

ОЦЕНКА ЭФФЕКТИВНОЙ ТЕМПЕРАТУРЫ И ВРЕМЕНИ ОТЖИГА ТОПЛИВНЫХ ЧАСТИЦ, ВЫБРОШЕННЫХ ИЗ ЧЕРНОБЫЛЬСКОГО РЕАКТОРА ВО ВРЕМЯ АВАРИИ.

В.А.Кашпаров, Ю.А.Иванов, Ю.В.Хомутигин, Э.М.Пазухин

I. ВВЕДЕНИЕ

В результате взрыва 4-го блока Чернобыльской АЭС 26 апреля 1986 года происходило разрушение ядерного топлива при высокой температуре. Это привело к выбросу из локальной области реактора во время взрыва достаточно крупных топливных частиц (ТЧ) размером в десятки и сотни микрон [1-4]. Анализ радионуклидного состава этих топливных частиц, отобранных нами из почвы в 5-км зоне вокруг реактора в 1986-1987 годах, показал, что данные частицы имеют меньшее выгорание топлива по сравнению со средней величиной выгорания для всего топлива реактора [2,4]. Кроме того они обогащены Zr-95 относительно Ce-144, Sb-125, Eu-154,155 в 1.4 раза больше (Рис.1.) по сравнению с топливной компонентой чернобыльских выпадений за пределами 5-км зоны и средним составом топлива 4-го блока [2,4]. Сильное обеднение этих частиц изотопами цезия (Рис.2а.) и, в меньшей степени, стронцием [1-5] объясняется миграцией радионуклидов в ТЧ и утечкой части продуктов деления (ПД) из топлива при его высокотемпературном отжиге в аварийном блоке. Утечка цезия из топлива до аварии при нормальной работе реактора была незначительной. Об этом свидетельствует соотношение между активностью Cs-134 и Cs-137, имеющих более подвижных предшественников Xe-133 и Xe-137 с разными периодами полураспада. Следовательно, если бы утечка цезия из топлива имела место во время нормальной работы реактора, то топливные частицы были бы в большей степени обеднены Cs-134 за счет миграции ксенона [6]. В топливных частицах не наблюдалось фракционирования Ce-144, Zr-95, Sb-125, Eu-154,155 [1-5], обладающих крайне низкими миграционными свойствами.

ми в диоксиде урана. Коэффициент фракционирования этих радионуклидов относительно друг друга равен 1, поэтому их утечку из топливных частиц можно считать равной нулю.

После разрушения реактора в период с 26.04.86 по 06.05.86 происходило диспергирование ядерного топлива за счет его окисления на воздухе [5]. Это привело к образованию микронных частиц (медианный радиус порядка 2-3 мкм), составляющих основную часть топливной компоненты выпадений чернобыльского выброса за пределами 5-км зоны [5]. Образование этих частиц происходило при сравнительно низких температурах (до 1000 К), о чем свидетельствует малая относительная утечка из них цезия (Рис.2б.). На фоне большого числа частиц, образовавшихся в результате окисления, крайне затруднительно в “Укрытие” выделить частицы, образовавшиеся в первый момент аварии при взрыве реактора.

Следовательно, данные об утечке Cs-137 и Sr-90 из топливных частиц можно использовать для оценки эффективной температуры и времени отжига этих частиц во время аварии на ЧАЭС.

II. ОПРЕДЕЛЕНИЕ ЭФФЕКТИВНЫХ КОЭФФИЦИЕНТОВ ДИФФУЗИИ ЦЕЗИЯ В ЧАСТИЦАХ ЧЕРНОБЫЛЬСКОГО ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА ПРИ ЕГО ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНОМ ПОСЛЕРЕАКТОРНОМ ОТЖИГЕ

Многочисленные расчетные и экспериментальные работы, посвященные миграции ПД в реакторных материалах и, в частности, в ядерном топливе [6-14], показывают, что подвижность ПД в топливных частицах определяется множеством факторов (технологией изготовления топлива, его стехиометрией и выгоранием, наличием присадок и т.д.). Тем не менее в практических расчетах для описания процессов миграции и утечки продуктов деления из диоксида урана чаще всего используется диффузи-

онная модель эквивалентных сфер [7]. В рамках этой модели считается, что материал образца (частицы) состоит из одинаковых однородных сфер теоретической плотности радиуса L (аналог зерна или кристаллита). В промежутках между ними продукты деления имеют бесконечно большой коэффициент диффузии, так что относительная утечка из одной эквивалентной сферы равна относительной утечке из всего образца. Выход продуктов деления из частицы происходит в два этапа: первоначально - внутризеренная диффузия к границам, которые являются эффективными стоками для подвижных продуктов деления, затем - выход на поверхность частицы по границам зерен, которые являются каналами быстрого переноса для продуктов деления. Концентрация радионуклида в эквивалентной сфере при отжиге образца описывается следующим уравнением:

$$\partial U/\partial t = D_{\text{eff}} \cdot \Delta U - \lambda \cdot U, \quad (1)$$

где: U - концентрация радионуклида, Бк/м³;

D_{eff} - эффективный коэффициент диффузии, м²/с;

λ - постоянная распада, 1/с;

t - время отжига, с,

с начальными и граничными условиями:

$$\begin{aligned} U(r,0) &= U_0 & 0 \leq r \leq L \\ U(L,t) &= 0 \\ \partial U(0,t)/\partial r &= 0 \end{aligned} \quad (2)$$

Зависимость D_{eff} от температуры принято описывать законом Аррениуса [8]:

$$D_{\text{eff}} = D_0 \cdot \exp(-E/RT); \quad (3)$$

где: E - энергия активации, Дж/моль;

R - универсальная газовая постоянная, Дж/К/моль;

T - температура отжига, К.

Относительная утечка (F) радионуклида из сферического образца радиуса L в случае его послереакторного отжига при условии $\lambda \ll 1/t$ равна [8]:

$$F(t) = 1 - \frac{6}{\pi^2} \cdot \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^2} \cdot \exp\left[-\frac{n^2 \cdot \pi^2 \cdot D_{eff} \cdot t}{L^2}\right]; \quad (4)$$

где: F(t) - отношение количества радионуклида, покинувшего образец за время отжига t, к исходному содержанию в образце:

$$F(t) = (A_0 - A) / A_0 \quad (5)$$

где: $A_0 = 4/3 \cdot \pi \cdot L^3 \cdot U_0$ - активность нуклида в образце до отжига;

$$A = \int_0^L 4 \cdot \pi \cdot r^2 \cdot U(r,t) dr - \text{активность нуклида в образце после отжига.}$$

В случае вычисления коэффициента фракционирования i-го радионуклида по отношению к j-му радионуклиду, подвижность которого в топливной частице мала ($A_{0j} \cong A_j$), коэффициент фракционирования:

$$Kf_{ij} = (A_i/A_j) / (A_{0i}/A_{0j}); \quad (6)$$

будет определяться только относительной утечкой i-го изотопа:

$$Kf_{ij} = 1 - F_i(t) \quad (7)$$

Такая ситуация имеет место для коэффициентов фракционирования Cs-134,137 и Sr-90 относительно Ce-144 [1-5]. Из (4-7) следует, что одинаковые значения относительной утечки (коэффициентов фракционирования [1-4]) будут получены для всех случаев, когда $D_{eff} \cdot t / L^2 = \text{const}$. С учетом (3) это означает, что для данной относительной утечки определяется некоторая связь между температурой и продолжительностью отжига, но не значение какой-либо из этих величин. Для их определения необходимо располагать значениями относительной утечки (коэффициентов фракционирования) по крайней мере двух радионуклидов с разной зависимостью эффективных коэффициентов диффузии от температуры, например Cs-137 и Sr-90.

Под действием облучения и температуры происходят существенные необратимые изменения структуры двуокисного топлива. При этом значения эффективных коэффициентов диффузии цезия тем меньше зависят от исходной плотности, зернистости, пористости и состава топлива, чем выше его выгорание, при котором определялись в ходе послереакторного отжига образцов миграционные свойства цезия и стронция [8,9]. Влияние большого числа факторов на миграцию радионуклидов в ядерном топливе и отсутствие возможности фиксировать те из них, которые определяют утечку продуктов деления при конкретных условиях облучения, приводят к весьма противоречивым данным. Кроме того, при использовании диффузионной модели эквивалентных сфер [7] допускается известный произвол в выборе граничных условий и радиуса эквивалентной сферы. Допускается не совсем оправданная экстраполяция параметров диффузии в область экспериментально неисследованных температур. Все это наряду с различием нефиксируемых условий облучения и отжига, а также технологических параметров ядерного топлива приводит к сильной неопределенности эффективных коэффициентов диффузии. Так, по данным работ [8-15], эффективные коэффициенты диффузии цезия в двуокисном топливе описываются законом Арениуса (3) и имеют разброс при температуре $T=(1200-1600)K$ в 10^5-10^8 раз ($D_0=(10^{-14} - 10^{+6})m^2/c$; $E=(25.5 - 645.7)kJ/mol$). Это исключает возможность их практического использования для расчетов в конкретных случаях. Поэтому нами были выбраны только те работы [8,9,13-15], где одновременно в одних и тех же образцах определялись миграционные свойства цезия и стронция (Табл.1.). Это позволило использовать наиболее близкие чернобыльскому ядерному топливу эффективные коэффициенты диффузии продуктов деления в UO_2 .

Как было отмечено, перенос ПД в двуокиси урана определяется множеством факторов, среди которых можно отметить как характеристики топлива (плотность, сте-

хиометрический состав, выгорание, связанные с ним микро- и макроструктурные изменения материала и т.д.), так и свойства самого ПД и его предшественников. В отсутствии большинства необходимых данных расчетные методы могут использоваться лишь для демонстрации и определения направления исследований. Получение более достоверных оценок может опираться только на экспериментальное изучение динамики фракционирования радионуклидов (или их относительных утечек) в ходе моделирования процесса отжига реальных ТЧ в контролируемых условиях.

Для оценки миграционных параметров цезия в чернобыльском ядерном топливе производился отжиг реальных топливных частиц при различной температуре [5]. Отношение покинувшего образец Cs-137 к первоначальному его содержанию в частице дает величину относительной утечки в момент измерения $F_{\text{exp}}(t_i)$. Эффективные приведенные коэффициенты диффузии D_{eff}/L^2 определялись на основе минимизации функционала:

$$\sum_{i=1}^{N_{\text{exp}}} [F_{\text{exp}}(t_i) - F(D_{\text{eff}} \cdot t_i / L^2)]^2, \quad (8)$$

где $F_{\text{exp}}(t_i)$ - экспериментальное значение относительной утечки в момент t_i ;

$F(D_{\text{eff}} \cdot t_i / L^2)$ - теоретическое значение относительной утечки (4) в момент t_i ; N_{exp} - число экспериментальных точек измерений динамики утечки.

Эта задача была решена для трех экспериментов по отжигу частиц при температуре $T=1270$ К и при температуре $T=1670$ К [5]. Полученные значения $D_{\text{eff}}(T)/L^2$ приведены на Рис.2. В соответствии с законом Аррениуса (3) в координатах $1/T - \ln(D_{\text{eff}}/L^2)$ значения $\ln(D_{\text{eff}}/L^2)$ должны лежать на прямой. Величина E/R (3), рассчитанная на основе экспериментальных данных с помощью метода наименьших квадратов с учетом возможной ошибки равна 16000 ± 6300 К и очень хорошо согласуется с литературными данными из работы [14] (Таблица 1.), в соответствии с которыми ее значение равно

19880 К. Так как мы, к сожалению, не проводили измерений утечки Sr-90 из чернобыльского ядерного топлива, то для дальнейших расчетов использовались значения эффективных коэффициентов диффузии Cs-137 и Sr-90, полученные в работе [14] (Таблица 1.):

$$D_{\text{eff}}(\text{Cs})=6.7\text{E}-10\cdot\exp(-19880/T), \text{ m}^2/\text{c}; \quad (9)$$

$$D_{\text{eff}}(\text{Sr})=3.5\text{E}-5\cdot\exp(-49170/T), \text{ m}^2/\text{c}; \quad (10)$$

как наиболее близкие чернобыльскому ядерному топливу, что следует из равенства E/R для Cs-137.

Исходя из экспериментально полученных значений эффективных приведенных коэффициентов диффузии для Cs-137 в чернобыльском ядерном топливе D_{eff}/L^2 при температуре 1270 и 1670 К (Рис.3.) был оценен радиус эквивалентной сферы L (зерна, кристаллита UO_2) топливных частиц. На рисунке 3. сплошной линией показана зависимость для приведенного коэффициента диффузии Cs-137, полученная методом наименьших квадратов (при $E/R=19880$ К):

$$D_{\text{eff}}/L^2 = 114.4\cdot\exp(-19880/T), \text{ 1/c} \quad (11)$$

Данная зависимость вполне удовлетворительно описывает полученные экспериментальные данные. Погрешность логарифма коэффициента $D_0/L^2=114.4$ равна $S_1=0.55$. Отсюда легко может быть оценен средний радиус для используемой здесь модели эквивалентных сфер. Считая, что:

$$D_0=6.7\text{E}-10 \text{ m}^2/\text{c} \text{ и } D_0/L^2 = 114.4 \text{ 1/c},$$

$$\text{получаем } L=2.4\pm 0.7 \text{ мкм}. \quad (12)$$

Полученные радиусы эквивалентных сфер (зерна, кристаллита UO_2) $L=2.4\pm 0.7$ мкм чернобыльского ядерного топлива очень хорошо согласуются с размерами частиц топливной компоненты чернобыльских выпадений 1.5-3.5 мкм [5] и размерами частиц,

на которые разрушается при окислении на воздухе чернобыльское ядерное топливо - 3 мкм [5].

III. ОЦЕНКА ЭФФЕКТИВНОЙ ТЕМПЕРАТУРЫ И ВРЕМЕНИ ОТЖИГА ТОПЛИВНЫХ ЧАСТИЦ ВО ВРЕМЯ АВАРИИ НА ЧАЭС

На основании данных об относительной утечке (коэффициентах фракционирования (7)) Cs-137 и Sr-90 в реальных чернобыльских топливных частицах [1-4] и температурной зависимости эффективных коэффициентов диффузии (9,10) можно оценить эффективное время и температуру отжига топливных частиц во время аварии. Следует отметить, что это именно эффективные значения, так как отжиг частиц происходил не в изотермических условиях.

С одной стороны, отношение эффективных коэффициентов диффузии Cs-137 и Sr-90 (9,10), наиболее близких чернобыльскому топливу (полученные в работе [14] и приведенные в Таблице 1), имеет вид:

$$D_{\text{eff}}(\text{Cs})/D_{\text{eff}}(\text{Sr}) = 1.9\text{E}-5 \cdot \exp(29290/T) \quad (13)$$

С другой стороны, эти же отношения можно определить для топливных частиц (размером >20 мкм), выброшенных в результате аварии на Чернобыльской АЭС и отобранных в 1986-1987 г.г. в 10-ти километровой зоне [1-4]. Имеющаяся у нас самая крупная коллекция и банк данных "Горячие частицы", содержащий информацию о 1700 частицах, позволили рассчитать коэффициенты фракционирования (K_f) Cs-137 и Sr-90 относительно Ce-144 с учетом выгорания топлива [1-4] и следовательно определить относительную утечку Cs-137 и Sr-90 из каждой частицы во время аварии (7).

Применяя аналитическое выражение (4) в рамках диффузионной модели эквивалентных сфер (1) из относительной утечки продуктов деления были получены вели-

ченны $D_{\text{eff}} \cdot t/L^2$ для Cs-137 и Sr-90, а затем найдено отношение $D_{\text{eff}}(\text{Cs})/D_{\text{eff}}(\text{Sr})$ в реальных чернобыльских частицах.

Таким образом эффективная температура отжига каждой выброшенной частицы может быть оценена с помощью зависимости (13) как:

$$T_{\text{eff}} = \frac{29290}{\ln \left[D_{\text{eff}}(\text{Cs}) / D_{\text{eff}}(\text{Sr}) / 1.9 \cdot 10^{-5} \right]} \quad (14)$$

Расчеты проводились только для тех частиц, которые имели одинаковые коэффициенты фракционирования Cs-137 и Cs-134 относительно Ce-144 для исключения случаев фракционирования не во время аварии, а во время нормальной работы реактора.

Получив температуру отжига выброшенной топливной частицы и зная средний радиус эквивалентной сферы L и отношение $X_{\text{Cs}} = D_{\text{eff}} \cdot t/L^2$, полученное на основе относительной утечки Cs-137 (выбор Cs-137 обусловлен в целом меньшими погрешностями его измерения по сравнению со Sr-90), используя соотношение (9), было оценено эффективное время отжига каждой частицы:

$$t_{\text{eff}} = \frac{L^2 \cdot X_{\text{Cs}}}{6.7 \cdot 10^{-10} \cdot \exp(-19880/T)} \quad (15)$$

На рисунках 4 и 5 приведены частотные гистограммы распределения эффективной температуры и времени отжига выброшенных в результате аварии на ЧАЭС топливных частиц, соответственно. Там же сплошной линией показана их аппроксимация теоретическими распределениями. Распределение температуры отжига частиц (Рис.4) наиболее точно описывается логнормальным законом с плотностью распределения вероятностей:

$$f(T_{eff}) = \frac{1}{\sqrt{2\pi} \cdot 0.17 \cdot T_{eff}} \cdot \exp \left[-0.5 \cdot \left(\frac{\ln(T_{eff}) - 7.8}{0.17} \right)^2 \right]$$

Согласно этому распределению медианное значение эффективной температуры отжига частиц равно 2400 К.

Распределение эффективного времени отжига имеет резко асимметричный характер и наиболее точно аппроксимируется законом распределения Вейбулла с интегральной функцией распределения вероятностей:

$$F(t_{eff}) = 1 - \exp(- (t_{eff}/8.2)^{0.43}).$$

Согласно этому распределению медианное значение эффективного времени отжига частиц равно 3.5 с.

Таким образом, получены эффективные значения температур отжига (Рис.4) выброшенных из реактора частиц (медианное значение $T=2400$ К) и времен (Рис.5) их высокотемпературного отжига (медианное значение $t=3.5$ с) во время аварии. Однако эти величины являются в большей степени качественными, так как не совсем корректна экстраполяция закона Аррениуса (3) в область столь высоких температур отжига. Тем не менее, полученные результаты указывают на "взрывной" характер образования крупных топливных частиц (размером >20 мкм) в первый момент аварии при быстром росте температуры.

Для получения более точных оценок параметров отжига частиц во время аварии необходимо одновременное экспериментальное определение динамики относительной утечки Cs-137 и Sr-90 из реального чернобыльского ядерного топлива за короткое время (порядка секунд) при температуре 2000-3000 К.

Кроме того, по динамике утечки продуктов деления из реальных чернобыльских частиц (выброшенных в первый момент аварии из реактора в 1986 году) при плавном увеличении температуры их нагрева можно экспериментально оценить максимальную температуру отжига каждой частицы во время аварии. Так как в этих частицах во время аварии уже происходил отжиг дефектов структуры, где сосредоточены продукты деления, то при превышении этой максимальной температуры отжига будет наблюдаться всплеск утечки проуктов деления из частицы [16].

IV. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

На основе экспериментальных данных о динамике относительной утечки Cs-137 из топливных чернобыльских частиц оценен радиус эквивалентной сферы (зерна, кристаллита UO_2) $L=2.4\pm 0.7$ мкм чернобыльского ядерного топлива. Полученная величина очень хорошо согласуется с размером частиц топливной компоненты выпадений чернобыльского выброса 1.5-3.5 мкм [5] и размером зерен, на которые разрушается чернобыльское ядерное топливо при окислении на воздухе - 3 мкм [5].

На основании данных о коэффициентах фракционирования [1-4] Cs-137 и Sr-90 в чернобыльских топливных частицах с учетом их выгорания и экспериментально полученной зависимости эффективных коэффициентов диффузии от температуры сделана оценка эффективного времени и температуры отжига топливных частиц во время аварии. Полученные эффективные значения и распределения (Рис.4,5) температур и времен отжига выброшенных из реактора частиц (медианное значение $T=2400$ К и $t=3.5$ с, соответственно) указывают на "взрывной" характер образования топливных частиц (размером >20 мкм) при быстром росте температуры отжига во время аварии.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Лоцилов Н.А., Кашпаров В.А., Поляков В.Д. и др. Ядерно-физические характеристики горячих частиц, образовавшихся в результате аварии на ЧАЭС, Радиохимия, N 4, 1992, с.113.
2. Лоцилов Н.А., Кашпаров В.А., Юдин Е.Б., Процак В.П. Фракционирование радионуклидов в чернобыльских топливных горячих частицах, Радиохимия, N 5, 1992, с.125.
3. Loshchilov N.A., Kashparov V.A., Yudin Ye.B. et al. Experimental assessment of radioactive fallout from the Chernobyl accident, Sicurezza e Protezione, N 25-26, 1991, p.46.
4. Kuriny V.D., Ivanov Yu.A., Kashparov V.A. et al. Particle associated Chernobyl fall-out in the local and intermediate zones, Annals of Nuclear Energy, V.20, N.6, 1993, p.415.
5. Kashparov V.A., Ivanov Yu.A., Zvarisch S.I. et al. Formation of hot particles during the accident on Chernobyl NPP, in press MS#9148 Nuclear Technology, 1995.
6. Гудков Н.А., Кашпаров В.А. и др. Поведение твердых продуктов деления в микротрещинах ВТГР. "Атомная энергия", 1989, т.67, вып.2, с.93
7. Booth A.H. A method of calculating fission gas diffusion from UO₂ fuel and Its application to the x-z-t loop test, Report AECL-496, 1957.
8. Zoller P. Das Transportverhalten der Spaltprodukte Cäsium und Strontium in beschichteten Brennstoffteilchen für Hochtemperatur - Reaktoren undere Bestrahlungsbedingungen, KFA, Jülich, N1324, 1976.
9. Brown P.E., Faircloth R.L. Metal fission product behavior in high temperature reactors UO₂ coated particle fuel, J. of Nuclear Materials, 1976, V.59, p.29
10. Friskney C.A., Simpcn K.A. The release of caesium and xenon from the uranium dioxide kernels of irradiated HTR fuel particle, J. of Nuclear Materials, 1975, V.57, p.341.

11.Amian W. Experimentelle Untersuchungen zum Transportverhalten von Silber in Brennstoffteilchen für Hochtemperaturreaktoren, KFA, Jülich, N1731, 1981.

12.Silva A.T. Experimentelle Untersuchungen der Aktinidenfreisetzung aus Brennstoffteilchen für Hochtemperaturreaktoren, KFA, Julich, N1833, 1983.

13.Nabielek H., Myers B.F. Fission product retention in HTR fuel, British Nuclear Energy Society, London, 1982, V.2, p.145.

14.Amian W, Biederman et al. Results of fission product and actinide studies in coated fuel particles and matrix graphite, British Nuclear Energy Society, London, 1982, V.2, p.153.

15.Förthmann R. Irradiation performance of coated fuel particles with fission product retaining kernel additives, Nuclear Technology, 1982, V.56, p.81.

16.Архипов В.А., Гудков А.Н., Кашпаров В.А. и др. Анализ кинетики газовыделения из ядерного топлива в рамках дефектно-ловушечной модели с распределением энергии активации, препринт MIFI 018-85, 1985.

Таблица 1. Эффективные коэффициенты диффузии ($D_{\text{eff}}[\text{m}^2/\text{c}]$) Cs-137 и Sr-90 в диоксиде урана.

Источник	Эффективные коэффициенты диффузии ($D_{\text{eff}}[\text{m}^2/\text{c}]$)	
	Cs-137	Sr-90
[14]	$6.7\text{E}-10 \cdot \exp(-19880/T)$	$3.5\text{E}-5 \cdot \exp(-49170/T)$
[8]	$1.5\text{E}+4 \cdot \exp(-71465/T)$	$6.93\text{E}-0 \cdot \exp(-82990/T)$
[9]	$3.7\text{E}-3 \cdot \exp(-43470/T)$	$3.1\text{E}+10 \cdot \exp(-83030/T)$
[15]	$1.8\text{E}+2 \cdot \exp(-82864/T)$	$6.7\text{E}+1 \cdot \exp(-68185/T)$

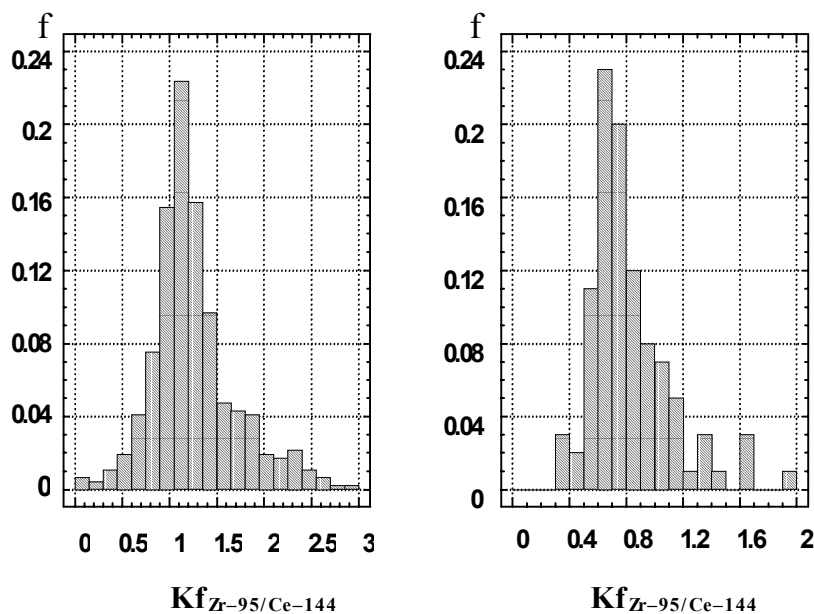


Рис.1. Распределение коэффициентов фракционирования Zr-95 относительно Ce-144 в 479 частицах (среднее значение $Kf_{Zr-95/Ce-144}=1.4$ с учетом выгорания топлива), выброшенных из реактора (а), и в 466 почвенных пробах (среднее значение $Kf_{Zr-95/Ce-144}=1.0$), отобранных через каждые 10 градусов на удалении 5-60 км от ЧАЭС (б).

Рис.2. Распределение относительной утечки Cs-137 из топливных частиц, отобранных за пределами “Укрытия” в 1986-1987 годах (а) и в “Укрытие” в 1991 году (б).

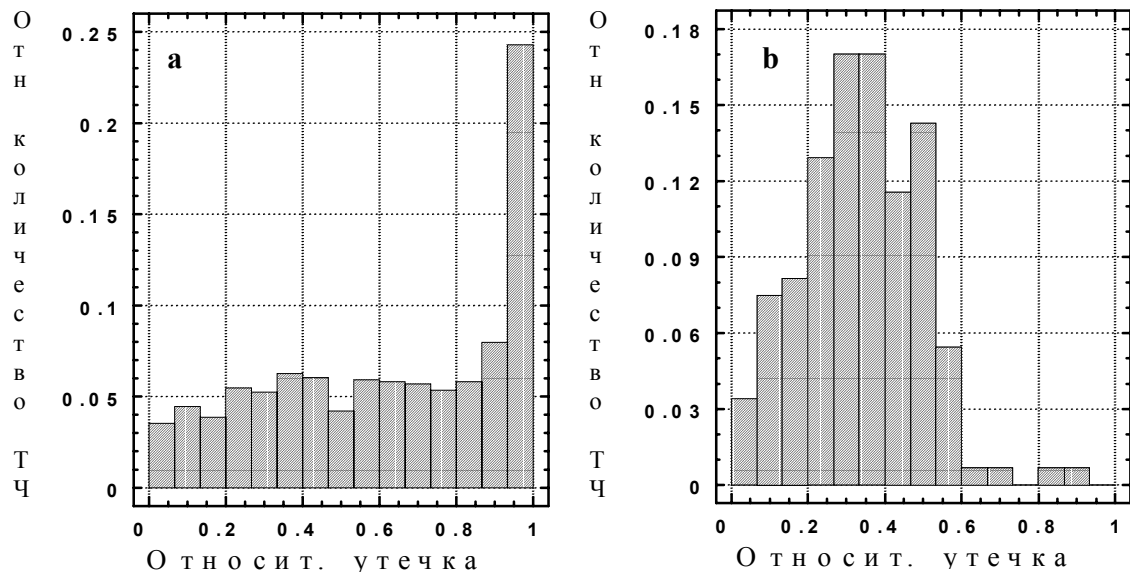


Рис.2. Распределение относительной утечки Cs-137 из топливных частиц, отобранных за пределами “Укрытия” в 1986-1987 годах (а) и в “Укрытие” в 1991 году (б).

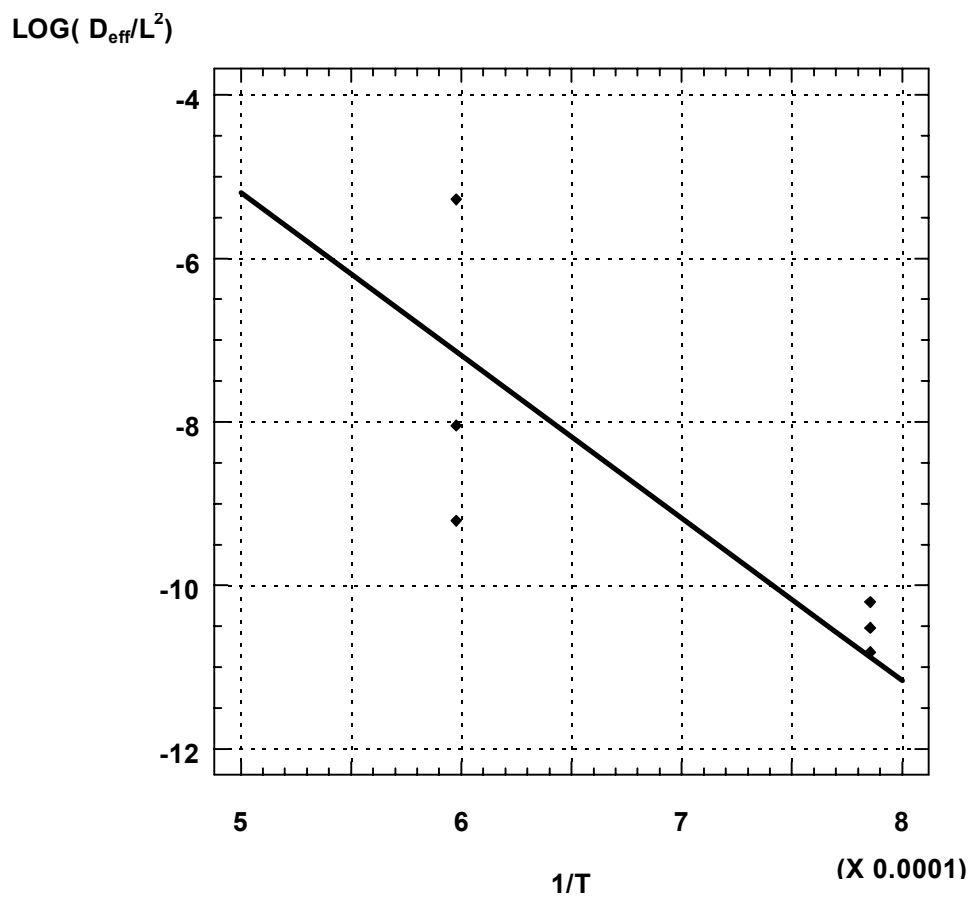


Рис.3. Зависимость приведенного эффективного коэффициента диффузии (D_{eff}/L^2) Cs-137 в UO_2 от температуры отжига:

◆ - экспериментальные результаты;

— - теоретическая зависимость $D_{\text{eff}}/L^2 = 114.4 \cdot \exp(-19880/T)$, 1/с.

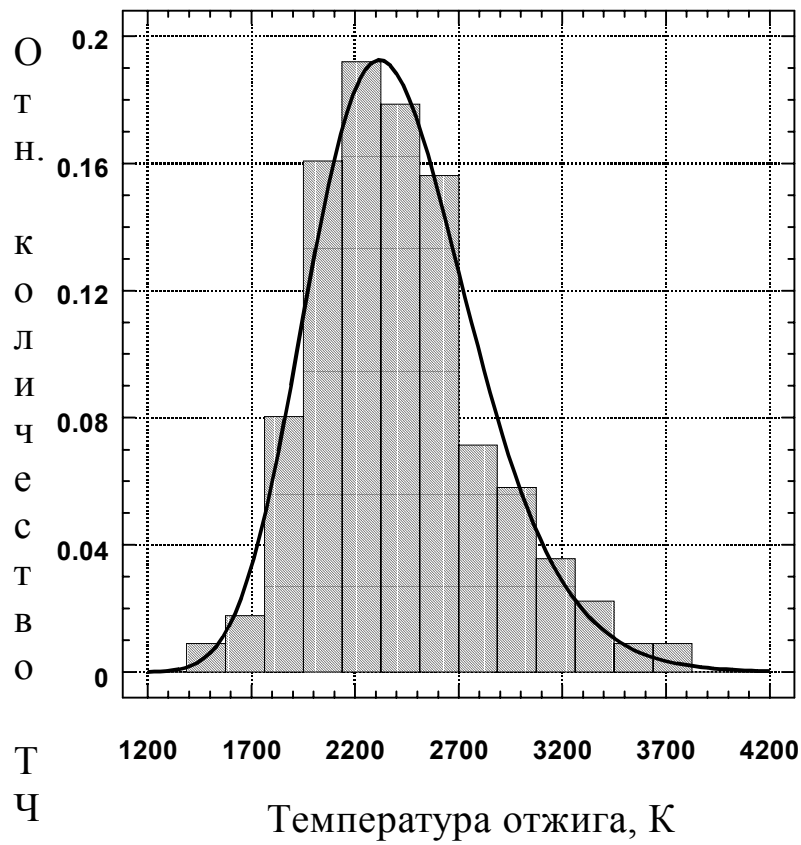


Рис.4. Распределение эффективной температуре отжига топливных частиц, выброшенных во время аварии на ЧАЭС.

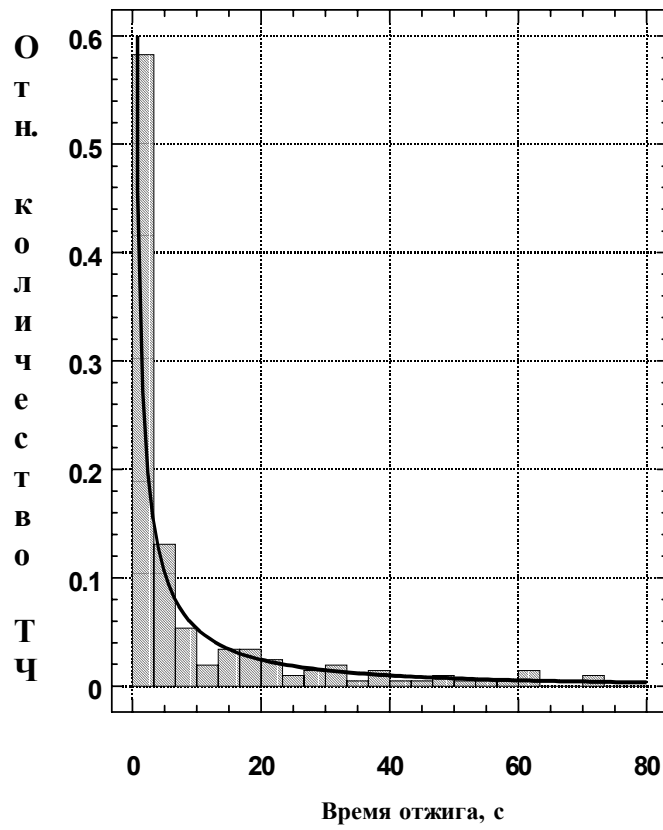


Рис.5. Распределение эффективной продолжительности отжига топливных частиц, выброшенных во время аварии на ЧАЭС.

Подписи к рисункам статьи;

В.А.Кашпаров, Ю.А.Иванов, Ю.В.Хомутигин, Э.М.Пазухин

ОЦЕНКА ЭФФЕКТИВНОЙ ТЕМПЕРАТУРЫ И ВРЕМЕНИ ОТЖИГА
ТОПЛИВНЫХ ЧАСТИЦ, ВЫБРОШЕННЫХ ИЗ ЧЕРНОБЫЛЬСКОГО
РЕАКТОРА ВО ВРЕМЯ АВАРИИ

Рис.1. Распределение коэффициентов фракционирования Zr-95 относительно Ce-144 в 479 частицах (среднее значение $K_{f_{Zr-95/Ce-144}}=1.4$ с учетом выгорания топлива), выброшенных из реактора (а), и в 466 почвенных пробах (среднее значение $K_{f_{Zr-95/Ce-144}}=1.0$), отобранных через каждые 10 градусов на удалении 5-60 км от ЧАЭС (б).

Рис.2. Распределение относительной утечки Cs-137 из топливных частиц, отобранных за пределами “Укрытия” в 1986-1987 годах (а) и в “Укрытие” в 1991 году (б).

Рис.3. Зависимость приведенного эффективного коэффициента диффузии (D_{eff}/L^2) Cs-137 в UO_2 от температуры отжига:

◆ - экспериментальные результаты;

— - теоретическая зависимость $D_{eff}/L^2 = 114.4 \cdot \exp(-19880/T)$, 1/с.

Рис.4. Распределение эффективной температуре отжига топливных частиц, выброшенных во время аварии на ЧАЭС.

Рис.5. Распределение эффективной продолжительности отжига топливных частиц, выброшенных во время аварии на ЧАЭС.

В.А.Кашпаров, Ю.А.Иванов, Ю.В.Хомутинин, Э.М.Пазухин

ОЦЕНКА ЭФФЕКТИВНОЙ ТЕМПЕРАТУРЫ И ВРЕМЕНИ ОТЖИГА
ТОПЛИВНЫХ ЧАСТИЦ, ВЫБРОШЕННЫХ ИЗ ЧЕРНОБЫЛЬСКОГО
РЕАКТОРА ВО ВРЕМЯ АВАРИИ

РЕФЕРАТ

На основе экспериментальных данных о динамике относительной утечки Cs-137 из топливных чернобыльских частиц оценены миграционные параметры цезия в UO_2 при температуре 1270 и 1670 К и радиус эквивалентной сферы (зерна, кристаллита UO_2) $L=2.4\pm 0.7$ мкм чернобыльского ядерного топлива.

На основании данных о коэффициентах фракционирования Cs-137 и Sr-90 в реальных чернобыльских топливных частицах и зависимости эффективных коэффициентов диффузии от температуры сделана оценка эффективного времени и температуры отжига топливных частиц во время аварии. Полученные эффективные значения температур и времен высокотемпературного отжига выброшенных из реактора частиц и их распределения (медианное значение $T=2400$ К и $t=3.5$ с, соответственно) указывают на "взрывной" характер образования топливных частиц (размером >20 мкм) при быстром росте температуры отжига во время аварии.