера феноменологических моделей парового взрыва можно привести неравновесную модель большого масштаба в водоохлаждаемом реакторе [2]. Физическая модель рассматривает стадии процесса перемешивания и взрыва с тремя зонами системы: перемешивания (взрыва), промежуточной и расширения (рис. 3).

Основные допущения модели парового взрыва:

система имеет одну зону перемешивания (рис. 3, б) и зону взрыва (рис. 3, а), распространяющихся с плоским или полусферическим фронтом, соответственно;

весь теплоноситель в зоне взрыва участвует во взаимодействии с расплавом;

теплообмен с окружающей средой отсутствует;

внутренний теплообмен осуществляется между зонами взрыва и промежуточной;

частицы расплава топлива равномерно распределены в объеме теплоносителя в результате начального перемешивания;

весь пар, возникающий при взрыве, остается вокруг частиц топлива;

энергией пара вызванной радиационным воздействием и энергией химических реакций между топливом и теплоносителем можно пренебречь.

Вода и пар могут иметь различные температуры (неравновесное состояние). Частицы расплавленного топлива разделяются по размерам на две группы: первую образуют частицы диаметром, определяющимся процессом начального перемешивания; вторую составляют частицы, образовавшиеся в процессе

фрагментации. Результаты расчетов по данной модели, представленные на рис. 4, достаточно хорошо совпадают с экспериментальными данными, полученными в известной серии экспериментов на установке FITS (США) по изучению условий возникновения паровых взрывов при тяжелых авариях на АЭС [4].

В отношении необходимости учета возможности возникновения паровых взрывов при моделировании и анализе тяжелых аварий необходимо отметить:

1) При паровых взрывах происходит разложение молекул воды и образуются высокие концентрации водорода и кислорода, что может привести к последующей мощной водородной детонации (одна из обоснованных версий разрушительного взрыва на блоке № 3 АЭС Fukushima Daiichi);

2) При моделировании и анализе тяжелых аварий в корпусных реакторах обычно не учитывают возможность возникновения паровых взрывов в реакторе и контайнменте как крайне маловероятных событий. Такие допущения для корпусных реакторов типа ВВЭР-1000 возможно могут быть обоснованы тем, что при авариях с ИС “неплотный реакторный контур” (например, течи реакторного контура — LOCA) осуществляется естественная вентиляция реактора от превышения давления; а при авариях с ИС “плотный реакторный контур” (например, потеря электроснабжения — аналог аварии на АЭС Fukushima Daiichi) в случае недопустимого повышения давления вентиляция реактора осуществляется автоматическим открытием предохранительных клапанов (импульсно-предохранительное устройство компенсатора давления — ИПУ КД). Вероятность возникновения паровых взрывов в контейнменте (гермооболочке — ГО) также ограничена большим объемом ГО и техническими возможностями регулирования давления. В частности, в энергоблоках с ВВЭР-1000 нового поколения безопасности — это системы пассивного отвода тепла; а в действующих энергоблоках планируется, с учетом уроков фукусимской аварии, установка предохранительных клапанов ГО с отведением выбрасываемой среды на систему локализации и подавления активности.

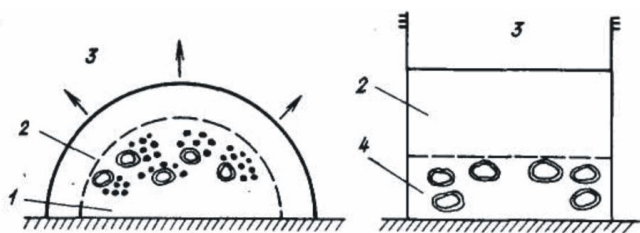


Рис. 3. Физическая модель процессов парового взрыва (а) и перемешивания (б):
1 — зона взрыва; 2 — промежуточная зона;
3 — зона расширения; 4 — зона перемешивания

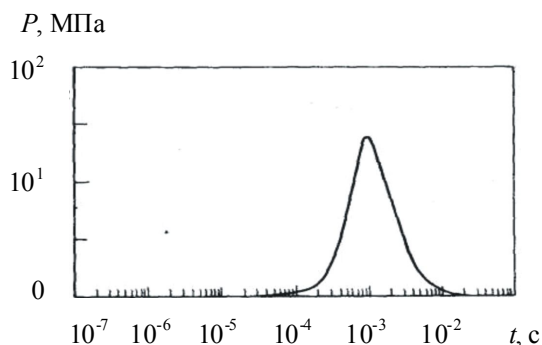


Рис. 4. Изменение давления при паровом взрыве на установке FITS (масса теплоносителя в зоне взрыва — 14 кг)

Однако, допущения об отсутствии необходимости моделирования и анализа тяжелых аварий с учетом возможности возникновения паровых взрывов недостаточно обоснованы по следующим причинам:

1) Эффективность выполнения функции безопасности снижения давления в реакторе при ИС “плотный контур” зависит от надежности срабатывания предохранительных клапанов. Следует напомнить, что основная причина тяжелой аварии на АЭС ТМІ-2 была как раз связана с надежностью предохранительного клапана реактора, а также произошедший относительно недавно инцидент с незакрытием ИПУ КД на Ровенской АЭС.

2) Кроме того, уроки Фукусимской катастрофы показали, что тяжелые аварии могут происходить при множественных отказах систем безопасности, в т. ч. и пассивных.

3) Эффективность выполнения функции безопасности по снижению давления в реакторе и контайнменте существенно зависит от соотношения интенсивности парообразования при охлаждении и удалении парогазовой среды.

Ниже приведена модель оценки возможности возникновения парового взрыва в процессе развития ТА в реакторе и / или контайнменте при условии работоспособности систем вентиляции.

Уравнение массового баланса для парогазового объема реактора / контейнмента ($V_{\text{ПГ}}$, м³) можно упрощенно представить в виде

$$\frac{dM_{\text{П}}}{dt} + \frac{dM_{\text{Ж}}}{dt} = G_{\text{охл}} - G_{\text{вент}}, \quad (1)$$

где $M_{\text{П}}$, $M_{\text{Ж}}$ — масса пара и жидкости, соответственно, кг; t — время, с; $G_{\text{охл}}$, $G_{\text{вент}}$ — расходы охлаждения и вентиляции, соответственно, кг/с.

Консервативно полагая, что поступающее охлаждение приводит к завершённому процессу парообразования, и учитывая ничтожно малую сжимаемость жидкости по сравнению с паром, которой можно пренебречь, из (1) следует, что скорость роста давления (P , Па) может быть оценена зависимостью

$$\frac{dP}{dt} = \frac{a_{\text{П}}^2}{V_{\text{ПГ}}} (G_{\text{охл}} - G_{\text{вент}}), \quad (2)$$

где $a_{\text{П}}$ — скорость звука в паре, м/с.

Условие возникновения парового взрыва по скорости роста давления — выброс расплава при разрыве днища корпуса реактора:

$$\frac{dP}{dt} \geq \left(\frac{dP}{dt} \right)_{\text{кр}}, \quad (3)$$

где $(dP/dt)_{\text{кр}}$ — критическая скорость роста давления, которая может быть определена экспериментально.

Из (2) и (3) следует условие возникновения парового взрыва в реакторе / контайнменте по охлаждению топливосодержащих масс (ТСМ) и конструкций:

$$G_{\text{охл}} \geq \frac{V_{\text{ПГ}}}{a_{\text{П}}^2} \left(\frac{dP}{dt} \right)_{\text{кр}} + G_{\text{вент}}. \quad (4)$$

Выводы

1. Так как парогазовый объем ГО ВВЭР-1000 значительно превышает газовый объем реактора, то при прочих равных условиях возможность возникновения парового взрыва более актуальна в реакторе.

2. Расходы по удалению парогазовой среды через ИПУ КД сопоставимы с малыми течами реакторного контура. Поэтому, при авариях с ИС “плотный контур” (например, полное обесточивание) расходы по охлаждению могут значительно превышать расходы через ИПУ КД. Оценочные расчеты условия (4) показывают, что при превышении расхода охлаждения более 50% от максимального, по проекту возможен паровой взрыв в реакторе даже при открытом предохранительном клапане.

3. При разработке эффективных стратегий по управлению тяжелыми авариями необходимо учитывать ограничения по охлаждению ТСМ в реакторе и контайнменте для предотвращения паровых взрывов.

Список использованной литературы

1. IAEA. Training in Level 2 PSA. Sever Accident Phenomena. — 2006.
2. Скалозубов В. И. Основы управления запроектными авариями с потерей теплоносителя на АЭС с ВВЭР / В. И. Скалозубов, А. А. Ключников, В. Н. Колыханов. — Чернобыль : ИПБ АЭС НАН Украины, 2010. — 400 с.
3. Скалозубов В. И. Анализ причин и последствий аварии на АЭС Fukushima как фактор предотвращения тяжелых аварий в корпусных реакторах / В. И. Скалозубов, А. А. Ключников, В. Н. Ващенко, С. С. Яровой. — Чернобыль : ИПБ АЭС НАН Украины, 2012. — 280 с.
4. Кузнецов Ю. Н. Теплообмен в проблеме безопасности ядерных реакторов / Ю. Н. Кузнецов. — М. : Энергоатомиздат, 1989. — 296 с.

Получено 17.11.2014

УДК 621.039.7

Ю. А. Ольховик

ГУ “Институт геохимии окружающей среды” НАН Украины, г. Киев

О КОНДИЦИОНИРОВАНИИ ЛАВОВЫХ ТОПЛИВОСОДЕРЖАЩИХ МАСС
ОБЪЕКТА “УКРЫТИЕ”

Рассмотрен химический состав и свойства лавовых топливосодержащих масс (ЛТСМ) объекта “Укрытие”. Отмечена необходимость их дальнейшего кондиционирования для обеспечения безопасности длительного хранения и захоронения в геологическом хранилище. В качестве оптимального метода кондиционирования предложено совместное остекловывание ЛТСМ и борсодержащих жидких радиоактивных отходов (ЖРО) АЭС с использованием индукционного плавителя “холодный тигель” (ИПХТ).

Ключевые слова: боросиликатное стекло, остекловывание, лавовые топливосодержащие массы, жидкие радиоактивные отходы, высокоактивные отходы.

Согласно утвержденной в 2001 году Стратегии преобразования объекта “Укрытие” [1] преобразование объекта “Укрытие” (ОУ) в экологически безопасную систему предусматривает в будущем извлечение ЛТСМ из ОУ и перевод их в контролируемое безопасное состояние.

В составе ЛТСМ находится около 90 тонн облученного ядерного топлива, т. е. около половины радионуклидов, накопленных в активной зоне энергоблока № 4 к моменту Чернобыльской аварии [2]. Химический состав ЛТСМ, в отличие от известных матриц остеклованных высокоактивных отходов, характеризуется высоким содержанием SiO_2 , низким содержанием Al_2O_3 , отсутствием бора, фосфора, редкоземельных элементов. Относительно высокое содержание MgO однозначно связано с участием минералов группы серпентина $\text{Mg}_6(\text{OH})_8\text{Si}_4\text{O}_{10}$ в формировании ЛТСМ. В качестве примера на рис. 1 приведены усредненные данные по 18 образцам коричневой керамики из парораспределительного коридора (ПРК). Данные получены по результатам эмиссионного спектрального анализа с относительной точностью до 20 %. Пересчет данных спектрального анализа в традиционную форму химического состава в окислах представлен в табл. 1.

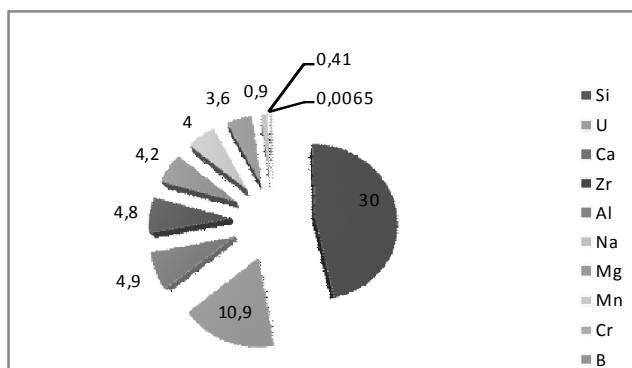


Рис. 1. Элементный состав коричневой керамики из ПРК [2]

Современные представления о формировании ЛТСМ предполагают, что химический состав лав сформирован, главным образом, при взаимодействии высокотемпературного расплава, состоящего из UO_2 и ZrO_2 , с бетоном реакторных конструкций и с серпентинитом из основания реактора. Это находит подтверждение при вычитании из валового состава ЛТСМ топливных (U, Zr) и серпентинитовых (Mg, Si) компонентов. Расчеты дают результат, близкий к валовому составу строительного бетона, обычно применяемого в бывшем СССР при строительстве бетонных конструкций реакторов, но с несколько повышенным содержанием Na_2O . Возможно, это связано с особенностями состава строительных материалов, использованных при сооружении реакторных помещений Чернобыльской АЭС.

Фактически, ЛТСМ представляют собой застывшую суспензию, дисперсионной средой которой является стекловидная силикатная матрица, а твердая дисперсная фаза представлена большим количеством разнообразных включений, среди которых установлены оксиды урана, уран-цирконий-кислородная фаза $\text{U}_x\text{Zr}_y\text{O}_2$, циркон (“чернобылит”) и металлические глобулы [2].

Таблица 1. Химический состав ЛТСМ и конструкционных материалов ОУ, мас. %

Оксид	Кер-ка из пом. 304/3 [2]	Кер-ка из пом. ББ-2 [2]	Коричневая кер-ка [3]	Черная кер-ка [3]	Строительный бетон* АЭС [4]	Серпентин (без летучих компонентов) [5]
SiO_2	65,2	66,9	58,5	63,2	73,6	51,6
CaO	6,2	4,8	6,1	6,6	11,5	—
ZrO_2	5,4	5,1	6,0	5,7	—	—
Na_2O	5,7	2,0	4,9	5,5	2,9	—
BaO	0,1	0,1	0,2	0,2	—	—
Al_2O_3	6,9	—	6,3	8,1	9,4	—
MnO	1,8	0,3	0,5	0,4	0,1	—
Fe_2O_3	0,5	1,8	1,2	—	1,8	—
MgO	3,5	8,9	6,4	5,3	0,7	48,4
UO_2	4,7	10,0	10,0	5,0	—	—

* — макрокомпоненты

Основная часть активности в ЛТСМ сосредоточена в микровключениях размером 10—25 мкм, что совпадает с размерами зерен 20 мкм диоксида урана, спрессованных в топливную таблетку тепловыделяющего элемента реактора РБМК. По экспериментальным оценкам массовая доля урана в микровключениях составляет 60—70 % [2]. Микровключения занимают сравнительно малый объем (около 5 %) ЛТСМ, но содержат значительную часть (порядка 70 %) общей активности.

По-видимому, сохранение зерен UO_2 в расплаве с высоким содержанием кремнезема при температурах более 1600 °C связано с особенностями поведения диоксида урана в силикатных системах. Так, в системе $UO_2-SiO_2-Na_2SiO_3$, где нет избытка SiO_2 , растворимость UO_2 не наблюдается и UO_2 не реагирует с SiO_2 при температурах 1750—1800 °C [6].

В 1986 году в Институте металлофизики АН УССР была выполнена оценка энергии активации E_a процесса растворения UO_2 в чистом SiO_2 . Экспериментальным путем установлено значение $E_a = (5 \pm 0,5)$ эВ, что означает крайне медленную скорость процесса при температуре ниже 2000 °C. Однако добавление к расплаву 10 % Al_2O_3 , равно как и ZrO_2 , приводит к заметному ускорению скорости растворения [4].

По-видимому, сохранность зерен UO_2 в ЛТСМ, несмотря на присутствие в них заметных количеств Al_2O_3 и ZrO_2 (табл. 1), может быть связана с высокой скоростью остывания лав в условиях значительных температурных градиентов и интенсивного газовыделения, что привело к наличию в матрице ЛТСМ внутренних напряжений, пористости и значительной неоднородности. Вследствие воздействия указанных факторов ЛТСМ представляют собой хрупкое пористое вещество, для которого характерны невысокая механическая прочность, эрозия поверхности (пылеобразование), высокая скорость выщелачивания урана и радиоизотопов цезия, неустойчивость в условиях прямого контакта с водой, что однозначно приводит к выводу о необходимости кондиционирования ЛТСМ для обеспечения безопасности последующего захоронения. Дополнительным аргументом в пользу кондиционирования служит неопределенность оценок относительно возможности разрушения материала лавы с появлением пылеватых частиц из-за распухания высокоактивных микровключений в результате концентрированного самооблучения. До настоящего времени нет единой точки зрения о характере долговременного (около 100 лет) поведения лавы.

Поэтому основной задачей кондиционирования ЛТСМ можно считать их преобразование до состояния гомогенного и устойчивого к воздействию природных факторов материала, приемлемого для безопасного длительного хранения и последующего захоронения в геологическом хранилище. Этот

процесс преобразования ЛТСМ должен обеспечить растворение зерен UO_2 и равномерное распределение урана и наработанных изотопов трансурановых элементов (в первую очередь изотопов плутония) в матрице, свойства которой смогут на длительный период обеспечить изоляцию долгоживущих радионуклидов от окружающей среды. При этом матрица должна быть устойчивой к радиационному воздействию, прежде всего к α -распаду содержащихся в ней трансурановых элементов, поскольку за 100 лет в ЛТСМ дозы от α -излучения составят при наиболее консервативном рассмотрении приблизительно $1,5 \cdot 10^{16}$ α -распадов/г (10^9 рад).

В настоящее время основными матричными композициями для промышленной иммобилизации ВАО являются неорганические стекла. Выбор стекол обусловлен их свойствами — полимерной структурой и нестехиометричностью, что позволяет включать в них в определенных пределах, почти все элементы периодической системы, в том числе значительные количества оксидов компонентов ВАО.

По убеждению автора, задачи кондиционирования ЛТСМ могут быть решены путем преобразования ЛТСМ в боросиликатное стекло, известное высокой стойкостью к коррозии в водных средах, обладающее малой восприимчивостью к действию радиации и низкой чувствительностью к изменениям химического состава иммобилизуемых материалов. В связи с этим боросиликатное стекло в настоящее время является наиболее распространенной матрицей для иммобилизации высокоактивных радиоактивных отходов (ВАО). Их состав в различных странах варьируется и определяется, главным образом, различием в составе отходов (табл. 2).

При переработке ЛТСМ в боросиликатное стекло в качестве добавки могут быть применены накопленные на АЭС Украины борсодержащие среднеактивные ЖРО, представленные так называемым “солевым плавом” (кристаллогидрат нитрата, боратов и гидроокиси натрия) и кубовым остатком — концентрированным раствором того же состава.

Таблица 2. Состав боросиликатных стекол с радиоактивными отходами (РАО), мас. % [7].

Стекло, страна	SiO_2	B_2O_3	Al_2O_3	CaO	MgO	Na_2O	Другие компоненты*
R7/T7, Франция	47,2	14,9	4,4	4,1	—	10,6	18,8
DWPF, США	49,8	8,0	4,0	1,0	1,4	8,7	27,1
Отходы Магnox, Великобритания	47,2	16,9	4,8	—	5,3	8,4	17,4
PAMELA, Германия—Бельгия	52,7	13,2	2,7	4,6	2,2	5,9	18,7
Красноярск-26, Россия	48,2	7,5	2,5	15,5	—	16,1	10,2

* — включая продукты деления и актиниды

Принимается, что средний химический состав солевого плава украинских АЭС соответствует следующим значениям, г/кг: H_3BO_3 — 310; Na^+ — 180...220; K^+ — 55; Cl^- — 5; Fe^{2+} — 0,02; SO_4^{2-} — 25...95. Содержание Na_2O и B_2O_3 в солевом плаве, в пересчете на окислы, составляет 30 % и 48 %, соответственно, а их соотношение $\text{Na}_2\text{O} / \text{B}_2\text{O}_3 = 1,6$ не будет изменяться при потере летучих компонентов.

В результате совместной переплавки ЛТСМ усредненного состава (табл. 1) и “солевого плава” в соотношении 3:1 возможно формирование боросиликатного стекла с составом, %: SiO_2 — 47,6; B_2O_3 — 9,5; CaO — 4,4; ZrO_2 — 4,2; Na_2O — 18,8; Al_2O_3 — 4,0; MgO — 4,5; UO_2 — 5,6, близким по основным компонентам к стеклам, применяемым за рубежом для иммобилизации высокоактивных отходов (табл. 2).

Наиболее оптимальным методом получения боросиликатных стекол на основе ЛТСМ, по мнению автора, является ИПХТ. Плавка в “холодном” тигле позволяет проводить синтез иммобилизованных форм РАО при температурах $< 1800^\circ\text{C}$ с получением материалов самого разнообразного состава — от остеклованных ВАО до различных минералоподобных и кристаллических материалов, включающих ВАО. Экспериментально установлено, что при использовании метода ИПХТ для локализации оксида урана в боросиликатных стеклах полное взаимодействие расплава с иммобилизуемым компонентом происходит за более короткое время. За счет наличия в расплаве, находящемся в “холодном” тигле, местных зон перегрева и конвективного перемешивания достигается быстрое максимальное растворение оксида урана и его равномерное распределение в объеме стекломассы, чего не удастся достичь при использовании плавления в муфельной печи из-за седиментации урансодержащей фазы в донную часть стекломассы [8]. В расплавах, получаемых в ИПХТ, возможно наличие зон их перегрева с температурой до $1400...1450^\circ\text{C}$, что в свою очередь приводит к увеличению в расплавах содержания урана в низших степенях окисления. Отмечено, что выщелачиваемость химических элементов из стекол, полученных методом ИПХТ, примерно в два раза ниже по сравнению со стеклами, изготовленными в печи сопротивления [9]. Ионы U^{4+} , как и четырехвалентные ионы других актинидов, располагаются в пустотах структурной сетки стекла между слоями. Они прочно связаны с ионами кислорода кремнекислородных тетраэдров вплоть до образования поперечных связей, “сшивающих” эти тетраэдры. Поэтому ионы U^{4+} вносят незначительный вклад в общую скорость выщелачивания урана. Напротив, ионы U^{6+} в виде уранильных комплексов, образующих цепочки, расположенные между слоями кремнекислородных тетраэдров, значительно слабее связаны с кремнекислородным каркасом стекла и дают основной вклад в выщелачивание урана [10].

Распад заключенных в боросиликатную матрицу осколочных и трансурановых радионуклидов, а также изотопов урана способен воздействовать на матрицу и вызвать снижение ее изолирующих свойств. Одним из эффектов радиационного воздействия является саморазогрев вследствие поглощения энергии радиоактивного излучения внутри матрицы. Известно, что стеклам присуще свойство увеличения растворимости при повышении температуры, что может стать причиной миграции радионуклидов из горячей матрицы в окружающую среду. Однако в случае остекловывания ЛТСМ этим фактором можно пренебречь ввиду низкого тепловыделения топлива энергоблока № 4 ЧАЭС. Проведенный в Институте проблем безопасности АЭС НАН Украины расчет (табл. 3) показал, что на текущий момент энерговыделение этого топлива незначительно, а через 100 лет составит лишь $0,04 \text{ Вт/кг U}$. Учитывая, что содержание урана в ЛТСМ не превышает 10 %, радиоактивный распад осколочных и трансурановых радионуклидов может быть исключен в качестве источника нагрева боросиликатной матрицы.

Еще одним фактором радиационного воздействия может быть накопление в боросиликатной матрице радиационных дефектов вследствие α -распада трансурановых элементов. Радиационное воздействие приводит к изменению объема стекла, причем, в зависимости от состава стекла, он может как увеличиваться, так и уменьшаться. Для гомогенных боросиликатных стекол доза насыщения, выше которой объем стекла остается практически постоянным, составляет около $10^{18} \alpha$ -распадов/г (10^{11} рад). Максимальная степень изменения объема стекла под воздействием радиации находится в пределах $\pm 1,2\%$ [11]. Следует подчеркнуть, что при соотношении щелочей к кремнию на уровне $0,3...0,4$ (как в потенциальном боросиликатном стекле на основе ЛТСМ) объем стекол при радиационном воздействии остается постоянным.

Таким образом, преобразование ЛТСМ в боросиликатную, гомогенную, устойчивую к внутреннему радиационному облучению и стойкую к воздействиям

Таблица 3. Расчетное удельное энерговыделение топлива энергоблока № 4, Вт/кг U

Радионуклид	2015 г.	2060 г.	2090 г.	2120 г.
^{241}Am	$1,43 \cdot 10^{-2}$	$2,55 \cdot 10^{-5}$	$2,49 \cdot 10^{-5}$	$2,39 \cdot 10^{-5}$
^{238}Pu	$4,20 \cdot 10^{-3}$	$2,89 \cdot 10^{-3}$	$2,28 \cdot 10^{-3}$	$1,80 \cdot 10^{-3}$
^{239}Pu	$3,78 \cdot 10^{-3}$	$3,71 \cdot 10^{-3}$	$3,70 \cdot 10^{-3}$	$3,70 \cdot 10^{-3}$
^{240}Pu	$5,25 \cdot 10^{-3}$	$5,13 \cdot 10^{-3}$	$5,11 \cdot 10^{-3}$	$5,09 \cdot 10^{-3}$
^{137}Cs	$1,54 \cdot 10^{-1}$	$1,66 \cdot 10^{-2}$	$8,33 \cdot 10^{-3}$	$4,18 \cdot 10^{-3}$
^{90}Sr	$5,50 \cdot 10^{-2}$	$1,84 \cdot 10^{-2}$	$8,89 \cdot 10^{-3}$	$4,28 \cdot 10^{-3}$
^{241}Pu	$6,11 \cdot 10^{-4}$	$7,00 \cdot 10^{-5}$	$1,65 \cdot 10^{-5}$	$3,90 \cdot 10^{-6}$
^{147}Pm	$9,09 \cdot 10^{-5}$	0	0	0
^{90}Y	$2,30 \cdot 10^{-1}$	$7,70 \cdot 10^{-2}$	$3,71 \cdot 10^{-2}$	$1,79 \cdot 10^{-2}$
В с е г о	0,47	0,12	0,07	0,04

факторов окружающей среды матрицу может рассматриваться как одно из возможных решений сформулированной в Стратегии преобразования объекта “Укрытие” задачи перевода топливосодержащих масс в контролируемое безопасное состояние.

Использование серийно выпускаемого высоко-частотного генератора мощностью 300 кВт и с частотой 0,44 МГц способно обеспечить формирование в ИПХТ производительности по расплаву около 40 кг/ч. Такой производительности плавителя

достаточно, чтобы переработать в боросиликатное стекло находящиеся в объекте “Укрытие” 1200 тонн ЛТСМ за достаточно ограниченный период. Однако предварительно должны быть проведены масштабные научно-исследовательские работы для определения оптимальных соотношений материалов ЛТСМ, с присущими им вариациями химического состава, и борсодержащих ЖРО с тем, чтобы получаемая матрица обладала высокой гидролитической устойчивостью и гомогенностью.

Автор выражает благодарность В. М. Рудько за помощь при подготовке статьи.

Список использованной литературы

1. Стратегия преобразования объекта “Укрытие” : Утверждена решением межведомственной комиссии по комплексному решению проблем Чернобыльской АЭС. Протокол № 2 от 12 марта 2001 г.
2. Ядерное топливо в объекте “Укрытие” Чернобыльской АЭС / Р. В. Арутюнян, Л. А. Большов, А. А. Боровой, Е. П. Велихов, А. А. Ключников. — М. : Наука, 2010. — 240 с.
3. Отчет о состоянии безопасности объекта “Укрытие”. Т. 1. [Электронный ресурс]. — Режим доступа : http://www.chnpp.gov.ua/index.php?option=com_content&view=article&id=157&lang=ru
4. Арутюнян Р. В. Физические модели тяжелых аварий на АЭС / Р. В. Арутюнян, Л. А. Большов, А. Д. Васильев, В. Ф. Стрижов. — М. : Наука, 1992. — 232 с.
5. Геологический словарь. Том 2. — М. : 1978. — 455 с.
6. Диаграммы состояния систем тугоплавких оксидов. Вып. 5. — Л. : Наука, 1991. — 416 с.
7. Ожован М. И. Применение стекол при иммобилизации радиоактивных отходов / М. И. Ожован, П. П. Полуэктов // Безопасность окружающей среды. — 2010. — № 1. — С. 112—115.
8. Матюнин Ю. И. Исследование урансодержащих боросиликатных стекол, синтезированных в индукционном плавителе с холодным тиглем (ИПХТ) / Ю. И. Матюнин, С. В. Юдинцев // Вопросы радиационной безопасности. — 2000. — № 1. — С. 15—23.
9. Стекла для иммобилизации отходов низкого и среднего уровней радиоактивности / Н. П. Лаверов, Б. И. Омеляненко, С. В. Юдинцев, С. В. Стефановский, Б. С. Никоненко // Геология рудных месторождений. — 2013. — Т. 55, № 2. — С. 87—113.
10. Veal B. W. Actinides in silicate glasses / B. W. Veal, J. N. Mundy, D. J. Lam // Handbook of the physics and chemistry of actinides. — Petterdam : Elsevier, 1987. — P. 271—309.
11. Ewing R. C. Radiation effects in nuclear waste forms for high level radioactive waste // R. C. Ewing, W. J. Weber, F. W. Clinard // Progress in Nuclear Energy. — 1995. — V. 29, № 2. — P. 63—127.

Получено 20.11.2014

УДК 502.65:621.039.75:628.3

*Ю. В. Бондарь, С. В. Кузенко, Н. В. Александрова, Т. И. Коромысличенко**ГУ “Институт геохимии окружающей среды” НАН Украины, г. Киев***НОВЫЕ КОМПОЗИТНЫЕ ВОЛОКНА ДЛЯ СЕЛЕКТИВНОГО ИЗВЛЕЧЕНИЯ ЦЕЗИЯ ИЗ ВЫСОКОСОЛЕВЫХ РАСТВОРОВ**

Синтезированы новые композитные волокна путем *in situ* осаждения слоя ферроцианида калия-никеля на поверхность модифицированных полиакрилонитрильных волокон. Результаты электронно-микроскопического и инфракрасного исследований подтвердили формирование ферроцианидного слоя на поверхности волокон. Синтезированные композитные волокна химически стабильны как в кислых, так и щелочных растворах. Как композитный адсорбент они характеризуются высокой селективностью по отношению к ионам цезия в присутствии большого избытка конкурирующих ионов натрия и калия.

Ключевые слова: цезий-137, жидкие радиоактивные отходы, композитный адсорбент, полиакрилонитрильные волокна, ферроцианид калия-никеля, селективность, высокосолевые растворы.

В эпоху ядерной эры устойчивое развитие топливно-энергетического комплекса неразрывно связано с решением проблемы обращения с радиоактивными отходами, с изучением поведения радионуклидов в природной среде, а также проведением реабилитационных мероприятий на загрязненных территориях. Особую актуальность при решении поставленных проблем приобретает разработка и внедрение в практику новых сорбционных материалов для селективного извлечения радионуклидов из загрязненных природных и технологических вод.

На территории Украины определяющий вклад в суммарную активность поверхностных вод, а также жидких радиоактивных отходов (ЖРО) вносят радионуклиды ^{137}Cs и ^{90}Sr . В поверхностных водах содержание ^{137}Cs , связанное с глобальным выпадением, как правило, невелико и варьирует в пределах $10^{-3} \dots 10^{-2}$ Бк/л [1, 2], поэтому гамма-спектрометрическое определение этого радионуклида невозможно без предварительного концентрирования из больших объемов воды (более сотни литров) с использованием селективных сорбентов. Селективные сорбенты также необходимы для выделения ^{137}Cs из растворов с высоким содержанием в присутствии большого избытка конкурирующих ионов.

Среди известных природных и синтетических неорганических сорбентов наибольшую эффективность при выделения ионов цезия из загрязненных вод продемонстрировали нерастворимые двойные ферроцианиды (ФЦ) переходных металлов (Fe, Cu, Co, Ni, Zn и др.) с общей формулой $\text{M}_{2n}^I \text{M}_{(2-n)}^{II} [\text{Fe}(\text{CN})_6]$ [3]. Высокая эффективность и селективность ферроцианидов сохранялась при извлечении цезия из вод с высокой минерализацией в широком диапазоне pH.

Однако, проведенные эксперименты по очистке ЖРО выявили существенные недостатки ферроцианидов, связанные с низкой механической стойкостью

и пептизацией (коллоидообразованием) мелкокристаллических ФЦ в водных растворах [3]. Чтобы преодолеть эти недостатки, был предложен синтез композитных адсорбентов путем осаждения / внедрения микрочастиц ФЦ на / в твердые матрицы.

Для определения (и выделения) радиоизотопов цезия в природных и промышленных водах, в питьевой и морской воде, в молоке и других растворах как в лабораторных, так и полевых условиях было разработано и внедрено в коммерческую практику несколько видов композитных органо-неорганических адсорбентов с ферроцианидной фазой.

Группа доктора F. Šebesta из Чешского Технического Университета (Прага) разработала смолу KNiFC-PAN, которая представляет собой пористые микрогранулы на основе полиакрилонитрила с внедренными в них микрокристаллами ферроцианида калия-никеля [4]. Эта смола является коммерческим продуктом компании “TrisKem International” (Ренн, Франция) и реализуется на территории Украины через государственное научно-исследовательское учреждение “Чернобыльский центр по проблемам ядерной безопасности, радиоактивных отходов и радиоэкологии”.

Научно-производственное предприятие “Экосорб” (Екатеринбург, Россия) предлагает гранулированные целлюлозно-неорганические сорбенты “АНФЕЖ” и “Фежел” с активной ферроцианидной фазой. Проведенные эксперименты продемонстрировали простоту, удобство и малую стоимость анализов с этими адсорбентами [5, 6]. В Украине “АНФЕЖ” использовался для контроля качества воды на Днепровской станции водоподготовки.

Несмотря на то, что в Украине существует высокая потребность в адсорбентах как для проведения экспресс анализов, так и для очистки ЖРО, промышленный выпуск селективных адсорбентов не налажен.

С экономической точки зрения и возможности промышленного выпуска недорогих адсорбентов для экспресс-определения радиоизотопов цезия в природных и промышленных водах, а также для очистки низкорadioактивных ЖРО перспективными являются композитные адсорбенты на основе полимерных волокон. Такие композиты будут объединять уникальные свойства микрочастиц ФЦ (высокая скорость химических реакций, селективность по отношению к ионам цезия) и полезные технологические свойства полимерных волокон (химическая стойкость, высокая удельная поверхность волокнистой структуры).

В этой работе представлены результаты синтеза композитных волокон путем *in situ* осаждения активного слоя ферроцианида калия-никеля на поверхность модифицированных полиакрилонитрильных волокон; исследования химической стабильности синтезированных волокон в кислых и щелочных средах; изучения сорбции цезия (стабильного и радиоактивного ^{137}Cs) на синтезированные волокна из высокосолевых растворов в присутствии большого избытка конкурирующих ионов натрия и калия.

Методика эксперимента. В качестве исходных волокон для синтеза композитных волокон были выбраны модифицированные полиакрилонитрильные (ПАН) волокна с карбоксильными группами. Их синтез и свойства детально описаны в [7]. Осаждение слоя ферроцианида калия-никеля (К-Ni ФЦ) на поверхность исходных волокон проводилось *in situ* по разработанной нами методике [8].

Морфологию волокон до и после синтеза исследовали с помощью сканирующего электронного микроскопа Jeol JSM-6490 LV с энерго-дисперсионной приставкой INCA Wave (UK, Oxford), которую использовали для микроанализа. Перед исследованием образцы напыляли золотом.

Инфракрасные (ИК) спектры снимали на ИК-Фурье спектрометре Spectrum 100 (PerkinElmer) в режиме нарушенного полного внутреннего отражения.

Исследование сорбции как стабильного, так и радиоактивного цезия (^{137}Cs) на синтезированные волокна проводили в статических условиях. В первой серии экспериментов в ряд пробирок помещали синтезированные волокна (0,05 г), добавляли 15 мл раствора CsCl с начальной концентрацией стабильного цезия C_0 и выдерживали заданное время. Раствор отфильтровывали через бумажный фильтр “синяя лента” и определяли в нем равновесную концентрацию цезия C_p .

Концентрацию цезия определяли с помощью атомно-абсорбционного спектрофотометра (модель AA-8500, Nippon Jarrell Ash Co Ltd., Япония).

Адсорбцию (a_{Cs} , мг/г) рассчитывали по формуле

$$a_{\text{Cs}} = \frac{(C_0 - C_p) \cdot V}{W},$$

где C_0 , C_p — исходная и равновесная концентрации цезия в исследуемом растворе, соответственно, мг/л; V — объем раствора, л; W — масса адсорбента, г.

Эффективность адсорбции (ε , %), или степень извлечения цезия из раствора, определяли как

$$\varepsilon = \frac{(C_0 - C_p)}{C_0} \cdot 100.$$

Все используемые реагенты были марки “хч” или “осч”. Для приготовления растворов использовали дистиллированную воду.

Во второй серии экспериментов в исследуемый раствор вносили заданное количество радиоактивного цезия в виде раствора нитрата ^{137}Cs . После установления радиохимического равновесия (24 ч) в подготовленный раствор (15 мл) добавляли композитные волокна (0,05 г) и после сорбции (24 ч) в фильтрате определяли активность ^{137}Cs радиометрическим методом. Коэффициент распределения ^{137}Cs K_d (л/г) рассчитывали по формуле

$$K_d = \frac{(A_0 - A_p)}{A_p} \cdot \frac{V}{W},$$

где A_0 и A_p — исходная и равновесная активность радионуклида, соответственно, Бк.

Химическую стабильность композитных волокон определяли в кислых (pH ~2) и щелочных (pH ~12) растворах, которые готовили путем добавления нескольких капель концентрированной кислоты (HCl) или щелочи (NaOH) к исходному раствору хлорида цезия.

Результаты и обсуждения. Исходными волокнами для синтеза композитных волокон с *in situ* осажденным слоем ферроцианида калия-никеля служили модифицированные полиакрилонитрильные волокна с карбоксильными группами [7].

Известно, что полиакрилонитрил обладает химической стойкостью в разбавленных растворах кислот и щелочей, в широком перечне органических растворителей, в окислительных и восстановительных условиях, к тому же полиакрилонитрил может быть легко модифицирована с получением разнообразных ионообменных групп. Поэтому ПАН в виде гранул, пленок и волокон широко используется для синтеза разнообразных полимерных и композитных адсорбентов [4, 9, 10].

Микрофотографии, полученные с помощью сканирующего электронного микроскопа (СЭМ), выявили гладкую текстуру исходных ПАН волокон (рис. 1, а, б). Результаты микроанализа (рис. 1, в) в отмеченной точке (рис. 1, в) показали наличие в составе волокон, кроме основных элементов (C, N, O), характерных для ПАН, присутствие Ca и Mg.

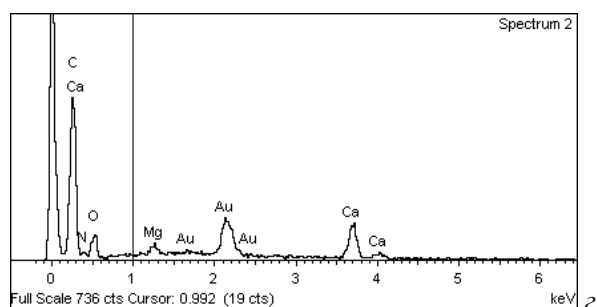
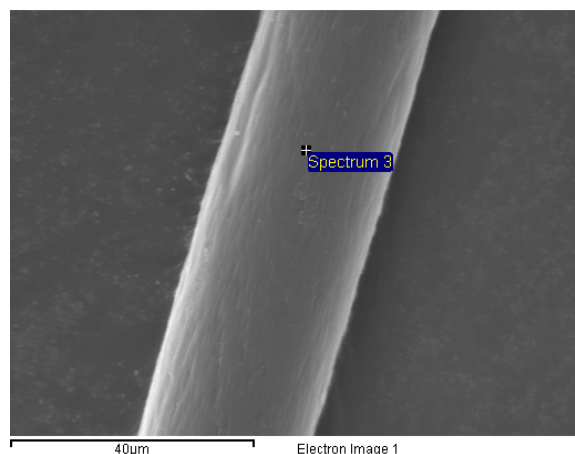
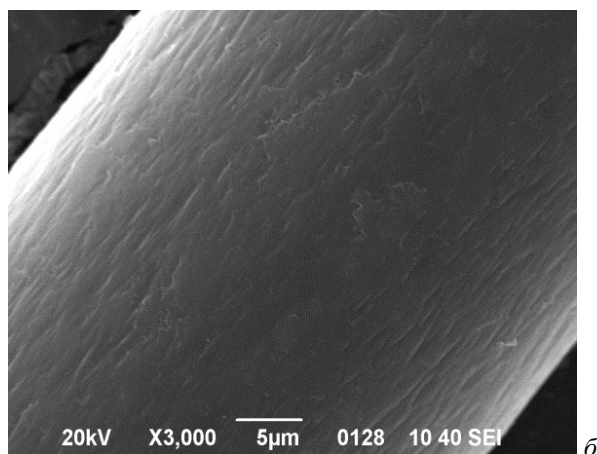
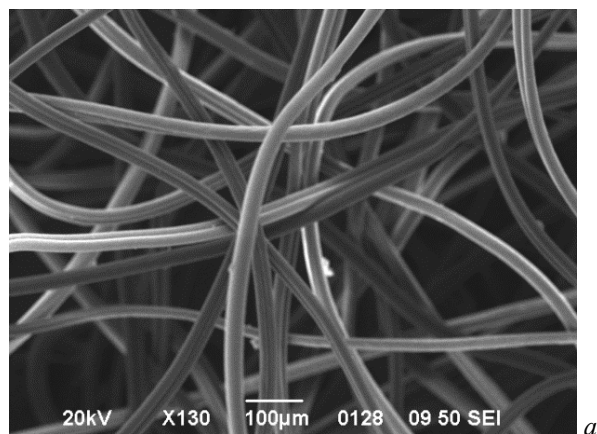


Рис. 1. Микрофотографии исходных полиакрилонитрильных волокон (а, б) и результаты микроанализа (в) в отмеченной точке (г)

После *in situ* осаждения слоя ферроцианида калия-никеля кремовый цвет исходных ПАН волокон изменился на оливковый. Результаты микроанализа (рис. 2, б) в отмеченной области (рис. 2, а) на поверхности волокна показали в осажденном слое присутствие элементов, соответствующих составу ферроцианида калия-никеля — С, О, N, Fe, K, Ni. На СЭМ-изображении композитного волокна видно, что ферроцианидный слой осаждается на поверхности волокон в виде плотного равномерного слоя (рис. 2, а).

Образование ферроцианидного слоя на поверхности волокон подтверждается также данными ИК-Фурье спектроскопии. В спектрах композитных волокон (рис. 3, 2) присутствует интенсивная полоса поглощения при волновом числе 2090 см^{-1} , соответствующая области валентных колебаний C-N группы, координированной с металлом указывает на наличие комплексного иона $[\text{Fe}(\text{CN})_6]^{4-}$.

Одной из основных проблем при синтезе композитных адсорбентов с ферроцианидной фазой является обеспечение механической (отсутствие дезинтеграции ферроцианидных частиц до коллоидного состояния) и химической (отсутствие растворения ферроцианидной фазы в агрессивных средах) стабильности композита. Для ферроцианидных композитов механическая и химическая стабильность, как правило, взаимосвязаны.

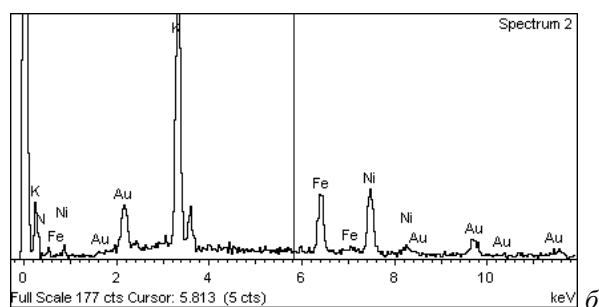
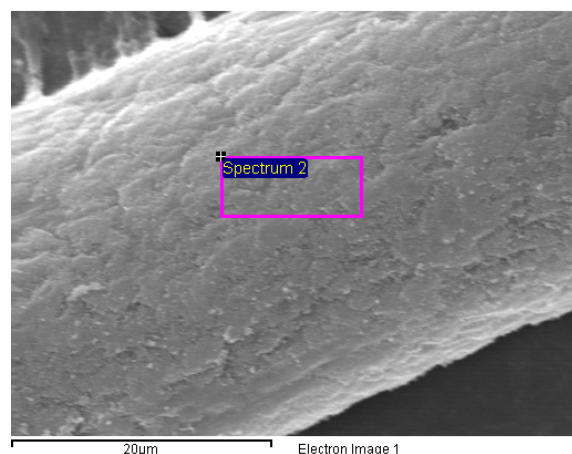


Рис. 2. Результаты микроанализа (б) и СЭМ-изображение выделенного участка (а) композитного волокна

В синтезированных нами композитных волокнах химическая связь между полимерной основой волокна и неорганической фазой осуществляется через карбоксильные группы, расположенные на поверхности исходных ПАН волокон [7, 8]. Такая связь должна придавать композитам высокую механическую и химическую стабильность.

Была исследована химическая стабильность синтезированных композитных волокон в кислых (pH ~2) и щелочных (pH ~12) растворах путем сопоставления результатов адсорбции после одно- и десятидневных адсорбционных экспериментов (рис. 4). Если композитные волокна являются химически нестабильными, то адсорбция после 10 дней их нахождения в агрессивной среде будет меньше однодневной адсорбции вследствие разложения ферроцианидного слоя и выделения ранее адсорбированного цезия в раствор. Поскольку адсорбция как в кислых, так и щелочных растворах после однодневных экспериментов практически не отличается от адсорбции после десятидневных экспериментов, то можно сделать вывод о хорошей химической стабильности синтезированных композитных волокон как в кислых, так и щелочных средах.

Механизм сорбции цезия нерастворимыми ферроцианидами обсуждался во многих публикациях. Полагают, что для ферроцианидов переходных металлов с общей формулой $M_{2n}^I M_{(2-n)}^{II} [Fe(CN)_6]$ адсорбция цезия происходит путем ионного обмена катиона M^I (K^+ , Na^+ , H^+ или NH_4^+) на цезий [3].

Нерастворимые ферроцианиды проявляют высокую селективность по отношению к ионам цезия. Ряд селективности имеет вид: $Cs^+ > Rb^+ > K^+ > NH_4^+ > Na^+ \approx H^+ > Li^+$ [3]. Это означает, что в мультикомпонентных растворах, содержащих наряду с цезием ионы щелочных металлов, ФЦ преимущественно извлекают ионы цезия.

Чтобы судить о способности синтезированного нами адсорбента селективно извлекать ионы цезия

из мультикомпонентных растворов, содержащих конкурирующие ионы калия и натрия, были проведены исследования по сорбции Cs из высоко-солевых растворов на основе рапы из лимана Куяльник (ЛК), Одесса.

Рапа ЛК имеет хлоридный натриево-магниевый состав. По результатам исследований рапы ЛК с 14 станций отбора проб, проведенных в 2005 году [12], ее основными составляющими являются следующие компоненты, мг/л: анионы Cl^- — 60 529...86 550, HCO_3^- — 229...337, SO_4^{2-} — 3 183...44 10; катионы $Na^+ + K^+$ — 22 951...34 644, Mg^{2+} — 4 957...7 470, Ca^{2+} — 1 425...2 012. Присутствуют также и другие микрокомпоненты, мг/л: бром — 200...800, фтор — 0,03...0,25, бор — 9,4...24,2; а также Pb, Cd, Cu, Zn, V, Cr, Hg, кремневая кислота, фенолы, гуминовые кислоты, жирные кислоты, полисахариды. Суммарная минерализация рапы — 94...132 г/л, pH — 7,2...7,8.

Были приготовлены три раствора (pH ~7) на основе рапы ЛК с разными концентрациями цезия и разными соотношениями цезия к сумме ионов натрия и калия, в которых были произведены измерения адсорбции a_{Cs} и эффективности адсорбции ϵ цезия на синтезированные композитные волокна из высоко-солевых растворов после 24 ч сорбции (рис. 5).

Видно, что с увеличением величины начальной концентрации цезия в растворе значение адсорбции возрастает (рис. 5, а), а эффективность адсорбции уменьшается (рис. 5, б). Так, из раствора с начальной концентрацией ионов цезия $C_0=89$ мг/л, которая в 1 330 раз меньше концентрации конкурирующих ионов натрия и калия, произошла практически полная (96 %) сорбция цезия, в то время как при $C_0=223$ мг/л эффективность адсорбции уменьшилась до 46 %. Такая тенденция интересна тем, что позволяет рассматривать синтезированные волокна перспективными для сорбции ^{137}Cs как из природных вод (особенно, морских), так и из низкоактивных ЖРО с высокой концентрацией конкурирующих щелочных ионов.

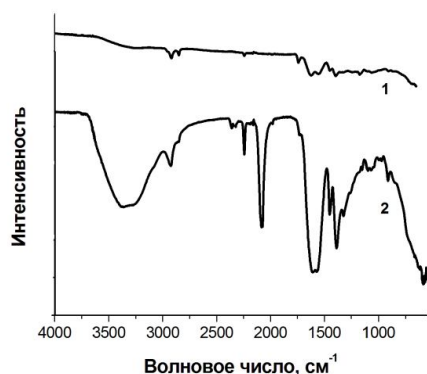


Рис. 3. ИК спектры исходных ПАН волокон (1) и композитных волокон с осажденным слоем К-Ni ФЦ (2)

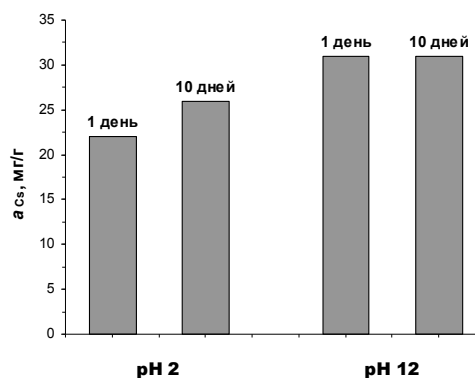
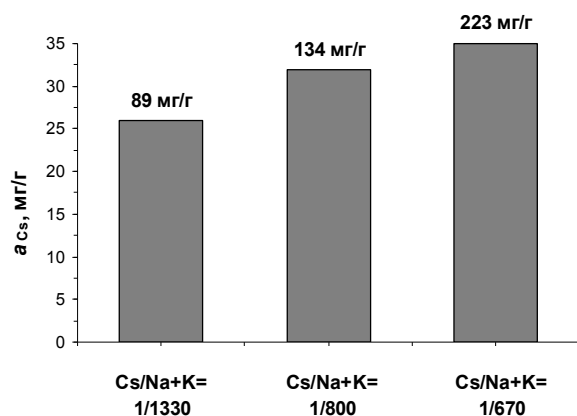
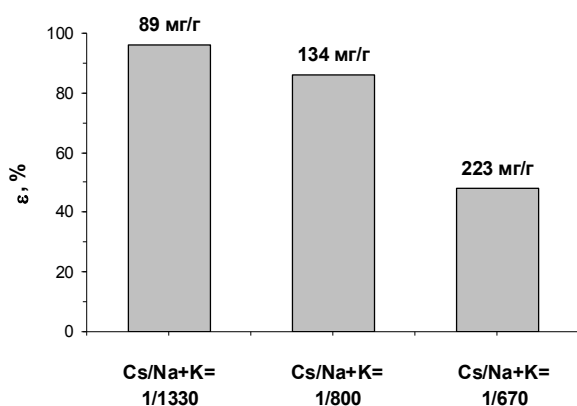


Рис. 4. Адсорбция цезия на синтезированные волокна из кислых и щелочных растворов после одно- и десятидневного экспериментов ($C_0=223$ мг/л, 23 °C, при периодическом встряхивании растворов)



a



б

Рис. 5. Адсорбція (а) і ефективність адсорбції (б) цезія на синтезовані композитні волокна із високосолевих розтворів на основі рапи ЛК

Для підтвердження цих висновків був проведений експеримент по сорбції радіонукліда ^{137}Cs на синтезовані композитні волокна. Активність вихідного розчину (15 мл) складала $1,35 \cdot 10^4$ Бк. Після адсорбції ^{137}Cs на синтезовані композитні волокна активність фільтрата знизилася до $2,75 \cdot 10^2$ Бк. Рассчитанные значения коэффициента распределения ($K_d=14,4$ л/г) и эффективности сорбции ($\varepsilon=98$ %) свидетельствуют о высокой эффективности использования синтезованных композитных волокон для адсорбции радионуклида ^{137}Cs из высокосолевых растворов.

Выводы

Рассмотрен перспективный метод синтеза новых композитных волокон путем *in situ* осаждения слоя ферроцианида калия-никеля на поверхность модифицированных полиакрилонитрильных волокон. Результаты электронно-микроскопического и инфракрасного исследований подтверждают формирование ферроцианидного слоя на поверхности волокон.

Композитные волокна показали высокую химическую стабильность как в кислых, так и щелочных растворах. Синтезированные волокна характеризуются высокой селективностью по отношению к ионам цезия в присутствии большого избытка конкурирующих ионов натрия и калия.

Синтезированные волокна могут быть рекомендованы для экспресс-определения радиоизотопов цезия в природных и промышленных водах, а также для очистки низкоактивных ЖРО с высоким содержанием конкурирующих ионов натрия и калия.

Список использованной литературы

1. Радіоекологічне вивчення водойм міської зони Києва / В. Г. Клепус, Ю. М. Ситник, О. Є. Каглян і др. // Наукові записки. Серія : біологія, спец. випуск : гідроекологія. — Тернопільський педуніверситет, 2001. — Т. 4, № 15. — С. 17—18.
2. Кузьменко М. І. Радіонукліди та їх екологічне значення у водоймах України / М. І. Кузьменко, Д. І. Гудков, І. В. Паньков // Наукові записки. Серія: біологія, спец. випуск: гідроекологія. — Тернопільський педуніверситет, 2001. — Т. 4, № 15. — С. 19—21.
3. Химия ферроцианидов / И. В. Тананаев, Г. Б. Сейфер, Ю. Я. Харитонов и др. — М. : Наука, 1971. — 320 с.
4. Šebesta F. Composite sorbents of inorganic ion-exchangers and polyacrylonitrile binding matrix I. Methods of modification of properties of inorganic ion-exchangers for application in column packed beds / F. Šebesta // J. Radioanal. Nucl. Chem. — 1997. — V. 220, № 1. — P. 77—88.
5. Ремез В. П. Целлюлозно-неорганические сорбенты в радиохимическом анализе. III. Концентрирование радиоцезия сорбентом АНФЕЖ / В. П. Ремез // Сорбц. хромат. процессы. — 2009. — Т. 9, № 6. — С. 783—788.
6. Remez V. P. The experience of using Anfezh sorbent for recovery of radioactive caesium from sea water / V. P. Remez, E. V. Zheltonozhko, Yu. A. Sapozhnikov // J. Radiation Protection Dosimetry. — 1998. — V. 75, No 1—4. — P. 77—78.
7. Исследование строения хелатных волокнистых ионитов методом ИК спектроскопии / В. И. Грачек, Г. Н. Лысенко, З. И. Акулич и др. // ЖОХ. — 2009. — V. 79, № 3. — С. 360—365.
8. Development of novel nanocomposite adsorbent based on potassium nickel hexacyanoferrate-loaded polypropylene fabric / Y. Bondar, S. Kuzenko, D.-H. Han et al. // Nanoscale Res. Lett. — 2014. — V. 9, Art. No. 180. — 6 p.
9. Šebesta F. Phase II Report on the Evaluation of Polyacrylonitrile (PAN) as a Binding Polymer for Absorbers Used to Treat Liquid Radioactive Wastes / F. Šebesta, J. John, A. Motl // SAND96-1088. — 1996.

10. Evaluation of AMP-PAN composite for adsorption of Cs^+ ions from aqueous solution using batch and fixed bed operations / A. Nilchi, R. Saberi, M. Moradi et al. // J. Radioanal. Nucl. Chem. — 2012. — V. 292, № 2. — P. 609—617.
11. *Накамото К.* Инфракрасные спектры неорганических и координационных соединений / К. Накамото. — М. : Мир, 1991. — 536 с.
12. Особенности ионно-солевого состава воды Куяльницкого лимана / А. А. Эннан, Г. Н. Шихалеева, С. К. Бабинец и др. // Вісник ОНУ. Хімія. — 2006. — Т. 11, № 1—2. — С. 67—74.

Получено 21.11.2014

УДК 544.582.2

*О. Б. Лысенко, Ю. Н. Демихов**ГУ “Институт геохимии окружающей среды НАН Украины”, г. Киев***ПРИМЕНЕНИЕ МАГНИТНОГО ИЗОТОПНОГО ЭФФЕКТА
ДЛЯ РАЗДЕЛЕНИЯ ИЗОТОПОВ УРАНА**

Исследовано влияние магнитного изотопного эффекта на реакции радикальных пар, содержащих радикал-ион UO_2^{2+} , что в дальнейшем может быть использовано в новом способе разделения изотопов урана в химических реакциях.

Ключевые слова: изотопные соотношения, тяжелые элементы, магнитный изотопный эффект, спиновые моменты, синглетные и триплетные состояния, спин-селективная химическая реакция, электрон-ядерное сверхтонкое взаимодействие, изотопы урана.

Статья посвящается памяти академика НАН Украины Э. В. Собоновича, крупного ученого, многолетнего научного руководителя этих работ

В различных отраслях человеческой деятельности находят применение моноизотопные или обогащенные одним изотопом препараты. Очень часто требуется обогащение плед нечетным изотопом, например, ^{13}C , ^{35}Cl , ^{37}Cl , ^{15}N , ^{235}U , ^{239}Pu и т. д. Наибольший практический интерес представляет плед изотопов урана, и именно для урана, являющегося основным компонентом ядерного топлива, остро стоит проблема очистки от четных изотопов ^{232}U , ^{234}U , ^{236}U , ^{238}U . Для изотопов урана ^{235}U и ^{238}U масс-зависимые методы изотопного разделения (центрифугирование, диффузия, аэродинамические сопла и т. п.) в настоящее время хорошо разработаны и позволяют достичь требуемых результатов. Для остальных членов пледы применения масс-зависимых методов изотопного разделения приводит к накоплению паразитных четных изотопов ^{232}U , ^{234}U , ^{236}U до недопустимо высоких концентраций. Именно это является одной из причин того, что отработанное ядерное топливо реакторов, ранее рассматривавшееся в США как потенциальное сырье, в настоящее время переведено в отходы и не планируется к переработке.

В этой статье авторы останавливаются на исследовании влияния масс-независимого магнитного изотопного эффекта (МИЭ) на реакции радикальных пар, содержащих радикал-ионы с тяжелым радикалом UO_2^+ , что в дальнейшем может быть использовано при решении практических задач — разработке новых способов разделения изотопов урана в химических реакциях за счет различия магнитных свойств изотопов. МИЭ на уране может быть положен в основу метода разделения изотопов урана-234, 235 и 238.

С 2002 года в ГУ “Институт геохимии окружающей среды НАН Украины” под руководством академика НАН Украины Эмлена Владимировича Собоновича начало активно развиваться новое направление ядерной химии, которое основано как на изучении фундаментальных свойств ядер

изотопов разной четности одного элемента, так и на особенностях их поведения в живых и неживых природных системах [1—4]. Одной из приоритетных задач, изучаемых ядерной химией, является исследование взаимосвязи между изменением структуры электронных оболочек атомов или молекул, с одной стороны, и различиями в фундаментальных свойствах четных и нечетных ядер изотопов, с другой. Различия, лежащие в основе этих фундаментальных параметров, влияют как на кинетику химических реакций молекул разного изотопного состава, так и на различие в энергетическом состоянии и ядерном магнетизме системы.

За последние 10 лет авторами были изучены особенности поведения плед изотопов H, C, Mg, Fe в биосистемах, что, совместно с изучением большого массива литературных данных об изотопах N, O, Zn, Hg, позволило установить различия в поведении изотопов этих элементов [5]. Эти различия, предположительно, связаны с четностью ядер изотопов, что обуславливает необходимость применения более строгого подхода к моделированию процессов фракционирования изотопов разной четности одного и того же элемента, т. к. данные, полученные для изотопов одной четности, могут оказаться нерепрезентативными для изотопов другой четности. Как литературные данные, так и результаты наших экспериментов показали, что процессы накопления четных и нечетных изотопов могут отклоняться от правила плед, суть которого заключается в закономерном изменении поведения изотопов химического элемента пропорционально их массам. Причем эти отклонения не зависят ни от степени стабильности химического элемента, ни от его концентрации. Таким образом, существующее на сегодняшний день положение об идентичности физических и химических свойств изотопов, согласно которому радиоактивные изотопы химического элемента ведут себя аналогично его стабильным изотопам, требует уточнения,

а именно: *радиоактивные изотопы одной четности ведут себя аналогично стабильным изотопам этой же четности* [6]. Так, в случае углерода, было показано, что четный радиоактивный изотоп углерода ^{14}C в окружающей среде ведет себя как стабильный изотоп ^{12}C , а, в случае водорода, тритий — как нечетный протий [7, 8]. Такие несоответствия, по мнению Э. В. Соботовича, не могут быть обусловлены только радиоактивностью отдельно взятых изотопов, а, вероятнее всего, обусловлены различиями в ядерных характеристиках их атомов.

Разделение изотопов урана в спин-селективных реакциях на основании МИЭ в течение более тридцати лет является актуальной задачей, при этом особый интерес представляет изотоп ^{235}U .

Теория атомного ядра, на которой базируются описания ядерных свойств изотопов, представляет собой едва ли не самую обширную область современной физики [9, 10]. Ядерные силы, удерживающие нуклоны в ядре, обязаны своим происхождением сильному взаимодействию, которое во много раз интенсивнее электростатических сил. Одной из основных характеристик ядерных сил является их независимость от зарядового состояния нуклонов, в результате которой взаимодействие двух протонов, двух нейтронов или нейтрона и протона одинаково, если одинаковы состояния относительного движения этих пар частиц и их спиновые состояния. Поэтому ядерные свойства нуклидов будут главным образом определяться числом нуклонов в ядре и сильно различаться в семействе изотопов, принадлежащем одному химическому элементу в отличие от физико-химических свойств, определяемых количеством электронов в атоме [11, 12].

Химическими реакциями управляет (т. е. разрешает или запрещает) энергия и угловой момент (спин) реагентов. Запрет по энергии не категоричен: если ее не хватает, то всегда есть обходной путь — туннелирование. Запрет по спину очень строгий, т. к. он следует из принципа Паули, разрешающий электронам двух атомов создавать химическую связь только в том случае, когда они находятся в синглетном спиновом состоянии и их спиновые моменты направлены противоположно. Изучением химических реакций, протекание которых определяются спиновыми состояниями реагентов, занимается спиновая химия, основанная на универсальном и фундаментальном принципе — любая химическая реакция разрешена лишь в том случае, если полные спины продуктов и реагентов совпадают. При отсутствии этого тождества реакция запрещена [13—15].

Магнитные взаимодействия, будучи пренебрежительно малыми, изменяют спины реагирующих молекул в предреакционном состоянии и превращают спин запрещенной реакции в спин разрешенной.

Открытие магнитного изотопного эффекта — крупное событие в современной химии, сравнимое

по своей значимости с открытием кинетического и термодинамического изотопных эффектов. Скорость спин-селективной химической реакции зависит от магнитного момента ядер реагентов и электрон-ядерного сверхтонкого взаимодействия (СТВ). В отличие от классического масс-зависящего изотопного эффекта, согласно которому разделяются легкие и тяжелые ядра, магнитный изотопный эффект помогает сортировать магнитные и немагнитные ядра.

Ядерно-спиновая сортировка впервые была установлена в 1976 году А. Л. Бучаченко с сотрудниками [16]. Ядерно-спиновая селекция происходит в триплетных парах радикалов, в результате чего обеспечивается разделение магнитных и немагнитных изотопов для всех ядер, включая и уран. На сегодняшний день МИЭ обнаружен у 10 химических элементов: H, N, O, Mg, S, Si, Ge, Sn, Hg и U [17].

Магнитный изотопный эффект в радикальных реакциях возникает из-за влияния магнитного момента ядер на динамику синглет-триплетных переходов (СТ) в радикальных парах (РП). В РП одним из механизмов СТ переходов является сверхтонкое взаимодействие (СТВ) неспаренных электронов радикалов с магнитными ядрами и если СТВ вносит заметный вклад в спиновую динамику РП, то изотопным замещением можно на нее влиять, т. к. разные изотопы характеризуются разным СТВ. Например, при замещении водорода дейтерием масштаб СТВ уменьшается примерно в 4 раза. Таким образом, МИЭ возникает из-за того, что в радикальных парах с разным изотопным составом эффективность СТ переходов индуцируемых СТВ с магнитными ядрами различаются.

МИЭ представляет большой интерес с точки зрения изотопного разделения тяжелых элементов, так как изотопный эффект, обусловленный различием масс изотопов, очень мал. Поэтому МИЭ, в принципе, может быть использован для разработки технологически конкурентоспособных методов изотопного разделения в случае тяжелых элементов. МИЭ также может найти применение для разделения ядерных изомеров. Были также высказаны интересные предположения о возможности объяснить в рамках МИЭ некоторые аномалии в распределении изотопов в космосе и геологических объектах [17].

На сегодняшний день большинство вопросов, возникающих при изучении спиновой природы возбужденного состояния иона уранила (UO_2^{2+}), его магнитных свойств, влияния магнитного момента ядра урана на спиновое поведение радикальных пар с участием парамагнитного иона уранила, по-прежнему остаются актуальными.

Методика эксперимента. Для изучения МИЭ в реакции фотовосстановления уранил-нитрата *p*-метоксифенолом были взяты исходные образцы,

обедненные делящимся изотопом — ураном-235 ($^{235}\text{U} / ^{238}\text{U}=0,00455$), в отличие от работ А. Л. Бучаченко, где был использован образец уранил-нитрата, обогащенный ураном-235 ($^{235}\text{U} / ^{238}\text{U}=8,93$) [18].

Для исследования готовились тяжеловодные растворы следующих концентраций: $[\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2]=8 \cdot 10^{-3} \text{ N}$, $[p\text{-метоксифенол}]=5 \cdot 10^{-2} \text{ N}$, $[\text{NH}_4\text{F}]=1 \text{ N}$ и $[\text{H}_2\text{SO}_4]=0,25 \text{ N}$. Соль уранил-нитрата получали путем растворения обедненного урана в концентрированной азотной кислоте с последующим ее упариванием до образования сухого остатка.

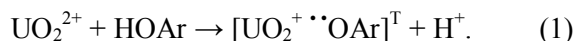
Выбор тяжелой воды в качестве среды для проведения эксперимента был обусловлен тем фактом, что энергии связи H—O и D—O несколько отличаются между собой. Энергия разрыва связи D_2O составляет 508,2 кДж/моль, а H_2O — 498,7 кДж/моль. Поэтому для уменьшения вероятности быстрого обратного протонирования новообразованной триплетной пары, которая еще не успела претерпеть триплет-синглетную конверсию, в качестве среды проведения эксперимента была выбрана D_2O .

Не исключено, что разделение изотопов урана методом, основанным на магнитном изотопном эффекте, возможно и без участия D_2O [19].

Приготовленные растворы смешивали в равной пропорции и помещали в кварцевый сосуд. Затем раствор обескислороживали путем продувки аргоном и герметично закрывали сосуд.

Далее растворы подвергались облучению светом полного спектра ультрафиолетовой лампы ДРШ-500 (260...600 нм). По мере облучения в растворе появлялась взвесь UF_4 . Облучение прекращали, не доводя реакцию образования UF_4 до конца. После прекращения облучения суспензию декантировали при помощи центрифуги. В отделенном осадке UF_4 и регенерированном уранил-нитрате измеряли изотопные соотношения урана. Соотношения изотопов урана измеряли на твердофазном масс-спектрометре МИ-1201.

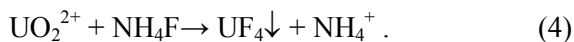
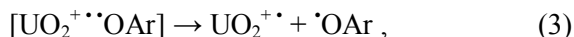
Обсуждение результатов эксперимента. При облучении исследуемых растворов и фотовозбуждении уранила (UO_2^{2+}) происходит депротонирование p -метоксифенола. При этом возникает радикальная пара, которая находится в триплетном состоянии [18]:



Сравнение эффективности методов разделения урана

Метод разделения	Коэффициент обогащения	Ссылка
Химическое разделение	1,00130...1,00725	[20—22]
Лазерное разделение	1,01	[23, 24]
Газовая диффузия	1,00429	[25]
Центрифугирование	1,026...1,233	[25]
Магнитный изотопный эффект	1,040	Данное исследование

Далее радикальная пара может либо регенерировать (2), либо диспропорционировать (3):



Регенерации уранила (2) предшествует триплет-синглетная конверсия пары. Именно на этой стадии уранил обогащается изотопом ^{235}U , а ураноил ($\text{UO}_2^{+ \cdot}$) в ходе реакции диссоциации обедняется этим изотопом (3). Конечным продуктом ураноила в ходе реакций диспропорционирования и взаимодействия с фторид-ионами становится UF_4 (4).

Масс-спектрометрические измерения (более 30 по каждому компоненту) изотопного состава UF_4 ($^{235}\text{U} / ^{238}\text{U}=0,00446$) и регенерированного уранила ($^{235}\text{U} / ^{238}\text{U}=0,00464$) показали, что эффективность разделения $^{235}\text{U} / ^{238}\text{U}$ за один цикл составляет 1,040.

Расчет коэффициента обогащения за один цикл K проводился следующим образом:

$$K = [\lambda_p / (1 - \lambda_p)] / [\lambda_o / (1 - \lambda_o)],$$

где λ_o , λ_p — степень обогащения осадка UF_4 и регенерированного уранила в растворе, соответственно.

Степень обогащения λ определяется по формуле

$$\lambda = n(^{235}\text{U}) / [n(^{238}\text{U}) + n(^{235}\text{U})] \approx n(^{235}\text{U}) / n(^{238}\text{U}),$$

где $n(^{235}\text{U})$, $n(^{238}\text{U})$ — количество атомов изотопов ^{235}U и ^{238}U , соответственно.

Среди существующих методов разделения (см. табл.) метод, основанный на магнитном изотопном эффекте, оказался одним из самых эффективных.

В настоящее время авторы продолжают работы по изучению фракционирования изотопов урана в его окислах (уранинит и настуран) природного изотопного состава Желтореченского железуранового месторождения.

Выводы

1. Проведенные нами исследования показали, что фракционирование изотопов урана с помощью МИЭ возможно как для обогащенных, так и для обедненных делящимся ураном-235 образцов. Причем в последнем случае открываются новые перспективы практического использования обедненного урана.

2. Использование фракционирования изотопов урана с помощью МИЭ при дальнейшем его изучении и разработке соответствующих технологий может стать перспективным методом для получения ядерного топлива из накопившихся отходов, что будет способствовать уменьшению как объема накопленных отходов, так и экономических затрат на их захоронение.

3. Большинство естественных и искусственных долгоживущих изотопов урана, содержащихся в отработанном ядерном топливе, представлены четными изотопами (уран-232, 234, 236), которые ухудшают энергетические характеристики ядерного топлива. Поскольку названные изотопы — четные, можно предположить, что МИЭ позволит произвести их успешное отделение на этапе обогащения урана-235, а, следовательно, МИЭ, основанный на масс-независимом разделении изотопов, может

решить проблему накопления сопутствующих четных изотопов (уран-236, 234, 232) при обогащении урана для получения ядерного топлива.

4. МИЭ может стать перспективным методом обогащения урана ядерного топлива, который не сопровождается накоплением легких изотопов урана (уран-236, 234, 232), являющихся активными поглотителями тепловых нейтронов, что позволит повысить качественные характеристики топлива и улучшить экономические показатели реактора.

Авторы также выражают благодарность первооткрывателю МИЭ А. Л. Бучаченко за внимание к этой работе.

Список использованной литературы

1. *Sobotovich E. V. Man and the Geosphere* / E. V. Sobotovich, I. V. Florinsky, O. B. Lysenko, D. M. Grodzinsky. — New York : Nova Science Publishers, 2010. — P. 33—68.
2. Естественное внутримолекулярное фракционирование стабильных изотопов биогенных элементов в организме человека / О. В. Карпушко, О. В. Лысенко, Н. А. Скульский, Э. В. Собонович, В. Б. Шатило // Журнал АМН Украины. — Киев, 2009. — Т. 15, вып. 4. — С. 631—651.
3. Изотопная информация о функциональном состоянии организма как потенциальная основа для создания доклинических методов диагностики. / О. В. Карпушко, О. В. Лысенко, Н. А. Скульский, Э. В. Собонович, В. Б. Шатило // Вестник Санкт-Петербургской медицинской академии им. И.И. Мечникова. — Санкт-Петербург, 2009. — № 211 (31). — С. 211—217.
4. *Демихов Ю. Н.* Влияние сорбции на изотопный состав воды флюида газовой-жидких включений / Ю. Н. Демихов // XIX Симпозиум по геохимии изотопов им. акад. Виноградова. — М. : Акварель, 2010. — С. 94—96.
5. *Собонович Э. В.* Геохимия стабильных изотопов некоторых биогенных элементов в биосфере / Э. В. Собонович, О. В. Лысенко, Ю. Н. Демихов, Н. А. Скульский // Збірник наукових праць ДУ “ІГНС НАН України”. — Киев, 2013. — Вип. 22. — С. 43—68.
6. *Собонович Э. В.* Триады изотопов водорода и углерода в природных системах / Э. В. Собонович, Ю. Н. Демихов, О. В. Лысенко, Н. А. Скульский // Седьмая Российская конференция по радиохимии “Радиохимия 2012” : Тезисы докладов, г. Дмитровград, 15—19 октября 2012 г. — Дмитровград : ООО “ВДВ “ПАК”, 2012. — С. 349.
7. *Скульский Н. А.* Особенности поведения стабильных и радиоактивных изотопов водорода и углерода в биологических системах / Н. А. Скульский, О. В. Лысенко, Ю. Н. Демихов, Э. В. Собонович // Высокие технологии, фундаментальные и прикладные исследования в физиологии и медицине. — Санкт-Петербург, 2010. — Т. 4. — С. 154—161.
8. *Скульский Н. А.* Фракционирование триады изотопов водорода : теория, эксперимент, перспективы / Н. А. Скульский, О. В. Лысенко, Ю. Н. Демихов, Э. В. Собонович // Збірник наукових праць ДУ “ІГНС НАН України”. — Киев, 2011. — Вип. 19. — С. 77—86.
9. *Семенов И. П.* Строение и систематика атомных ядер / И. П. Семенов. — М. : Наука, 1990. — 110 с.
10. *Бор О.* Структура атомного ядра : Т. 1 / О. Бор, Б. Моттельсен. — М. : Мир, 1971. — 456 с.
11. *Горбачев В. М.* Основные характеристики изотопов тяжелых элементов : 2-е изд. / В. М. Горбачев, Ю. С. Замятина, А. А. Лобов. — М. : Атомиздат, 1975. — 207 с.
12. *Селигман Г.* Изотопы в повседневной жизни / Г. Селигман. — МАГАТЭ, 1991. — 136 с.
13. *Бучаченко А. Л.* Магнитные и спиновые эффекты в химических реакциях / А. Л. Бучаченко, Р. З. Сагдеев, К. М. Салихов. — Новосибирск : Наука, 1978. — 296 с.
14. *Salikhov K. M.* Spin polarization and magnetic effects in radical reactions / K. M. Salikhov, Yu. N. Molin, R. Z. Sagdeev, A. L. Buchachenko. — Amsterdam : Elsevier, 1984. — 419 p.
15. Изотопное обогащение, вызванное магнитными взаимодействиями в химических реакциях / А. Л. Бучаченко, Е. М. Галимов, В. В. Ершов, Г. А. Никифоров, А. Д. Першин // ДАН СССР. — 1976. — Т. 228. — С. 379—381.
16. *Бучаченко А. Л.* Магнитные эффекты в реакциях фотовосстановления солей уранила / А. Л. Бучаченко, И. В. Худяков // XIV Менделеевский съезд по общей и прикладной химии : Рефераты докладов и сообщений. — М. : Наука, 1989. — Т. 1. — С. 40
17. *Бучаченко А. Л.* Новая изотопия в химии и биохимии / А. Л. Бучаченко. — М. : Наука, 2007. — 190 с.
18. *Бучаченко А. Л.* Магнитный изотопный эффект в фотохимических реакциях восстановления нитрата уранила / А. Л. Бучаченко, И. В. Худяков, Е. С. Климчук, Н. А. Голубкова // Известия АН СССР. Сер. Хим. — 1990. — № 8. — С. 1902—1903.
19. *Лысенко О. Б.* Роль магнитного эффекта при фракционировании изотопов урана / О. В. Лысенко, Ю. Н. Демихов, Н. А. Скульский, Э. В. Собонович // Химическая физика. — 2014. — Т. 33, № 12. — С. 1—4.
20. *Glueckauf K.* Theory of chromatography. VIII. The separation of lithium isotopes by ion exchange and of neon isotopes by low-temperature adsorption columns / E. Glueckauf, K. H. Barker, G. P. Kitt // Disc. Faraday Soc. — 1949. — V. 7. — P. 199—213.
21. Isotope exchange process : Pat. USA 2787587 (1957). Author : R. W. Woodard.
22. Способ химического разделения изотопов урана : Пат. РФ 2120329 (1998). Авторы : А. Н. Жиганов,

- В. М. Кондаков, В. М. Короткевич, А. С. Рябов, Е. Н. Семенов, С. Н. Круглов.
23. Сазыкин А. А. Методы разделения изотопов урана / А. А. Сазыкин, М. В. Веселова, Ю. В. Смирнов, И. Д. Соколова // Атомная техника за рубежом. — 1977. — № 3. — С. 19—28.
24. Орлов А. А. Газофазные методы разделения / А. А. Орлов. — Томск : Изд-во Томского политехнического университета, 2009. — 286 с.
25. Золотарев В. С. Изотопов разделение / В. С. Золотарев // Большая Советская Энциклопедия : изд. 3-е. — М. : “Советская Энциклопедия”, 1972. — Т.10. — С. 107—109.

Получено 20.11.2014

УДК 621.039[7...14+733/736]

В. Г. Іванець, В. М. Корякін, О. В. Гайдін

ТОВ "НВО "Енергохім", г. Киев

**ДО ПИТАННЯ ПЕРЕРОБКИ РІДКИХ РАДІОАКТИВНИХ ВІДХОДІВ
ФРАКЦІЙНИМ ПОДІЛОМ КОМПОНЕНТІВ**

На АЕС України сумарно накопичено більше 33 тис. м³ рідких радіоактивних відходів (РРВ) різних категорій активності. Відомі методи переробки осадів з ємностей тимчасового зберігання РРВ не можуть знайти широкого застосування у зв'язку з низькою технологічною та економічною ефективністю, а також через відсутність сховищ для кінцевого продукту, що має більший об'єм порівняно з вихідними РРВ. Запропоновано проводити поділ компонентів попередньо очищених РРВ та їх подальшу переробку шляхом періодичного порційного пропускання через шар тонко-дисперсного адсорбенту в потоці оборотного елюенту. Цей метод дозволить суттєво зменшити об'єм радіоактивних відходів (РАВ) та виділити цінні нерадіоактивні компоненти у чистому вигляді.

Ключевые слова: рідкі радіоактивні відходи, переробка, фракційний поділ, адсорбент.

У наш час проблемним питанням функціонування АЕС є подовження строків використання ємностей тимчасового зберігання рідких радіоактивних відходів, оскільки в них накопичений великий об'єм РРВ з осадами (до 70 % заповнення) у вигляді:

кубових залишків (КЗ), що являють собою закристалізовані солі з насиченим розчином над ними;

відпрацьованих фільтруючих матеріалів (ВФМ) у вигляді водних сумішей іонообмінних сорбентів (ІОС) та сорбентів типу активованого вугілля БАУ;

злежаних шламів та/або шламових пульп (ШЛА).

Станом на 31.12.12 на АЕС України було накопичено (м³): кубових залишків — 23 828, ВФМ та шламів — 1 411, сольового плаву — 7 100. Сумарно — більше 33 тис. м³ РРВ різних категорій активності [1].

Відомі методи переробки таких осадів з ємностей тимчасового зберігання РРВ не можуть знайти широкого застосування у зв'язку з низькою технологічною та економічною ефективністю, а також через відсутність сховищ для кінцевого продукту, що має більший об'єм порівняно з вихідними РРВ. Змінити ситуацію, що склалася, може розробка і впровадження технології та обладнання для комплексної переробки накопичених в ємностях тимчасового зберігання (КЗ, ВФМ та ШЛА) РРВ, які при мінімальних фінансових витратах дозволять суттєво зменшити об'єми твердих радіоактивних відходів (ТРВ), що утворюються в результаті кондиціонування РРВ.

У [2] запропоновано метод очищення низькоактивних радіоактивних розчинів з отриманням мінімального об'єму вторинних відходів при практично повному очищенні розчину від урану, плутонію та трансуранових елементів. При цьому використовували плоскорамний мембранний апарат з тангенціальною подачею розчину і його циркуляцією. Зібрану суспензію концентрату піддавали термообробці у дві стадії, першу стадію проводили

при 120—180 °С до досягнення концентрації завислих речовин 150—300 г/л. Другу стадію проводили при температурі 250—300 °С до досягнення залишкової вологості концентрату не більше 5 мас. %. Сорбційне доочищення фільтрату здійснювали шляхом пропускання через високоосновну аніонообмінну смолу. Ступінь концентрування РРВ таким способом досягає 18 200 разів, а питома активність фільтрату після колонки складає близько 0,5 Бк/л.

У відомій технології переробки РРВ [3] запропоновано відстоювати вихідний потік радіоактивних відходів з одержанням надосадового розчину та шламу. Надосадову суміш освітлюють на механічному фільтрі, отриманий фільтрат піддають двостадійному глибокому знесоленню. Перша стадія включає зворотній осмос з отриманням потоків проміжного концентрату і дезактивованого розчину. Перед відстоюванням РРВ піддають попередній фільтрації на фільтрах із завантаженням сипрону і гранульованого поліпропілену для відокремлення мастил, нафтопродуктів і альфа-радіонуклідів від рідкої фази РРВ. Після відстоювання надосадову рідину піддають послідовній механічній фільтрації на піщаному і вугільному фільтрах, з отриманням фільтрату, який піддають глибокому знесоленню зворотним осмосом. Після першої стадії дезактивований розчин піддають іоноселективній сорбції, а потім коригують рН на вапняковому фільтрі. На другій стадії глибокого знесолення проміжний концентрат піддають доконцентруванню зворотним осмосом з отриманням концентрату з солевмістом 100—150 г/л, який направляють на подальше кондиціонування, а перміат направляють знову на першу стадію глибокого знесолення. В результаті кінцевий розчин має питому активність по β-радіонуклідам (⁹⁰Sr) — 7,0 Бк/л, по α-радіонуклідам (²³⁹Pu) — 0,18 Бк/л; питома активність по ¹³⁷Cs складає 0,02 Бк/л, концентрація зависів — 1 мг/л, поверхнево-активних речовин (ПАР) — 0,06 мг/л, нафтопродуктів — 0,03 мг/л.

Ще один підхід [4] до переробки мало- і середньомінералізованих низькоактивних рідких відходів включає попередню очистку РРВ на механічних і ультрафільтрах з накопиченням попередньо очищених РРВ у проміжній ємності, знесолення попередньо очищених РРВ за допомогою зворотно-осмотичних фільтрів, поділ потоків на виходах зворотно-осмотичних фільтрів на фільтрат і концентрат з поверненням концентрату в проміжну ємність, доочищення фільтрату на іонообмінних фільтрах і накопичення очищеної води в ємності, контроль солевмісту концентрату і фільтрату на виходах зворотно-осмотичного модуля і солевмісту фільтрату на іонообмінних фільтрах. При цьому після розділення потоків залежно від солевмісту фільтрату на виході зворотно-осмотичних фільтрів фільтрат направляють: при солевмісті менше допустимого значення — на іонообмінні фільтри, при солевмісті більше допустимого значення — в другу проміжну ємність, а при досягненні в першій проміжній ємності достатнього значення солевмісту концентрат РРВ направляють на цементування. Допустимим значенням для фільтрату зворотно-осмотичних фільтрів є солевміст не більше 0,2 г/л, достатнім значенням для концентрату зворотно-осмотичного фільтра — солевміст не менше 50 г/л. Солевміст РРВ на вході зворотно-осмотичних фільтрів контролюють за допомогою кондуктометрів. При досягненні концентрацій солей в РРВ 5—10 г/л їх розбавляють фільтратом з виходу зворотно-осмотичних фільтрів за певним співвідношенням.

Проте вищевказані методи характеризуються недостатньо високою селективністю вилучення радіоактивних компонентів та утворенням великого обсягу ТРВ. Крім того відсутня можливість виділення цінних нерадіоактивних компонентів у чистому вигляді.

Авторами запропоновано проводити поділ компонентів попередньо очищених РРВ та їх подальшу переробку шляхом періодичного порційного пропускання через шар тонко-дисперсного адсорбенту в потоці оборотного елюенту [5]. В шарі адсорбенту компоненти РРВ перерозподіляються на фракції окремих радіоактивних компонентів, сумішей радіоактивних та нерадіоактивних компонентів, окремих нерадіоактивних компонентів і фракції сумішей нерадіоактивних компонентів. Після розділення компонентів РРВ радіоактивні компоненти готують до тривалого зберігання, суміші радіоактивних та нерадіоактивних компонентів і суміші нерадіоактивних компонентів піддають доочищенню шляхом повторного перерозподілу в шарі тонкодисперсного адсорбенту, а з окремих нерадіоактивних компонентів одержують товарні продукти. Радіоактивні компоненти готують до тривалого зберігання шляхом упарювання під вакуумом до одержання сухого залишку. Перерозподіл компонентів РРВ в шарі тонкодисперсного адсорбенту покращується за рахунок прикладання під час процесу розділення постійного електричного поля, вектор якого спрямований в напрямку або проти руху потоку оборотного елюенту.

Принципова схема розділення РРВ фракційним поділом компонентів зображена на рис. 1. Розчин, що містить в собі, наприклад, десять компонентів: чотири радіоактивних компоненти (рис. 1, 1, 6, 8, 10) і шість нерадіоактивних (рис. 1, 2—5, 7, 9). При перерозподілі компонентів такого розчину в шарі тонкодисперсного адсорбенту утворюються 12 фракцій (окрім фракції оборотного елюенту — 0): фракція 1 — радіоактивний компонент 1; фракція 2 — частина нерадіоактивного компонента 2; фракція 3 — суміш нерадіоактивних компонентів 2 і 3; фракція 4 — частина нерадіоактивного компонента 3; фракція 5 — суміш нерадіоактивних компонентів 4 і 5;

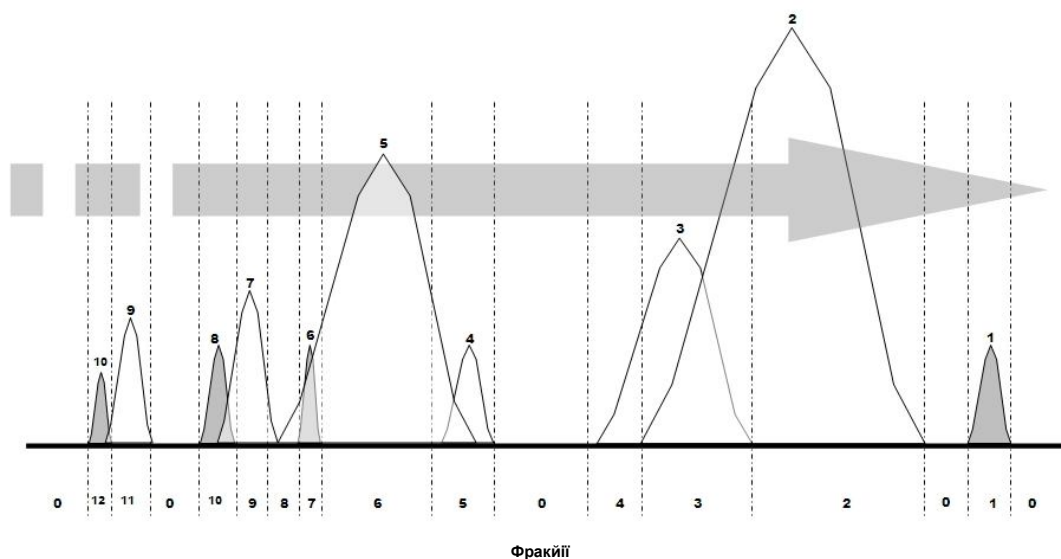


Рис. 1. Принципова схема розділення РРВ фракційним поділом компонентів у шарі тонкодисперсного адсорбенту

фракція 6 — частина нерадіоактивного компонента 5; фракція 7 — суміш нерадіоактивного компонента 5 і радіоактивного компонента 6; фракція 8 — суміш нерадіоактивних компонентів 5 і 7; фракція 9 — частина нерадіоактивного компонента 7; фракція 10 — суміш нерадіоактивного компонента 7 і радіоактивного компонента 8; фракція 11 — частина нерадіоактивного компонента 9; фракція 12 — суміш нерадіоактивного компонента 9 і радіоактивного компонента 10.

Висновки

Така принципова схема переробки РРВ забезпечить максимально можливий ступінь вилучення радіоактивних компонентів, що в свою чергу призведе до утворення найменш можливого обсягу залишкових ТРВ, що направляються на довгострокове зберігання. Крім того, значна частина нерадіоактивних компонентів РРВ буде розділена до стану готових товарних продуктів.

Список використаної літератури

1. Поводження з радіоактивними відходами при експлуатації АЕС ДП НАЕК “Енергоатом”: Звіт за 2012 р. — Київ, 2013. — 63 с.
2. Способ очистки низкоактивных растворов: Патент RU 2301466 С1. МПК G21F9/06 (2006.01). Авторы: Баторшин Г. Ш., Рябов Б. И., Елсуков С. Н., Пристинский Ю. Е., Гужавин В. И., Ровный С. И., Глаголенко Ю. В., Гелис В. М., Милютин В. В.
3. Способ переработки жидких радиоактивных отходов: Патент RU 2342720 С1. МПК G21F9/06 (2006.01). Авторы: Дмитриев С. А., Федоров Д. А., Савкин А. Е., Карлин Ю. В.
4. Способ переработки мало- и среднeminерализованных низкоактивных жидких отходов: Патент RU 2002102107 А. МПК 7 G21F9/06. Авторы: Епимахов В. М., Смирнов В. Д., Олейник М. С., Глушков С. В., Пашенко С. В., Прохоркин С. В., Вилков Н. Я., Ильин В. Г.
5. Установка для переработки рідких радіоактивних відходів із ємностей тимчасового зберігання: Патент UA 90917 U. МПК (2014.1) G21F 9/04. Авторы: Корякін В. М., Гайдін О. В., Іванець В. Г., Близнюкова Л. В.

Отримано 30.10.2014

Реферати опублікованих статей / Summaries

УДК/UDC 621.039.003

О. М. Масько, О. А. Пуртов

Современная практика выполнения оценок затрат на снятие с эксплуатации энергоблоков АЭС

В огляді представлено результати аналізу сучасної практики виконання оцінок витрат на зняття з експлуатації енергоблоків АЕС з різними типами реакторів. Показано інтервали оцінок витрат на зняття з експлуатації енергоблоків з реакторами типу PWR, BWR, AP1000 і розглянуто основні фактори, що впливають на розміри витрат.

O. Masko, O. Purtov

Modern practice of cost estimates for the NPP units decommissioning

The results of analysis of current practices of cost estimates for decommissioning of nuclear power units with different reactor types present is reviewed. Cost estimates intervals are shown for decommissioning of units with PWR, BWR, and AP1000 reactors and the main factors influencing the cost amount are analyzed.

УДК/UDC 621.311.25:621.039.58

С. В. Барбашев, Г. В. Лисиченко, О. О. Попов

Розширення функціональних можливостей радіоекологічного моніторингу природного середовища в районах розташування АЕС щодо прийняття управлінських рішень

Розглянуто основні завдання комплексного радіоекологічного моніторингу району розташування АЕС. Показано, що для того, щоб перетворити систему моніторингу з інформаційної в управлінську, тобто розширити її функціональні можливості, треба включити до її складу аналітичну інформаційно-експертну систему оцінки екологічного впливу АЕС на навколишнє середовище (ЕкоІЕС), яка призначена для накопичення, збереження, систематизації, аналізу, обміну та відображення даних комплексного радіоекологічного моніторингу / контролю в зонах спостереження АЕС, що забезпечить підтримку прийняття рішень щодо екологічної безпеки на території впливу АЕС. Наводиться варіант концепції створення ЕкоІЕС, який враховує державні та європейські норми щодо інформатизації систем моніторингу об'єктів потенційної небезпеки.

S. Barbashev, V. Lysychenko, A. Popov

Expanding the functionality of radiological monitoring of the environment around nuclear power plants for decision-making purposes

The main tasks of comprehensive radiological monitoring in the areas of NPP location are considered. It is shown that in order to transform an informational monitoring system into a management system, i. e. to expand its functionality it is necessary to incorporate in it an analytical expert subsystem to assess impact of a nuclear power plant on the environment (EkoIES), which is designed to collect, preserve, organize, analyze, share and map the data of comprehensive radiological monitoring / control in the monitoring areas of nuclear power plants. This will provide support in making decisions concerning the safety of the environment in the area of the NPP impact. It is presented a version of a concept of EkoIES creation, taking into account both National and European standards on informatization of monitoring of the potentially hazardous objects.

УДК/UDC 621.039

О. О. Ключников, В. І. Скалозубов, Т. Н. Габлая, В. М. Ващенко, І. Л. Козлов, Т. В. Герасименко, А. А. Гудима, К. В. Скалозубов

Про необхідність удосконалення основних вимог безпеки атомних станцій

На підставі уроків аварії на АЕС Fukushima Daiichi сформульовано пропозиції з удосконалення основних вимог безпеки атомних станцій України щодо класифікації аварій, імовірнісних та детерміністських критеріїв безпеки, вимог до методів і розрахункових засобів моделювання аварійних процесів, а також керування важкими аваріями.

O. Klyuchnykov, V. Skalozubov, T. Gablaya, V. Vascshenko, I. Kozlov, T. Gerasimenko, A. Hudyma, K. Skalozubov

On the necessity to enhance general safety requirements for nuclear power plants

Based on the lessons learned of the accident at Fukushima Daiichi nuclear power plant it is proposed to enhance the General Safety Requirements for Nuclear Power Plants in Ukraine concerning the classification of emergencies, deterministic vs. probabilistic safety criteria, and requirements to computer modeling tools and guidelines for severe accident management.

УДК/UDC 621.039.587/.588

С. В. Васильченко, І. Л. Козлов, В. Ю. Кочнєва, В. І. Скалозубов

Про необхідність удосконалення методів кваліфікації швидкодіючого запірно-відсічного клапана на воду / пароводяне середовище

Проведено аналіз результатів кваліфікації швидкодіючого запірно-відсічного клапана (ШЗВК) на воду / пароводяне середовище для малосерійних енергоблоків із ВВЕР-1000. Показано, що кваліфікація ШЗВК на воді для малосерійних ВВЕР-1000 проведена недостатньо обґрунтовано і не може бути адаптована для серійних ВВЕР-1000. Кваліфікація ШЗВК на воді повинна бути проведена також для "глибокопоzapроектих" аварій, враховуючи можливі помилки персоналу та багаточисельні відмови на базі достатньо обґрунтованих критеріїв кваліфікації.

S. Vasilchenko, I. Kozlov, V. Kochnyeva, V. Skalozubov

On the need to improve methods of qualification of main steam isolation valve for water / steam-water medium

The results of the qualification of main steam isolation valve (MSIV) for water / steam-water medium have been analyzed taking into consideration the "small series" WWER-1000 units. This analysis demonstrates that qualification of MSIV for water has not been substantiated sufficiently for the "small series" WWER-1000, so it could not be extended for serial WWER-1000. In addition, it is necessary to perform the qualification of MSIV for water for severe beyond design basis accidents taking into consideration possible human errors and multiple failures based on reasonably substantiated criteria of qualification.

УДК/UDC 630*18:504.064.2(477.41)

М. М. Давидов, Т. І. Протас, М. П. Савушик

Накопичення радіонуклідів в основних компонентах лісових екосистем Київських Полісся та Лісостепу

Наведено основні результати багаторічного експериментального вивчення динаміки розповсюдження радіонуклідів ^{137}Cs і ^{90}Sr в лісових екосистемах Київських Полісся та Лісостепу, що були забруднені внаслідок аварії на Чорнобильській АЕС.

M. Davidov, T. Protas, M. Savuschik

Radionuclides accumulation in the basic components of forests ecosystem in Kiev Polissya and Lisostep forest

This paper presents the data of long-term experimental study of ^{137}Cs and ^{90}Sr radionuclides dynamics distribution in Kiev Polissya and Lisostep forest ecosystem that were contaminated as a result of the Chernobyl NPP disaster.

УДК/UDC 66.081:[546.36+546.42]

Г. М. Пшинко, С. О. Кобець, В. М. Федорова

Сорбція-десорбція ^{137}Cs і ^{90}Sr в процесах міграції та дезактивації

Досліджено процеси сорбції-десорбції в системі “радіонуклід (^{137}Cs , ^{90}Sr)—природні глинисті мінерали” і “радіонуклід (^{137}Cs , ^{90}Sr)—модифіковані форми глинистих мінералів з осажденими гумусовими кислотами та гідроксидами заліза”. Встановлено, що наявність на поверхні гумінових кислот та $\text{Fe}(\text{OH})_3$ призводить до збільшення сорбції радіонуклідів в широкій області рН (4...9). Іони Na^+ , Ca^{2+} з підвищенням їх концентрації у водному розчині, навпаки, знижують фіксацію ^{137}Cs , ^{90}Sr і сприяють їх міграції в навколишньому середовищі. Показано, що амонійні солі є ефективними вилуговуючими реагентами по відношенню до іонів цезію і за своєю десорбуючою здатністю їх можна розташувати в ряд: $\text{NH}_4\text{Cl} < \text{NH}_4\text{H}_2\text{Cit} < (\text{NH}_4)_2\text{Ox} < (\text{NH}_4)_2\text{HCit}$.

УДК/UDC [550.378:621.039.74]504.064.2(477.41)

І. В. Ярмош

Порівняльна оцінка значень коефіцієнтів розподілення ^{90}Sr на прикладі ґрунтів Чорнобильської зони відчуження

Представлено огляд літературних даних щодо міграційної поведінки ^{90}Sr у ґрунтах зони аерації та водоносних горизонтів Чорнобильської зони відчуження (ЗВ). Встановлено, що значення коефіцієнтів розподілення ^{90}Sr для ґрунтів території Чорнобильської ЗВ зазнають змін з часом, відрізняються в залежності від методу проведення вимірювань та типів ґрунтів. Показано, що для побудови адекватних математичних моделей міграції радіонуклідів із приповерхневих сховищ радіоактивних відходів (РАВ) комплексу “Вектор” існує необхідність проведення додаткових комплексних досліджень саме для ґрунтів майданчика комплексу виробництв “Вектор” з метою визначення достовірних коефіцієнтів розподілення ^{90}Sr у ґрунтах.

УДК/UDC 621.039.586

І. Л. Козлов

Парові вибухи при важких аваріях у корпусних ядерних реакторах

У статті надано основні відомості щодо розвитку важких аварій (з ушкодженням елементів, що містять ядерне паливо) у корпусних ядерних реакторах, а також вимоги до їх моделювання. Здійснено аналіз відомих підходів моделювання парових вибухів при важких аваріях. Показано, що виключення з розгляду парових вибухів (як відносно малоімовірних подій) не обґрунтовано, з урахуванням уроків Фукусімської аварії. На основі спрощеної моделі розвитку важких аварій в корпусних ядерних реакторах визначені умови виникнення парових вибухів при охолодженні ушкодженого ядерного палива.

УДК/UDC 621.039.7

Ю. О. Ольховик

Про кондиціювання лавових паливовміщуючих мас об'єкту “Укриття”

Розглянуто хімічний склад і властивості лавових паливовміщуючих мас об'єкту “Укриття”. Відзначена необхідність їх подальшого кондиціювання для забезпечення безпеки тривалого зберігання і захоронення в геологічному сховищі. Як оптимальний метод кондиціювання запропоновано спільне оскловування лавових паливовміщуючих мас і борвміщуючих рідких радіоактивних відходів АЕС з використанням індукційного плавника “холодний тигель”.

УДК/UDC 502.65:621.039.75:628.3

Ю. В. Бондар, С. В. Кузенко, Н. В. Олександрова, Т. І. Коромисліченко

Нові композитні волокна для селективного вилучення цезію з високосольових розчинів

Синтезовано нові композитні волокна шляхом *in situ* осадження шару фероціаніду калія-нікелю на поверхню модифікованих поліакрилонітрильних волокон. Результати електронно-мікроскопічного і інфрачервоного досліджень підтвердили

G. Pshinko, S. Kobets, V. Fedorova

Sorption-desorption of ^{137}Cs and ^{90}Sr in the migration and deactivation processes

The sorption-desorption processes in the system “radionuclide (^{137}Cs , ^{90}Sr)—natural clay minerals” and “radionuclide (^{137}Cs , ^{90}Sr)—modified clay mineral forms with deposited humic acids and iron hydroxide” were studied. It is found that the presence of humic acids and $\text{Fe}(\text{OH})_3$ on the surface increases ^{137}Cs and ^{90}Sr sorption in a wide pH range (4...9). Ions Na^+ and Ca^{2+} with the increase of their concentration in aqueous solution reduce the ^{137}Cs and ^{90}Sr fixation and promote their migration to the environment. It is shown that the ammonium salts act as effective leaching reagents, relative to the cesium ions and according to their desorption capacity they can be arranged as follows: $\text{NH}_4\text{Cl} < \text{NH}_4\text{H}_2\text{Cit} < (\text{NH}_4)_2\text{Ox} < (\text{NH}_4)_2\text{HCit}$.

I. Yarmosh

Comparative analysis of values of ^{90}Sr distribution coefficients as in the case of soils of Chernobyl exclusion zone

This review presents the data concerning ^{90}Sr migration behavior in the soils of the aeration zone and aquifers of Chernobyl exclusion zone. It is revealed that values of distribution coefficients of ^{90}Sr for soils of Chernobyl exclusion zone territory are changed with time, measurement methods and type of soils. It is shown that to build adequate models of radionuclides migration from RW near-surface disposal facilities of Vector Complex, it is necessary to carry out additional comprehensive researches exactly for the soils of Vector site to indicate reliable ^{90}Sr distribution coefficients in soils.

I. Kozlov

Steam explosions at severe accidents in pressurized nuclear reactors

The article presents basic data on development of severe accidents (with damage of the elements containing nuclear fuel) in pressurized nuclear reactors, as well as the requirements to their modeling. The known approaches of modeling of steam explosions in the course of severe accidents are analyzed. It is shown that non-inclusion into consideration of steam explosions (as rather improbable events) is unjustified taking into account the lessons learned of the Fukushima accident. On the basis of a simplified model of severe accidents development in pressurized nuclear reactors, the conditions are defined of generation of steam explosions at cooling of the damaged nuclear fuel.

Yu. Olkhovik

About conditioning of lava fuel-containing masses from the Shelter

Chemical composition and properties of lava-like fuel-containing masses from the Shelter Object (LFCM) are considered. It is noted the necessity of further LFCM conditioning to ensure the safety of their prolonged storage and disposal in a geological repository. As an optimal method of conditioning it is suggested the joint vitrification of LFCM and of liquid boron-containing radioactive waste from VVER NPP using an induction “cold crucible” melter.

Yu. Bondar, S. Kuzenko, N. Olexandrova, T. Koromyslichenko

Novel composite fibers for selective removal of caesium from highly saline solutions

New composite fibers are synthesized by *in situ* deposition of potassium-nickel ferrocyanide layer on the surface of modified polyacrylonitrile fibers. The data of electron microscopic and infrared investigations confirmed the formation of the ferrocyanide

формування фероціанідного шару на поверхні волокон. Синтезовані композитні волокна хімічно стійкі як в кислих, так і в лужних розчинах і характеризуються високою селективністю по відношенню до іонів цезію у присутності великого надлишку конкуруючих іонів натрію і калію.

УДК/UDC 544.582.2

О. Б. Лисенко, Ю. М. Деміхов

Застосування магнітного ізоотопного ефекту для розділення ізоотопів урану

Досліджено вплив магнітного ізоотопного ефекту на реакції радикальних пар, які містять радикал-іон UO_2^{2+} , що в подальшому може бути застосовано в новому способі поділу ізоотопів урану в хімічних реакціях.

УДК/UDC 621.039[7...14+733/736]

В. Г. Іванець, В. М. Корякін, О. В. Гайдін

До питання переробки рідких радіоактивних відходів фракційним поділом компонентів

На АЕС України сумарно накопичено більше 33 тис. м³ рідких радіоактивних відходів (РРВ) різних категорій активності. Відомі методи переробки осадів з ємностей тимчасового зберігання РРВ не можуть знайти широкого застосування у зв'язку з низькою технологічною та економічною ефективністю, а також через відсутність сховищ для кінцевого продукту, що має більший об'єм порівняно з вихідними РРВ. Запропоновано проводити поділ компонентів попередньо очищених РРВ та їх подальшу переробку шляхом періодичного порційного пропускання через шар тонко-дисперсного адсорбенту в потоці оборотного елюенту. Цей метод дозволить суттєво зменшити об'єм радіоактивних відходів (РАВ) та виділити цінні нерадіоактивні компоненти у чистому вигляді.

layer on the fibers' surface. Composite fibers are chemically stable in both acidic and alkaline solutions, and are characterized by high selectivity for caesium ions in the presence of excess of competitive sodium and potassium ions.

O. Lysenko, Yu. Demikhov

The use of magnetic isotope effect for the separation of uranium isotopes

The influence of the magnetic isotope effect on the reaction of radical pairs containing radical-ion UO_2^{2+} , is investigated. This can be further used in the new method of uranium isotope separation in chemical reactions.

V. Ivanets, V. Koryakin, O. Gaidin

On issue of liquid radioactive wastes reprocessing by fractional division of components

Ukrainian NPPs have accumulated in total more than 33 thousands m³ of liquid radioactive wastes (LRW) of different degrees of activity. Known methods of processing the sediments from LRW temporary storage containers cannot be widely applied because of their low technological and economic efficiency, as well as due to lack of storage facilities for the final product, which has a larger volume in comparison to the initial LRW. It is proposed to separate components of preliminary purified LRW and then to process them by periodic portioned filtering through a layer of fine-dispersed adsorbent in the flow of the circulating eluent. This method permits to reduce significantly the amount of radioactive wastes and extract valuable non-radioactive components in a purified form.

ПРАВИЛА ДЛЯ АВТОРІВ

1. Рукопис статті українською, російською або англійською мовами подається до журналу у вигляді твердої копії з підписами всіх авторів на останній сторінці, а також електронної версії (на електронному носії або електронною поштою).
2. Послідовність оформлення: ініціали та прізвища авторів; назва статті; назва організації, де виконувалась робота; анотація, ключові слова; текст статті, літературні посилання. Стаття має містити УДК.
Крім того, на окремій сторінці надається така інформація: ініціали та прізвища авторів, назва статті, назва організації та анотація англійською, українською та російською мовами; телефони та адреси електронної пошти авторів.
Додатково до тексту статті (окремо від тексту — окремим файлом) подаються ілюстративні та графічні матеріали.
3. Загальний обсяг статті разом з графічними матеріалами не повинен перевищувати 18 сторінок формату А4. На одній сторінці може бути не більше як 30 рядків та до 60 знаків (з урахуванням розділових знаків і проміжків між словами) у кожному рядку. Розмір шрифту підготовленого на комп'ютері матеріалу — 14; міжрядковий інтервал — 1,5; розміри полів (мм): зліва — 30, справа — 10, зверху — 20, знизу — 25.
4. Текст набирається шрифтом TimesNewRoman у редакторі Microsoft Word. Графічний матеріал (у режимі "чорно-білий" або "відтінки сірого") подається у форматі EPS, TIFF або JPG-файлів з густиною точок на дюйм 300—600 dpi.
5. Статті, які є результатами робіт, проведених в організаціях, повинні мати супровідний документ від цих організацій.
6. Разом зі статтею до редакції журналу має бути поданий документ про можливість відкритої публікації матеріалів.
7. Скорочення слів, словосполучень, назв, термінів, за винятком загальноприйнятих, можливе тільки у разі їх розтлумачення при першому згадуванні в тексті.
8. Зміст наукових статей будується за загальноприйнятою структурою:
вступ — проблема, ціль, постановка задачі, її актуальність, аналітичний огляд останніх досліджень і публікацій з даної проблеми, опис головної ідеї даної публікації;
викладення основного змісту проведеного дослідження — головна частина статті, де висвітлюються основні положення дослідження, програма і методика експерименту, отримані результати та їх обґрунтування, виявлені закономірності, аналіз результатів;
висновки — основні підсумки, рекомендації, значення для теорії й практики, перспективи подальших досліджень;
список використаної літератури — перелік літературних джерел, на які є посилання в тексті статті: вказати авторів та назву твору, місце публікації (для книжки — місто та видавництво, для статті — назву збірника чи журналу, його номер та / або випуск), рік публікації, загальну кількість сторінок для книжки або сторінки, на яких надруковано статтю.
9. Виплата авторського гонорару не передбачається.
10. Матеріали, що надійшли до редакції, авторам не повертаються.