

СОДЕРЖАНИЕ РАДИОНУКЛИДОВ В ФИЛЬТРАТЕ И ДИСПЕРСНОЙ ФАЗЕ ГРУНТОВОЙ ВОДЫ НАБЛЮДАТЕЛЬНЫХ СКВАЖИН ОБЪЕКТА «УКРЫТИЕ»

А. А. Одинцов, В. Е. Хан, В. А. Краснов, Э. М. Пазухин

Институт проблем безопасности АЭС НАН Украины, Чернобыль

Представлены результаты определения объемной активности ^3H , ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{234}U , ^{235}U , ^{238}U , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ и ^{241}Am в грунтовой воде и дисперсной фазе наблюдательных скважин 1-Г - 6-Г северной части локальной зоны объекта «Укрытие» ЧАЭС. Определено распределение радионуклидов по фракциям взвесей и фильтрату грунтовой воды обследованных скважин. Установлено, что основной вклад в загрязнение грунтовой воды ураном вносят изотопы природного урана $^{234,235,238}\text{U}$. Показано, что соотношение между активностями ^{238}Pu и $^{239+240}\text{Pu}$ соответствует таковому в облученном топливе 4-го блока ЧАЭС. Отношения активностей $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ в грунтовой воде наблюдательных скважин в 1,5 – 2 раза меньше расчетного значения для облученного топлива 4-го блока ЧАЭС.

Введение

Исследования радиоактивного загрязнения поверхностных и грунтовых вод локальной зоны объекта «Укрытие» является одной из основных задач по контролю миграции радионуклидов в водных системах зоны отчуждения ЧАЭС.

Определение концентраций и распределения техногенных радионуклидов в системе «вода – взвеси – донные отложения» являлось предметом ряда работ [1 - 4]. Изучение фазового распределения продуктов деления и трансурановых элементов (ТУЭ) в грунтовой воде испытательных полигонов показало, что основное количество радионуклидов цезия и плутония ассоциировано со взвесями различной дисперсности [3, 4].

Результаты регулярного контроля радионуклидного состава грунтовых вод локальной зоны объекта «Укрытие» остаются важным источником экспериментальных данных, необходимых как для оценки влияния объекта «Укрытие» на окружающую среду, так и для работ по преобразованию объекта в экологически безопасную систему.

Работы по радиационному мониторингу были начаты в 1992 г., когда в рамках программы «Ареал» ниже по потоку грунтовых вод относительно объекта «Укрытие» в северной части локальной зоны были пробурены наблюдательные скважины 1Г - 6Г. Глубины пробуренных скважин колеблются от 7 до 10 м. Скважины оборудованы фильтрами, расположенными в верхней части зоны насыщения (1 – 2 м ниже минимального уровня грунтовых вод) [5]. Данная конструкция скважин, учитывая наличие выше по разрезу слоя загрязненных радионуклидами пород, позволяет исследовать именно верхний слой грунтовых вод.

Регламентный контроль объемных концентраций радионуклидов в грунтовой воде локальной зоны объекта «Укрытие» в период с 1993 по 2005 г. ограничивался определением содержания ^{90}Sr , ^{137}Cs и массовой концентрации урана (мкг/дм^3). В работе [6] исследованы особенности сезонных колебаний концентраций радионуклидов ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ и ^{241}Am в скважине 4-Г, где в период с 2003 по 2005 г. наблюдался значительный рост объемной активности ^{90}Sr .

Мониторинг макрокомпонентного состава, концентраций урана и объемных активностей радионуклидов в грунтовых водах локальной зоны объекта «Укрытие» позволяет контролировать процессы трансформации радиоактивных выпадений и миграции радионуклидов в активном слое почвы и за его пределами.

Целью настоящей работы было определение содержания радионуклидов ^3H , ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am и изотопов урана ^{234}U , ^{235}U , ^{238}U в грунтовой воде наблюдательных скважин 1-Г - 6-Г, расположенных в северной части локальной зоны объекта «Укрытие», и изучение распределения радионуклидов по различным фракциям взвесей.

Экспериментальная часть

Схема расположения наблюдательных скважин 1-Г – 6-Г в северной части локальной зоны объекта «Укрытие» показана на рис. 1. Скважины 1-Г, 2-Г и 4-Г находятся в русле потока грунтовой воды, проходящего под помещением 001/3 объекта «Укрытие» в направлении с юга на север. В случае утечки жидких радиоактивных отходов (ЖРО) из помещения 001/3 концентрация ^{90}Sr , а позднее и урана, плутония, америция и ^{137}Cs в пробах, отобранных из этих скважин, должна возрасти. Скважина 4-Г расположена ближе остальных скважин к каскадной стене объекта «Укрытие».

Скважины 5-Г и 6-Г находятся вне потока грунтовой воды, проходящего под блоком вспомогательных сооружений реакторного отделения, поэтому предполагается, что на них не должны влиять утечки ЖРО из помещения 001/3. Скважина 3-Г находится вне потока грунтовых вод, но характеризуется самой большой скоростью подъема уровня грунтовых вод (УГВ) после выпадения обильных осадков и максимальной концентрацией ^{90}Sr .

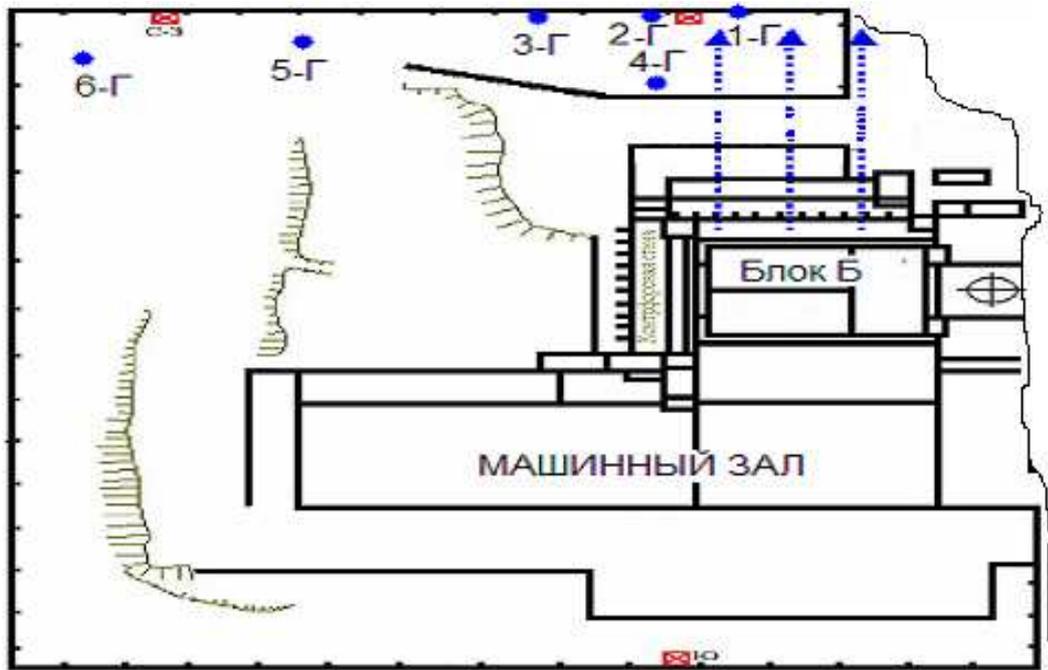


Рис. 1. Схема расположения наблюдательных скважин в северной части локальной зоны объекта «Укрытие» ЧАЭС.

Водовмещающими породами являются преимущественно песчаные отложения надпойменной террасы р. Припять. Направление потока грунтовых вод – с юго-запада на северо-восток. Разгрузка потока происходит в русло р. Припять. Скорость латеральной (горизонтальной) фильтрации грунтовых вод находится в пределах 15 – 35 м/год при расходе грунтового потока в пределах локальной зоны от 60 до 120 м³/сут. Отбор грунтовой воды производили по общепринятой методике после прокачки скважин.

Подготовка грунтовой воды включала последовательное фильтрование через бумажный фильтр «белая лента», мембранный фильтр с размером пор 0,2 мкм и концентрирование проб объемом 1,5 – 2,0 дм³ упариванием до влажных солей. Для озоления органических составляющих сухой остаток обрабатывали концентрированной азотной кислотой с добавлением перекиси водорода.

Уран, плутоний и америций определяли альфа-спектрометрическим методом после ионообменного выделения по методике, описанной в работе [7].

Для определения химического выхода урана, плутония и америция вносили метки ^{232}U , ^{242}Pu и ^{243}Am . Альфа-спектрометрические измерения выполнялись на восьмиканальном альфа-спектрометре фирмы EG&G ORTEC OСТЕТЕ РС с полупроводниковыми кремниевыми детекторами серии BU-017-450-100 ULTRA с эффективностью регистрации 25 % при

расстоянии от источника 12 мм. Собственный фон для энергий выше 3 МэВ не более 1 имп/ч.

На рис. 2 показаны типичные альфа-спектры урана (а) и плутония (б), выделенных из проб грунтовой воды скважин 1-Г - 6-Г, отобранных в 2005 г. Как следует из альфа-спектров, в воде с удовлетворительной погрешностью 15 – 30 % определены радионуклиды ^{234}U , ^{238}U , ^{235}U и $^{239+240}\text{Pu}$. Погрешность определения ^{235}U из-за малого содержания несколько выше 30 – 60 %. Следует отметить, что в альфа-спектре фракции урана (см. рис. 2а) в области энергий 4400 - 4500 кэВ не наблюдаются линии альфа-частиц, принадлежащие ^{236}U , наличие которого характерно для ЖРО, образующихся в объекте «Укрытие». Это свидетельствует о подавляющем вкладе природной составляющей урана в общее количество урана в исследуемых грунтовых водах.

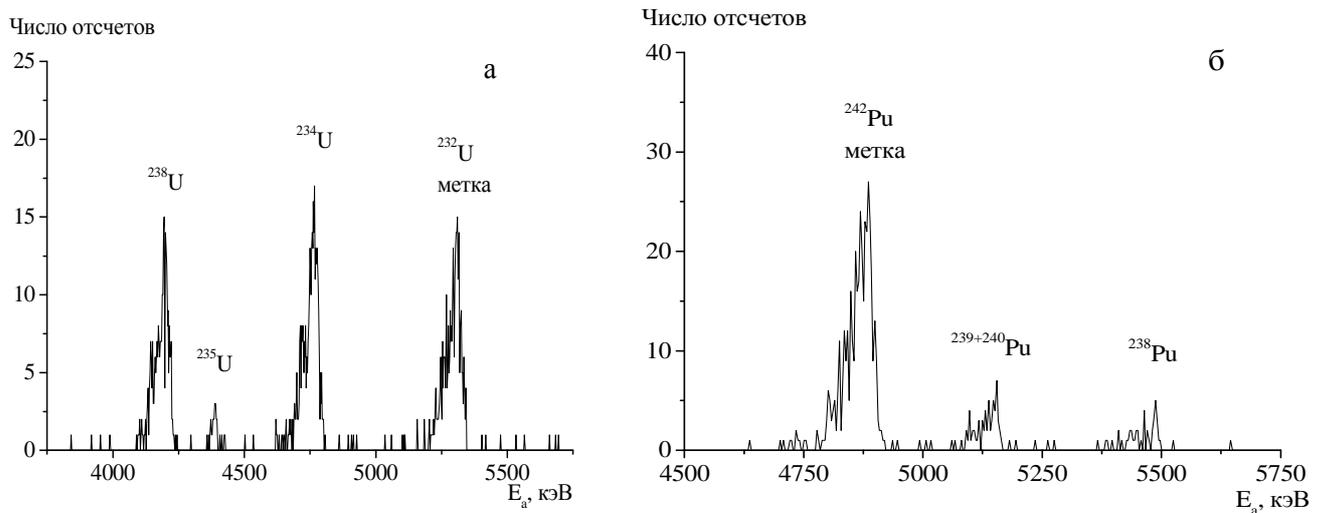


Рис. 2. Типичные альфа-спектры урана (а) и плутония (б), выделенных из проб грунтовой воды скважин 1-Г - 6-Г.

Выделение ^{90}Sr проводили экстракционно-хроматографическим методом. В качестве носителя использовали порошок фторопласта-4, импрегнированный раствором 0,4 моль/дм³ эфира дициклогексил-18-краун-6 в хлороформе. Химический выход стронция составлял 90 – 95 %. Измерения активности ^{90}Sr выполнялись с помощью бета-радиометра РУБ-01П, в состав которого входят измерительное устройство УИ-38П1 в комплекте с блоком детектирования БДЖБ-06П1.

Объемную активность ^{137}Cs в пробах грунтовой воды измеряли с помощью сцинтилляционного спектрометра, включающего блок детектирования БДЭГ-20Р2 и анализатор импульсов LP-4900В после упаривания до сухого остатка.

Объемную активность трития в пробах грунтовой воды измеряли на низкофоновом жидкостно-сцинтилляционном спектрометре-радиометре Quantulus 1220 производства фирмы LKB Wallac (Финляндия) после двойной дистилляции воды.

Результаты работы и их обсуждение

В табл. 1 представлены средние значения УГВ, а также содержание карбонатов, гидрокарбонатов, фосфатов и рН в пробах грунтовой воды, отобранных из наблюдательных скважинах 1-Г – 6-Г в 2005 г. Сезонные колебания УГВ изменяются в интервале 0,5 м. Грунтовые воды в локальной зоне пресные - минерализация до 0,5 г/л. По химическому составу они относятся к типу сульфатно-гидрокарбонатных кальциево-натриевых. Воды скважин 3-Г, 5-Г и 6-Г имеют нейтральную реакцию (рН 7,3), в скважинах 1-Г, 2-Г и 4-Г

реакция воды близка к щелочной (рН 9 - 12). Содержание карбонатов и гидрокарбонатов изменяется от 20 до 190 мг/дм³.

Таблица 1. Уровни и некоторые характеристики грунтовой воды в наблюдательных скважинах 1-Г – 6-Г

Номер скважины	Абсолютная отметка УГВ, м	Глубина уровня, м	рН	Содержание анионов, мг/дм ³		
				НСО ₃ ⁻	СО ₃ ²⁻	НРО ₄ ²⁻
1-Г	110,17	6,43	10,3	36	38	5,1
2-Г	110,16	6,51	9,3	66	23	3,3
3-Г	110,18	6,43	7,3	187	---	0,07
4-Г	110,36	6,94	11,4	---	178	0,7
5-Г	110,22	6,52	7,2	164	---	---
6-Г	110,20	6,68	7,3	153	---	---

В табл. 2 представлены результаты определения объемной активности трития, цезия, стронция, плутония и америция в пробах грунтовой воды наблюдательных скважин 1-Г – 6-Г. Средняя объемная активность радионуклидов: ³H - 4,4 ± 1,3; ¹³⁷Cs - 3,0 ± 2; ⁹⁰Sr - 130 ± ±110; ²³⁸Pu - 0,0055 ± 0,0033; ²³⁹⁺²⁴⁰Pu - 0,011 ± 0,007; ²⁴¹Am - 0,0078 ± 0,0065 кБк/м³. Средняя объемная активность ⁹⁰Sr рассчитана без учета скважины 3-Г, так как повышенная активность ⁹⁰Sr в скважине 3-Г не имеет достоверного объяснения и исследователями объясняется по-разному [5]. Объемная активность ¹³⁷Cs во всех скважинах практически одинаковая. Объемная активность плутония и америция в скважине 4-Г в 2 – 5 раз выше, чем в остальных скважинах. Концентрация трития в грунтовой воде наблюдательных скважин находилась на уровне фоновых значений.

Таблица 2. Содержание радионуклидов в грунтовой воде скважин 1-Г – 6-Г, кБк/м³

Номер скважины	¹³⁷ Cs	⁹⁰ Sr	²³⁸ Pu	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Am	³ H
1-Г	2 ± 1	90 ± 20	0,007 ± 0,005	0,014 ± 0,007	0,009 ± 0,003	3,8 ± 1,0
2-Г	< 1,0	7 ± 2	0,002 ± 0,001	0,005 ± 0,002	0,004 ± 0,001	2,8 ± 1,0
3-Г	4 ± 1	1200 ± 200	0,005 ± 0,002	0,008 ± 0,003	0,006 ± 0,003	5,0 ± 1,2
4-Г	4 ± 1	540 ± 90	0,011 ± 0,004	0,023 ± 0,006	0,025 ± 0,006	6,3 ± 1,4
5-Г	< 1,0	4 ± 1	0,006 ± 0,002	0,012 ± 0,003	0,007 ± 0,003	4,2 ± 1,2
6-Г	< 1,0	10 ± 3	0,002 ± 0,001	0,004 ± 0,002	0,003 ± 0,001	< 1,0
Среднее	3 ± 2	130 ± 110*	0,0055 ± 0,0033	0,011 ± 0,007	0,0078 ± 0,0065	4,4 ± 1,3

* Без учета скважины 3-Г.

Определить источник поступления радионуклидов в окружающую среду возможно по соотношениям между активностью радионуклидов, так как для глобальных, чернобыльских и техногенных выпадений характерны определенные соотношения радионуклидов. Так, например, для изотопов плутония глобальных выпадений отношение активности ²³⁸Pu/²³⁹⁺²⁴⁰Pu равно 0,04.

Отношение активности ¹³⁷Cs и радионуклидов, характерных для топливных выпадений (⁹⁰Sr, ²³⁸Pu и ²⁴¹Am), к активности ²³⁹⁺²⁴⁰Pu приведено в табл. 3. Для сравнения в таблице также приведены соотношения активностей радионуклидов для облученного топлива 4-го блока ЧАЭС. Как следует из табл. 3, на фоне значительного обогащения по цезию и стронцию наблюдается близость среднего значения отношения ²³⁸Pu/²³⁹⁺²⁴⁰Pu к величине отношения этих радионуклидов в базовом составе топлива 4-го энергоблока ЧАЭС. Отношение активности ²⁴¹Am / ²³⁹⁺²⁴⁰Pu в исследованных пробах грунтовой воды несколько меньше, чем в топливных выпадениях. Учитывая существенное различие в миграции плутония и америция в почвах, можно сделать вывод о достаточно близком расположении источника загрязнения по отношению к наблюдательным скважинам.

Таблица 3. Отношение активности радионуклидов к активности $^{239+240}\text{Pu}$ в грунтовой воде скважин 1-Г – 6-Г

Номер скважины	$^{137}\text{Cs}/^{239+240}\text{Pu}$	$^{90}\text{Sr}/^{239+240}\text{Pu}$	$^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$
1-Г	140	6400	0,50	0,64
2-Г	---	1400	0,40	0,80
3-Г	500	$1,5 \cdot 10^5$	0,63	0,75
4-Г	170	$2,3 \cdot 10^4$	0,48	1,1
5-Г	---	330	0,50	0,58
6-Г	---	2500	0,50	0,75
Среднее	270	----	0,50	0,77
Топливо 4-го блока ЧАЭС на 01.02.06	68	56	0,5	1,5

Концентрации урана ($\text{мкг}/\text{дм}^3$), рассчитанные по альфа-спектрометрическим измерениям активности ^{238}U и объемные активности его изотопов ^{234}U , ^{235}U и ^{238}U в грунтовой воде наблюдательных скважин 1-Г – 6-Г представлены в табл. 4.

Таблица 4. Содержание урана ($\text{мкг}/\text{дм}^3$) и активность изотопов урана ($\text{Бк}/\text{м}^3$) в грунтовой воде скважин 1-Г – 6-Г

Номер скважины	$C_u, \text{мкг}/\text{дм}^3$	^{234}U	^{235}U	^{238}U	$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$
1-Г	$0,071 \pm 0,014$	$1,1 \pm 0,3$	< МДА*	$(8,7 \pm 3,2) \cdot 10^{-1}$	1,3
2-Г	$0,088 \pm 0,016$	$1,4 \pm 0,3$	$(5,8 \pm 3,9) \cdot 10^{-2}$	$1,1 \pm 0,3$	1,3
3-Г	$0,21 \pm 0,04$	$2,5 \pm 0,5$	$(1,3 \pm 0,7) \cdot 10^{-1}$	$2,6 \pm 0,8$	0,96
4-Г	$0,097 \pm 0,018$	$1,4 \pm 0,3$	$(5,9 \pm 3,5) \cdot 10^{-2}$	$1,2 \pm 0,3$	1,2
5-Г	$0,59 \pm 0,12$	$7,4 \pm 1,4$	$(3,8 \pm 2,0) \cdot 10^{-1}$	$7,3 \pm 1,3$	1,0
6-Г	$0,052 \pm 0,013$	$(8,7 \pm 2,2) \cdot 10^{-1}$	< МДА*	$(6,5 \pm 1,9) \cdot 10^{-1}$	1,3
Среднее	$0,18 \pm 0,16$	$2,4 \pm 2,2$	$(1,6 \pm 1,5) \cdot 10^{-1}$	$2,3 \pm 2,3$	$1,2 \pm 0,2$

* Меньше минимально детектируемой активности.

Среднее содержание урана в пробах воды наблюдательных скважин 1-Г - 6-Г составляет $0,18 \pm 0,16 \text{ мкг}/\text{дм}^3$, при этом для отдельных скважин концентрация урана может отличаться почти на порядок. Изотопный состав урана в целом соответствует природному урану, массовые доли ^{235}U и ^{238}U в исследованных пробах грунтовой воды равны массовым долям ^{235}U и ^{238}U в почве (табл. 5). Следует отметить несколько повышенное содержание ^{234}U , которого на 10 – 30 % больше (колонка 6 табл. 4), чем характерно для природного урана, содержащегося в почве. Среднее отношение активности ^{234}U к активности ^{238}U в грунтовой воде, отобранной из скважин 1-Г – 6-Г равно $1,2 \pm 0,2$. Радиоэкологические исследования в районе урановых месторождений в Желтых Водах показали, что содержание ^{234}U в воде обследованных водоемов также несколько выше равновесных значений, отношение активности $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ для проб воды изменяется от 1,1 до 1,4 [9].

В исследованных пробах грунтовой воды отсутствует ^{236}U , массовая доля которого в уране неорганизованных водных скоплений объекта «Укрытие» составляет $0,18 \pm 0,01 \%$ [10].

Для выявления возможных механизмов миграции и перераспределения радионуклидов в системе «грунтовая вода – почва» было определено содержание радионуклидов в различных фракциях взвесей, выделенных из проб грунтовой воды. Данные по содержанию радионуклидов в осадках различной дисперсности, выделенных из грунтовой воды скважин 1-Г - 6-Г фильтрацией через бумажный фильтр “белая лента” (средний размер пор приблизительно 3 мкм) и мембрану с размером пор 0,2 мкм, представлены в табл. 6 и 7 соответственно. Активность радионуклидов в осадках взвесей нормирована на объем исследуемой

воды, Бк/дм³. В таблицах также приведены массы осадков, выделенных при фильтровании грунтовой воды. Масса взвесей с размером частиц более 3 мкм изменяется от 2,5 до 280 мг/дм³. Масса взвесей с размером частиц от 0,2 до 3 мкм значительно меньше и изменяется от 1,0 до 23 мг/дм³.

Таблица 5. Массовые доли изотопов урана (%) в грунтовой воде скважины 4-Г

	²³⁴ U	²³⁵ U	²³⁶ U	²³⁸ U
Скважина 4-Г	0,0078 ± 0,0007	0,71 ± 0,03	н.о.*	99,28 ± 0,04
Природный уран [8]	0,0056	0,721	---	99,274

* Не обнаружено.

Таблица 6. Содержание радионуклидов (Бк/дм³) в осадках, выделенных из грунтовой воды скважин 1-Г – 6-Г на фильтре «белая лента»

Номер скважины	Масса осадка, мг/дм ³	¹²³ Cs	⁹⁰ Sr	²³⁸ Pu	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Am	²⁴⁴ Cm
1-Г	2,5	2,9	11	7,3 · 10 ⁻³	1,6 · 10 ⁻²	3,0 · 10 ⁻²	< МДА*
2-Г	83	2,3	6,9	5,6 · 10 ⁻³	1,1 · 10 ⁻²	2,9 · 10 ⁻²	< МДА
3-Г	222	8,6	120	1,1 · 10 ⁻²	2,3 · 10 ⁻²	4,3 · 10 ⁻²	< МДА
4-Г	223	7,1	100	4,1 · 10 ⁻²	7,6 · 10 ⁻²	1,4 · 10 ⁻¹	5,1 · 10 ⁻³
5-Г	110	1,7	3,1	5,1 · 10 ⁻³	1,1 · 10 ⁻²	8,1 · 10 ⁻³	4,2 · 10 ⁻⁴
6-Г	280	2,9	5,1	1,8 · 10 ⁻²	3,9 · 10 ⁻²	4,3 · 10 ⁻²	1,6 · 10 ⁻³

* Меньше минимально детектируемой активности.

Таблица 7. Содержание радионуклидов (Бк/дм³) в осадках, выделенных из грунтовой воды скважин 1-Г – 6-Г на мембранном фильтре с размером пор 0,2 мкм

Номер скважины	Масса осадка, мг/дм ³	¹²³ Cs	⁹⁰ Sr	²³⁸ Pu	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Am	²⁴⁴ Cm
1-Г	1,7	4,1	1,9	6,5 · 10 ⁻³	1,7 · 10 ⁻²	3,6 · 10 ⁻²	1,9 · 10 ⁻³
2-Г	6,6	1,1	1,1	2,0 · 10 ⁻³	4,1 · 10 ⁻³	7,9 · 10 ⁻³	< МДА
3-Г	2,6	1,0	25	< МДА	2,7 · 10 ⁻³	7,3 · 10 ⁻³	2,9 · 10 ⁻⁴
4-Г	23	1,8	15	5,6 · 10 ⁻³	1,1 · 10 ⁻²	2,3 · 10 ⁻²	1,3 · 10 ⁻³
5-Г	2,1	0,6	1,5	1,6 · 10 ⁻³	3,2 · 10 ⁻³	9,3 · 10 ⁻³	4,7 · 10 ⁻⁴
6-Г	1,0	0,6	2,8	1,2 · 10 ⁻³	2,4 · 10 ⁻³	5,0 · 10 ⁻³	< МДА

Как следует из табл. 6 и 7, дисперсная фаза грунтовой воды содержит продукты деления (¹³⁷Cs и ⁹⁰Sr) и все основные ТУЭ (²³⁸Pu, ²³⁹⁺²⁴⁰Pu, ²⁴¹Am и ²⁴⁴Cm), которые входят в состав топливных «горячих» частиц чернобыльских выпадений [11].

В табл. 8 и 9 приведены отношения активности радионуклидов ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr, ²³⁸Pu и ²⁴¹Am к активности ²³⁹⁺²⁴⁰Pu в осадках различной дисперсности и расчетные значения этих отношений для облученного топлива 4-го блока ЧАЭС. Относительное содержание ¹³⁷Cs и ⁹⁰Sr в осадках значительно выше, чем в облученном топливе. Отношения активностей ²³⁸Pu / ²³⁹⁺²⁴⁰Pu и ²⁴¹Am / ²³⁹⁺²⁴⁰Pu в целом соответствуют значениям, характерным для облученного топлива 4-го блока ЧАЭС. В твердой фазе отношения активностей ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr и ²⁴¹Am к активности ²³⁹⁺²⁴⁰Pu отличаются от таковых в воде (см. табл. 3). Следует отметить, что среднее значение отношения активности ²⁴¹Am / ²³⁹⁺²⁴⁰Pu в воде равно 0,77 (см. табл. 3), что в два - три раза ниже, чем в твердой фазе.

Анализ соотношений между активностями ТУЭ показывает, что в осадке присутствуют топливные «горячие» частицы различной дисперсности. Их наличие в пробах грунтовой воды, особенно частиц крупнее 3 мкм, может быть объяснено только загрязнением скважин при бурении и эксплуатации за счет механического переноса «горячих» частиц из лежащих выше высокоактивных слоев почвы.

Таблица 8. Отношение активности радионуклидов к активности $^{239+240}\text{Pu}$ в осадках, выделенных из грунтовой воды скважин 1-Г – 6-Г на фильтре «белая лента»

Номер скважины	$^{137}\text{Cs}/^{239+240}\text{Pu}$	$^{90}\text{Sr}/^{239+240}\text{Pu}$	$^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$
1-Г	180	690	0,46	1,9
2-Г	210	630	0,51	2,6
3-Г	370	$5,2 \cdot 10^3$	0,48	1,9
4-Г	93	$1,3 \cdot 10^3$	0,53	1,8
5-Г	150	280	0,46	0,74
6-Г	74	130	0,47	1,1
Среднее	180	----	0,48	1,7
Топливо 4-го блока ЧАЭС на 01.02.06	68	56	0,5	1,5

Таблица 9. Отношение активности радионуклидов к активности $^{239+240}\text{Pu}$ в осадках, выделенных из грунтовой воды скважин 1-Г – 6-Г на мембранном фильтре с размером пор 0,2 мкм

Номер скважины	$^{137}\text{Cs}/^{239+240}\text{Pu}$	$^{90}\text{Sr}/^{239+240}\text{Pu}$	$^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$
1-Г	240	110	0,38	2,1
2-Г	270	270	0,49	1,9
3-Г	370	$9,3 \cdot 10^3$	---	2,7
4-Г	160	$1,4 \cdot 10^3$	0,51	2,1
5-Г	190	470	0,50	2,9
6-Г	250	$1,2 \cdot 10^3$	0,50	2,1
Среднее	250	-----	0,48	2,3
Топливо 4-го блока ЧАЭС на 01.02.06	68	56	0,5	1,5

Диффузионно-конвективный механизм переноса радионуклидов, в силу существенных различий в скоростях миграции ТУЭ, не может привести к накоплению на частицах твердой фазы указанных радионуклидов в топливных соотношениях, характерных для облученного топлива 4-го блока ЧАЭС.

Относительное распределение активности радионуклидов ^{137}Cs , ^{90}Sr , $^{239+240}\text{Pu}$ и ^{241}Am (% от суммарного содержания на взвесах и в фильтрате) по фракциям взвесей и фильтрату воды скважин 1-Г - 3-Г показано на рис. 3, а скважин 4-Г, - 6-Г - на рис. 4.

Можно предположить, что в фильтрате после фильтра с размером пор меньше 0,2 мкм радионуклиды находятся в составе коллоидных частиц и в ионо-дисперсной форме. Для всех скважин распределение радионуклидов примерно одинаковое: 30 – 70 % ^{137}Cs , 10 – 45 % ^{90}Sr , 33 – 85 % $^{239+240}\text{Pu}$ и 40 – 85 % ^{241}Am приходится на крупнодисперсную фракцию с размером частиц более 3 мкм. При этом 45 – 90 % ^{90}Sr находится в фильтрате грунтовой воды. В составе коллоидных частиц и в ионо-дисперсной форме, за исключением скважины 5-Г, находится не более 30 % $^{239+240}\text{Pu}$. Распределение ^{238}Pu и $^{239+240}\text{Pu}$ по фракциям дисперсной фазы и фильтрату с учетом погрешностей определения одинаковое, поэтому данные для ^{238}Pu на рис. 3 и 4 не приводятся. Содержание ^{241}Am в фильтрате изменяется от 4 до 17 %.

В работах [12, 13] приведены данные по фазовому распределению активности ^{137}Cs и ^{90}Sr в образцах грунтовых вод скважин 3-Г и 4-Г, отобранных в 2001 и 2003 г. Было определено, что в коллоидной и ионо-дисперсной фазе находится 25 – 30 % ^{137}Cs и 60 – 75 % ^{90}Sr . Полученные данные по фазовому распределению ^{137}Cs и ^{90}Sr в настоящей работе хорошо согласуются с данными работ [12, 13], что свидетельствует о том, что за время прошедшее с 2001 по 2005 гг. значительных изменений в фазовом распределении ^{137}Cs и ^{90}Sr не наблюдается.

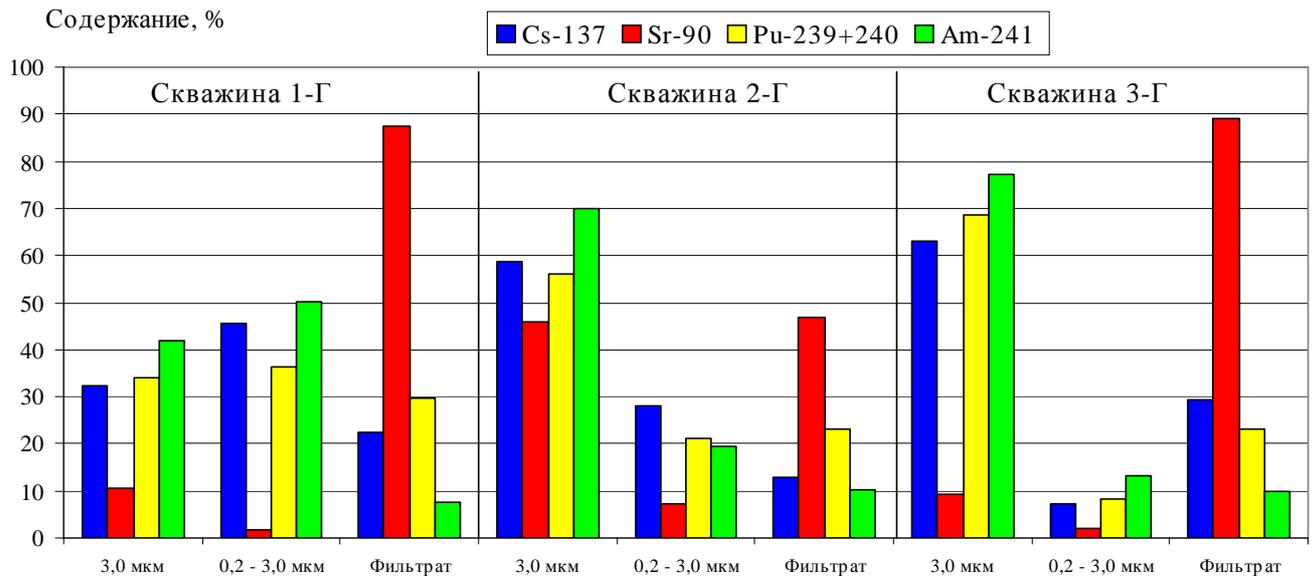


Рис. 3. Распределение радионуклидов по различным фракциям взвесей и фильтрата грунтовой воды, отобранной из наблюдательных скважин локальной зоны объекта «Укрытие».

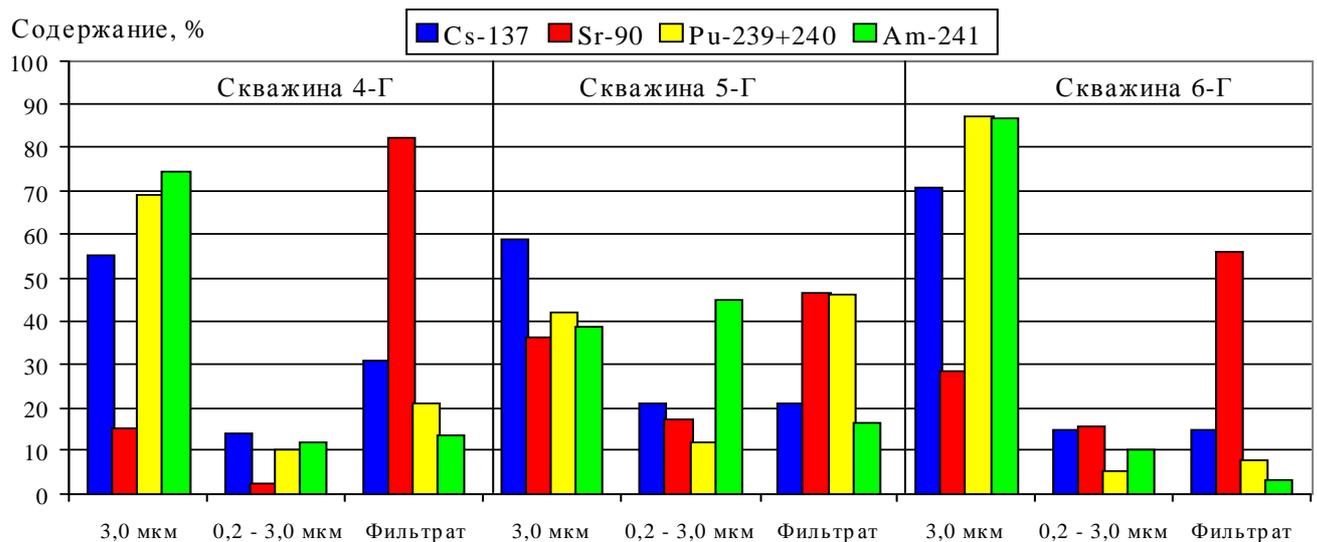


Рис. 4. Распределение радионуклидов по различным фракциям взвесей и фильтрата грунтовой воды, отобранной из наблюдательных скважин локальной зоны объекта «Укрытие».

Результаты изучения фазового распределения плутония в грунтовой воде скважин 4-Г и 4-2н по фракциям взвесей различной дисперсности представлены в табл. 10. Методом ультрафильтрации были выделены четыре фракции с размерами частиц более 3,0 мкм, 0, 2 – 3,0 мкм, 0,1 – 0,2 мкм и 0,01 – 0,1. Как следует из табл. 10, основное количество плутония (порядка 70 %) в скважине 4-2н связано с крупнодисперсной фракцией взвесей (размер частиц более 3,0 мкм.). В воде, отобранной из скважины 4-Г, распределение плутония по всем фракциям приблизительно одинаковое. Следует отметить, что с частицами размером 0,01 – 0,1 мкм связано до 27 % плутония. Данная фракция высокодисперсных и коллоидных частиц в наибольшей степени определяет миграцию плутония в водоносные горизонты.

С учетом погрешностей определения содержания изотопов плутония распределение ^{238}Pu и $^{239+240}\text{Pu}$ по различным фракциям взвесей практически одинаковое. Это говорит о том, что источник поступления и химическое поведение ^{238}Pu и $^{239+240}\text{Pu}$ в грунтовой воде наблюдательных скважин одинаковое.

Таблица 10. Распределение плутония по различным фракциям взвесей грунтовой воды, % от суммарного содержания

Номер фракции	Размер частиц, мкм	Скважина 4-Г		Скважина 4-2н	
		^{238}Pu	$^{239+240}\text{Pu}$	^{238}Pu	$^{239+240}\text{Pu}$
1	> 3,0	12	12	71	69
2	0,2 – 3,0	33	29	14	13
3	0,1 – 0,2	27	31	6,0	7,0
4	0,01 – 0,1	27	27	9,0	11

Согласно приведенным в работе [5] данным в зоне насыщения пласта грунтовых вод фазовое распределение урана следующее: раствор - коллоид – 58 %, твердая фаза (размер частиц $d > 0,1$ мкм) – 42 %. При сравнении полученных в настоящей работе данных по фазовому распределению плутония с данными работы [5] по фазовому распределению урана видно, что содержание урана в растворимых и коллоидных формах в грунтовой воде значительно больше, чем плутония. В твердой фазе плутоний может находиться как в составе «горячих» топливных частиц, так и может быть сорбирован на микрочастицах почвы.

В ходе полного радиохимического анализа проб грунтовой воды, отобранной в наблюдательных скважинах северной части локальной зоны объекта «Укрытие», определено содержание трития, радионуклидов чернобыльских выпадений и природного урана. В данной работе впервые изучено распределение ТУЭ по различным фракциям взвесей грунтовой воды локальной зоны объекта «Укрытие».

Выводы

Распределение радионуклидов по различным фракциям взвесей и в фильтрате показывает, что плутоний и америций, в основном, связаны с крупнодисперсной фракцией взвесей, т.е. находятся в составе топливных «горячих» частиц. Поэтому для получения наиболее объективных результатов по концентрациям радионуклидов в грунтовой воде необходимо производить фильтрацию проб воды через фильтры с размерами пор 0,2 – 0,45 мкм. Данные о концентрациях радионуклидов ТУЭ в грунтовой воде, полученные при радиохимическом анализе без фильтрования, могут быть значительно завышенными.

Содержание урана в грунтовых водах северной части локальной зоны находится в пределах 0,05 – 0,60 мкг/дм³, что соответствует фоновым концентрациям урана в подземных водах и не является радиологически значимым. Изотопный состав урана в грунтовой воде скважин 1-Г - 6-Г соответствует природному урану, т.е. природный уран вносит основной вклад в активность урана в грунтовой воде наблюдательных скважин локальной зоны объекта «Укрытие».

Отношения активностей $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ в грунтовой воде и взвесах различной дисперсности с учетом погрешности определения совпадают с расчетными значениями для облученного топлива 4-го блока ЧАЭС. Отношения активностей $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ в грунтовой воде наблюдательных скважин в 1,5 – 2 раза меньше расчетного значения для облученного топлива 4-го блока ЧАЭС.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Новиков А.П., Павлоцкая Ф.И., Горяченкова Т.А. и др. // Радиохимия. - 1998. - Т. 40, № 3. – С. 453 - 461.
2. Павлоцкая Ф.И., Новиков А.П., Горяченкова Т.А. и др. // Радиохимия. - 1998. - Т. 40, № 3. – С. 462 - 467.
3. Karsting A.B., Efurud D.W., Finnegan D.L. et.al. // Nature. - 1999. – Vol. 397, No. 7. – P. 56 – 59.
4. Dai M., Kelley J.M., Buessler K.O. // Environ. Sci. Technol. - 2002. - Vol. 36, No. 17. - P. 3690 – 3699.
5. Павлюченко Н.И., Хан В.Е., Малюк И.А. Хоренко И.П. Мониторинг неорганизованных выбросов из объекта «Укрытие» // Проблемы Чернобиля. – 2001. – Вип. 7. – С. 170 – 180.

6. Хан В.Е., Одинцов А.А., Калиновский А.К. и др. Изучение особенностей радионуклидного состава грунтовой воды скважины 4-Г локальной зоны объекта «Укрытие» // Проблемы безопасности атомных электростанций і Чернобиля. – 2006. – Вип. 4. – С. 111 – 120.
7. Одинцов А.А., Пазухин Э.М., Хан В.Е. Методика одновременного определения содержания урана и трансурановых элементов в грунтовых водах и жидких радиоактивных отходах объекта «Укрытие» // Радиохимия. - 2005. - Т. 47, № 5. - С. 467 - 471.
8. Фролов В. В. Ядерно-физические методы контроля делящихся веществ. – М.: Энергоатомиздат, 1989. – 184 с.
9. *Radiological conditions in the Dnieper river basin.* – Vienna: IAEA, 2006. - 185 p.
10. Стрихарь О.Л., Иванов Е.Н. Разработка методик экспрессного изотопного и элементного анализа проб объекта “Укрытие” // Проблемы Чернобиля. - 1999. - Вип. 4. - С. 41 – 44.
11. Одинцов А.А., Пазухин Э.М. Метод определения изотопного состава урана, плутония, америция и кюрия в "горячих" частицах и облученном ядерном топливе // Радиохимия. – 2004. – Т. 46, № 3. - С. 283 – 288.
12. Руденко Л.И., Хан В.Е., Панасюк Н.И. Физико-химическое обоснование механизма миграции радионуклидов из объекта «Укрытие» и его промплощадки в грунтовые воды // Радиохимия. - 2003. – Т. 45, № 3. – С. 268 – 272.
13. Руденко Л.И., Хан В.Е. Вклад микрочастиц в механизм миграции радионуклидов из объекта «Укрытие» и его промплощадки в грунтовые воды // Радиохимия. - 2005. – Т. 47, № 1. – С. 89 – 90.

Поступила в редакцию 29.01.07

11 ВМІСТ РАДІОНУКЛІДІВ У ФІЛЬТРАТІ ТА ДИСПЕРСНІЙ ФАЗІ ГРУНТОВОЇ ВОДИ СПОСТЕРЕЖНИХ СВЕРДЛОВИН ОБ'ЄКТА «УКРИТТЯ»

О. О. Одинцов, В. Є. Хан, В. О. Краснов, Е. М. Пазухін

Наведено дані вимірювання об'ємної активності ^3H , ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{234}U , ^{235}U , ^{238}U , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ та ^{241}Am у ґрунтовій воді та дисперсній фазі спостережних свердловин 1-Г - 6-Г північної частини локальної зони об'єкта «Укриття» ЧАЕС. Визначено розподіл радіонуклідів по фракціям мулу та фільтрату ґрунтовій воді обстежених свердловин. Установлено, що основний внесок забруднення ґрунтовій воді ураном складають ізотопи природного урану $^{234,235,238}\text{U}$. Показано, що співвідношення між активностями ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ та ^{241}Am відповідають співвідношенням в опроміненому паливі 4-го блока ЧАЕС.

11 CONTENTS OF RADIONUCLIDES IN SOLUTION AND PARTICLES OF GROUND WATERS OF LOCAL AREA OF "UKRYTTYA" OBJEKT

A. A. Odintsov, V. E. Khan, V. A. Krasnov, E. M. Pazukhin

The experimental results of definition of volumetric activity ^3H , ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{234}U , ^{235}U , ^{238}U , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{241}Am in groundwater of observant chinks 1-G - 6-G of northern part of a local zone of object "Shelter" are submitted. The distribution of radionuclides on various fractions of suspensions of earth water is determined. Is shown that the activity ratio between ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{241}Am corresponds to those for the irradiated fuel of 4-th block ChNPP.