

## ИЗУЧЕНИЕ ОСОБЕННОСТЕЙ РАДИОНУКЛИДНОГО СОСТАВА ГРУНТОВОЙ ВОДЫ СКВАЖИНЫ 4-Г ЛОКАЛЬНОЙ ЗОНЫ ОБЪЕКТА «УКРЫТИЕ»

В. Е. Хан, А. А. Одинцов, А. К. Калиновский, П. Н. Дубенко,  
Э. М. Пазухин, В. А. Краснов

*Институт проблем безопасности АЭС НАН Украины, Чернобыль*

Представлены экспериментальные результаты определения радионуклидного и макрокомпонентного состава грунтовой воды в скважине 4-Г локальной зоны объекта «Укрытие». Показано, что изменение макрокомпонентного состава и увеличение рН грунтовой воды могут вызывать увеличение содержания радионуклидов  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$  и  $^{241}\text{Am}$  за счет выщелачивания их из почвы и «горячих» частиц. Изотопный состав урана в грунтовой воде скважины 4-Г соответствует природному урану.

### Введение

Результаты систематического контроля состояния грунтовых вод локальной зоны объекта «Укрытие», начатого в 1993 г. [1 - 5], остаются важным источником экспериментальных данных, необходимых как для оценки влияния объекта «Укрытие» на окружающую среду, так и для работ по преобразованию объекта «Укрытие» 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. Мониторинг макрокомпонентного состава, концентраций урана и объемных активностей радионуклидов в грунтовых водах локальной зоны объекта «Укрытие» позволяет контролировать процессы трансформации радиоактивных выпадений, локализованных в активном слое.

Регулярный радиохимический анализ проб грунтовых вод из скважин необходим для определения динамики изменения концентраций радионуклидов и выявления возможной утечки жидких радиоактивных отходов (ЖРО) из помещений объекта «Укрытие», на что указывал бы рост объемной активности радионуклидов в пробах воды, отобранных из скважин (1-Г, 2-Г, 4-Г).

### Постановка задачи

Начиная с 2004 г., в ближайшей к объекту «Укрытие» скважине 4-Г наблюдается рост концентрации  $^{90}\text{Sr}$ , чередующийся с ее снижением [6, 8]. При этом концентрация  $^{137}\text{Cs}$  остается практически на прежнем уровне 5 – 10 Бк/дм<sup>3</sup>.

В январе 2005 г. содержание  $^{90}\text{Sr}$  в указанной скважине превысило ранее наблюдаемые значения более чем в 100 раз и контрольную концентрацию для данной скважины (200 Бк/дм<sup>3</sup> [7]) более чем в два раза, достигнув 420 Бк/дм<sup>3</sup>.

В 2000 г. в скважине 4Г были выполнены гамма-спектрометрические исследования, которые показали, что ниже «активного» слоя в интервале залегания доаварийных техногенных грунтов и аллювиальных отложений, где наблюдается повышенное значение мощности экспозиционной дозы (МЭД), спектр в скважине характерен для поверхностного загрязнения ствола скважины  $^{137}\text{Cs}$  [9]. Поэтому увеличение МЭД в скважине на этих уровнях обусловлено механическим перемещением радиоактивных частиц при бурении скважины из «активного» слоя в нижележащие горизонты.

Характер изменений концентрации  $^{90}\text{Sr}$  на протяжении 2004 - 2005 гг. в настоящее время не позволяет утверждать, что происходит его миграция вместе с ЖРО из объекта «Укрытие» в геологическую среду.

Целью настоящей работы было изучение динамики изменения содержания радионуклидов в грунтовой воде скважины 4-Г, расположенной в северной части локальной зоны объекта «Укрытие», и выявление возможных причин, вызвавших резкое повышение объемной активности  $^{90}\text{Sr}$  в воде. Для этого были выполнены дополнительные комплексные исследования, которые включали:

- а) изучение динамики изменения в воде из скважины 4-Г объемной концентрации  $^{90}\text{Sr}$ , трансурановых элементов (ТУЭ)  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$  и  $^{244}\text{Cm}$ , а также определение содержания и изотопного состава урана;
- б) гамма-каротаж скважины.

### Экспериментальная часть

Определение содержания  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$  и  $^{234,235,236,238}\text{U}$  в исследуемых пробах грунтовой воды, отобранных в скважине 4-Г, производили по методикам, которые используются при выполнении регламентных работ по экологическому мониторингу в локальной зоне объекта «Укрытие».

Объемную активность урана, плутония и америция определяли альфа-спектрометрическими измерениями после ионообменного разделения [10]. Для определения химического выхода вносили метки  $^{232}\text{U}$ ,  $^{242}\text{Pu}$  и  $^{243}\text{Am}$  с известной активностью. Измерения выполнялись на восьмиканальном альфа-спектрометре фирмы EG&G ORTEC OСТЕТЕ РС.

Выделение  $^{90}\text{Sr}$  проводили экстракционно-хроматографическим методом. В качестве носителя использовали порошок фторопласта-4, импрегнированный раствором 0,4 моль/дм<sup>3</sup> эфира дициклогексил-18-краун-6 в хлороформе. Химический выход стронция составлял 90 - 95 %. Измерения активности  $^{90}\text{Sr}$  выполнялись с помощью бета-радиометра РУБ-01П, в состав которого входят измерительное устройство УИ-38П1 в комплекте с блоком детектирования БДЖБ-06П1.

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

Массовую концентрацию урана определяли с помощью люминесцентного спектрометра с возбуждением от импульсного азотного лазера ИЛГИ-503.

Гамма-каротаж по стволу скважины выполняли геологоразведочным сцинтилляционным прибором СРП-68-02 согласно методике, изложенной в инструкции [11]. При этом для снижения влияния низкоэнергетического гамма-излучения и выравнивания дозовой чувствительности прибора сцинтилляционный кристалл измерительного зонда находился в защитном свинцово-железном экране: 2,5 мм Fe + 2 мм Pb.

### Результаты работы и их обсуждение

В 2005 г. гамма-каротаж скважины 4-Г с шагом 5 см выполнен дважды летом и осенью. Результаты измерений МЭД представлены на рис. 1. Интервал обследованных по гамма-излучению горизонтов находился ниже «активного» слоя на уровне доаварийных техногенных грунтов и аллювиальных отложений. Расхождение между данными гамма-каротажа не превышает суммарной погрешности измерений, лежащей в пределах 20 %.

При оценке погрешности измерений принимали во внимание, что погрешность прибора равна 10 %, а погрешности, связанные со статистическими флуктуациями гамма-поля и размещением измерительного зонда в скважине, не превышают 10 %.

Наибольшие расхождения наблюдались в интервале колебания уровня грунтовых вод (УГВ) и достигали 35 %.

Для выяснения динамики изменения МЭД на УГВ провели сравнительный анализ результатов гамма-каротажа скважины 4-Г, выполненных в 2005 и 1995 г. (см. рис. 1).

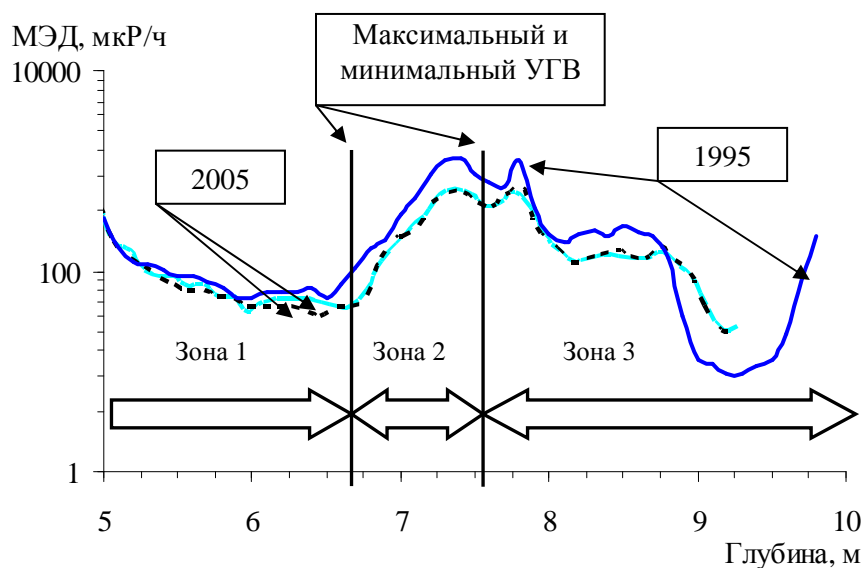


Рис.1. Результаты гамма-каротажа скважины 4-Г.

Данные гамма-каротажа за 1995 г. приведены в отчете [11]. Для корректного сравнения они были пересчитаны с учетом радиоактивного распада радионуклидов, входящих в топливную матрицу на 2005 г. Это вызвано тем, что, например, если в 1995 г. вклад  $^{137}\text{Cs}$  в суммарную гамма-активность облученного топлива составлял 91 %, то в 2005 г. уже 99 %, при этом активность  $^{137}\text{Cs}$  уменьшилась на 20 %.

На представленных графиках каротажных кривых (см. рис 1) можно выделить три зоны; во-первых, зона 1 - нижняя часть зоны аэрации - через нее происходит подпитка грунтовых вод инфильтрационными, проходящими через активный слой; во-вторых, зона 2 - колебания УГВ – зона, периодически омываемая грунтовыми водами; в-третьих, зона 3 - зона постоянного обводнения. Границы зоны 2 выбирались на основании максимального и минимального УГВ, наблюдаемых в скважине 4-Г за период с 1995 по 2005 г.

Статистический анализ показал, что наблюдаемое расхождение данных, полученных в 1995 и 2005 гг. на участке зоны 1 при 20 % погрешности измерений с вероятностью 0,95, несущественно и, следовательно, кривые тождественны. В то же время на участках зон 2 и 3 расхождения значительные и не могут быть объяснены случайными факторами.

В результате можно сделать следующие выводы.

1. Наблюдаемое равенство значений МЭД на первом участке и практически сохранение формы каротажной кривой указывают на отсутствие значительного поступления радионуклидов за счет вертикальной миграции из «активного» слоя.

2. Изменение на участках 2 и 3 формы каротажной кривой говорит о том, что этот интервал загрязнен радиоактивными частицами различной активности. Относительно крупные топливные частицы находятся практически на одном месте, а мелкодисперсная фракция радиоактивных частиц за период, прошедший с 1995 г., как растворялась, так и мигрировала по направлению потока грунтовых вод.

Известно, что радиоактивные выпадения, образовавшие «активный» слой, формировались на разных этапах активной стадии аварии, поэтому они различаются как по структуре и размерам, так и по физико-химическим свойствам, влияющим на их устойчивость к воздействию внешних факторов. Среди них присутствуют как трудно-, так и легкорастворимые формы [13]. Поэтому, например, радиоактивные частицы размером менее 10 мкм практически полностью трансформировались (растворились) в течение первых 5 - 10

лет, прошедших после аварии на 4-м блоке ЧАЭС в условиях, характерных для ближней зоны ЧАЭС [14].

Анализ макрокомпонентного состава воды из скважины 4-Г показал, что за период ноябрь 2000 г. – октябрь 2003 г. концентрация фосфатов ( $\text{HPO}_4^{2-}$ -ионов) неоднократно достигала величины  $24 \text{ мг/дм}^3$  (рис. 2), что значительно превышает количества, характерные для грунтовых вод данного региона.

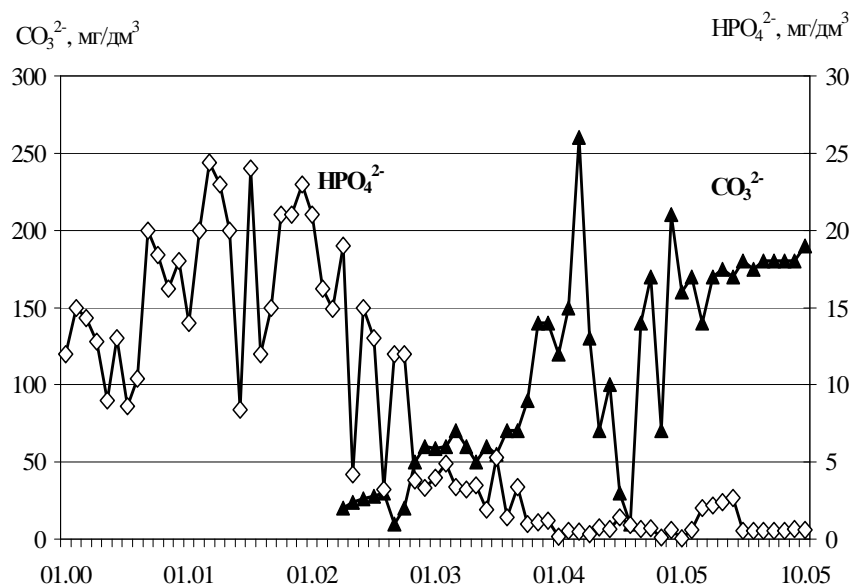


Рис. 2. Изменение содержания ионов  $\text{CO}_3^{2-}$  и  $\text{HPO}_4^{2-}$  в воде скважины 4-Г.

Для сравнения, ортофосфаты в водном скоплении в помещении 001/3 находятся в количествах, не превышающих десятые доли миллиграмма  $\text{HPO}_4^{2-}$  на  $1 \text{ дм}^3$ . В настоящее время содержание ортофосфатов в скважине 4-Г снизилось до величин менее  $1 \text{ мг/дм}^3$ . Это можно объяснить образованием труднорастворимых фосфатов тяжелых металлов, которые при высоких значениях рН (11 - 12) выпадают в осадок. Наряду с этим, начиная с 2003 г., наблюдается значительное увеличение концентрации карбонатов ( $\text{CO}_3^{2-}$ ), содержание которых в воде скважины 4-Г в 2005 г. составило порядка  $200 \text{ мг/дм}^3$ . Снижение концентрации фосфатов с одновременным увеличением концентрации карбонат ионов может вызывать образование растворимых комплексных соединений урана и плутония.

Вместе с тем, начиная с августа 2002 г., величина рН грунтовой воды скважины 4-Г значительно возросла и на сегодняшний день составляет 11 - 12 (рис. 3). Такое высокое значение рН не характерно как для подземных вод в районе объекта «Укрытие», так и водных скоплений в помещениях объекта «Укрытие». Для сравнения: величина рН воды в помещении 001/3 не превышает 9,5, а грунтовых вод 6 - 8. Как следует из рис. 3, с увеличением рН произошло увеличение объемной активности  $^{90}\text{Sr}$  в воде скважины 4-Г от нескольких Бк/дм<sup>3</sup> до 300 – 400 Бк/дм<sup>3</sup>. Следует отметить, что наблюдается периодичное повышение и снижение концентрации  $^{90}\text{Sr}$  в воде скважины 4-Г. Анализ сезонных колебаний УГВ и динамики изменения объемной концентрации  $^{90}\text{Sr}$  показал, что увеличение концентрации  $^{90}\text{Sr}$  в воде скважины 4-Г с некоторым запаздыванием следует за увеличением УГВ. Многолетние измерения УГВ в скважине 4-Г и скважинах, расположенных в непосредственной близости от скважины 4-Г, показали, что за последние годы наблюдается повышение УГВ [6].

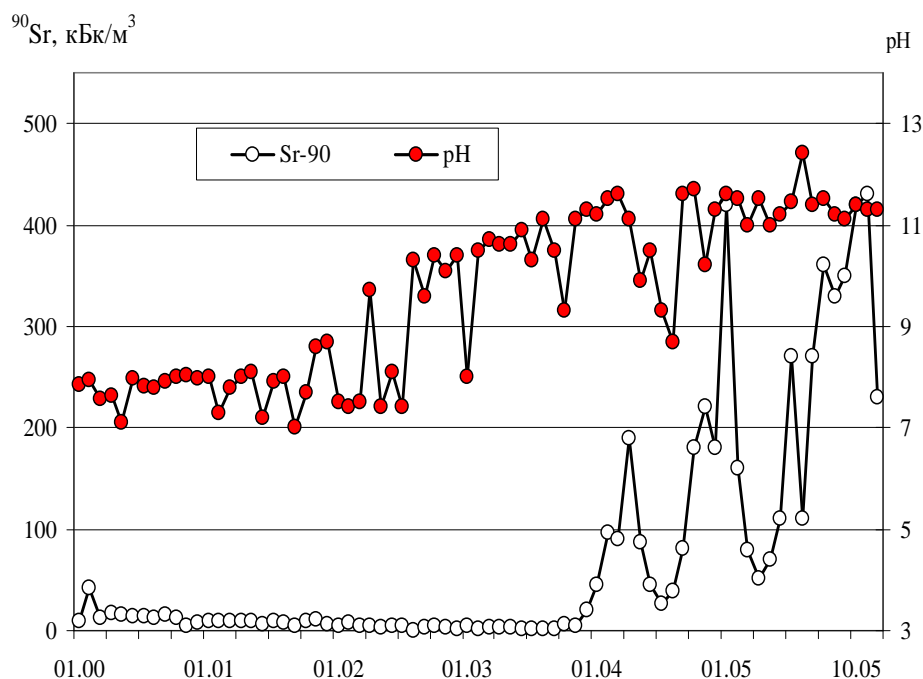


Рис. 3. Динамика изменения активности  $^{90}\text{Sr}$  и pH в грунтовой воде скважины 4-Г.

На рис. 4 и 5 представлены типичные альфа-спектры урана, плутония и америция, выделенные из воды скважины 4Г. Как следует из альфа-спектров, в воде с удовлетворительной погрешностью определены  $^{234}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$  и  $^{241}\text{Am}$ .

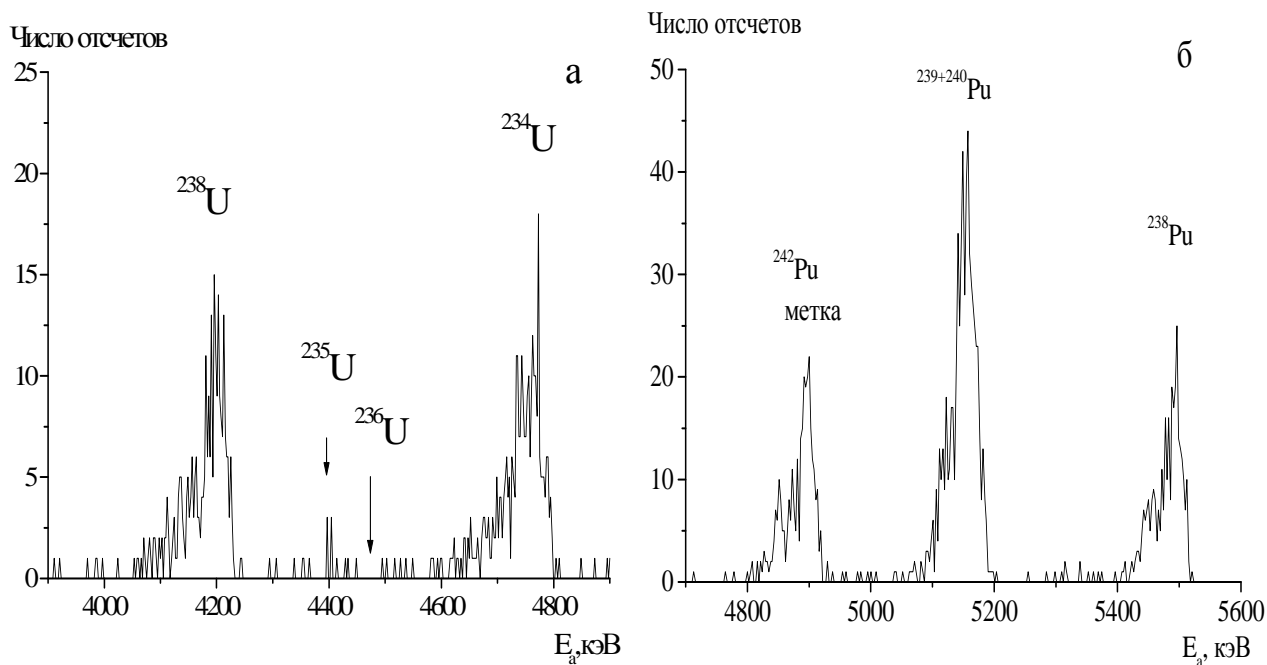


Рис. 4. Альфа-спектры урана (а) и плутония (б) проб грунтовой воды скважины 4-Г.

Следует отметить, что в альфа-спектре фракции урана (см. рис. 4а) в области энергий 4400 – 4500 кэВ не наблюдаются линии альфа-частиц, которые принадлежат  $^{236}\text{U}$ , т. е. в

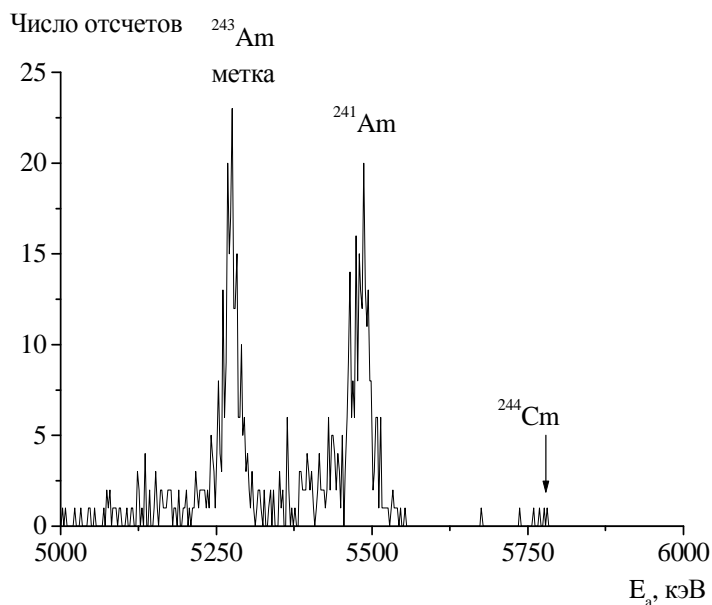


Рис. 5. Альфа-спектр америция, выделенного из воды скважины 4-Г.

пробах грунтовой воды из скважины 4Г  $^{236}\text{U}$  отсутствует или его содержание меньше минимально детектируемой активности при данных условиях измерений. В альфа-спектре америций-кюриевой фракции (см. рис. 5) в области энергий 5750 - 5800 кэВ наблюдаются альфа-линии, принадлежащие  $^{244}\text{Cm}$ . В исследованных пробах воды из скважины 4-Г присутствуют все основные ТУЭ, которые наработаны в облученном топливе 4-го блока ЧАЭС.

В табл. 1 представлены результаты определения объемной активности плутония и америция, а также цезия и стронция в пробах воды, отобранной в скважине 4-Г в 2005 г. Средняя удельная активность ТУЭ в период наблюдения составила:  $^{238}\text{Pu}$  - 0,081,  $^{239+240}\text{Pu}$  - 0,17,  $^{241}\text{Am}$  - 0,094 Бк/дм<sup>3</sup>.

Таблица 1. Содержание радионуклидов в грунтовой воде скважины 4Г, Бк/дм<sup>3</sup>

| Дата отбора | $^{137}\text{Cs}$ | $^{90}\text{Sr}$ | $^{238}\text{Pu}$ | $^{239+240}\text{Pu}$ | $^{241}\text{Am}$ |
|-------------|-------------------|------------------|-------------------|-----------------------|-------------------|
| 01.12.04*   | 5 ± 1             | 130 ± 30         | 0,55 ± 0,11       | 1,1 ± 0,2             | 0,35 ± 0,11       |
| 01.12.04    | 11 ± 2            | 180 ± 30         | 0,076 ± 0,022     | 0,17 ± 0,05           | 0,077 ± 0,025     |
| 11.01.05    | 3 ± 1             | 420 ± 70         | н.о.**            | н.о.                  | н.о.              |
| 02.02.05*   | 3 ± 1             | 270 ± 50         | 0,063 ± 0,017     | 0,13 ± 0,04           | 0,017 ± 0,007     |
| 02.02.05    | 5 ± 1             | 120 ± 30         | 0,071 ± 0,024     | 0,18 ± 0,06           | 0,23 ± 0,08       |
| 10.02.05*   | 5 ± 1             | 84 ± 22          | 0,0024 ± 0,008    | 0,0055 ± 0,0017       | 0,0076 ± 0,028    |
| 10.02.05    | 4 ± 1             | 80 ± 20          | 0,0037 ± 0,0012   | 0,0069 ± 0,0023       | н.о.              |
| 17.02.05*   | 5 ± 1             | 230 ± 50         | 0,015 ± 0,006     | 0,029 ± 0,008         | 0,031 ± 0,012     |
| 17.02.05    | 6 ± 1             | 51 ± 12          | 0,0064 ± 0,0022   | 0,012 ± 0,003         | 0,026 ± 0,006     |
| 24.02.05*   | 7 ± 2             | 170 ± 40         | 0,055 ± 0,012     | 0,11 ± 0,02           | 0,059 ± 0,018     |
| 24.02.05    | 5 ± 1             | 71 ± 16          | 0,014 ± 0,004     | 0,026 ± 0,05          | 0,046 ± 0,009     |
| 09.03.05    | 6 ± 1             | 110 ± 20         | н.о.              | н.о.                  | н.о.              |
| 12.04.05    | 3 ± 1             | 270 ± 50         | 0,038 ± 0,012     | 0,073 ± 0,018         | 0,11 ± 0,02       |
| 13.05.05    | 4 ± 1             | 110 ± 20         | н.о.              | н.о.                  | н.о.              |
| 02.06.05    | 4 ± 1             | 270 ± 50         | н.о.              | н.о.                  | н.о.              |
| 07.09.05    | 2 ± 1             | 350 ± 70         | н.о.              | н.о.                  | н.о.              |
| 07.11.05    | 5 ± 1             | 430 ± 80         | 0,0042 ± 0,0011   | 0,0085 ± 0,0016       | 0,017 ± 0,003     |
| 07.12.05    | 5 ± 1             | 230 ± 50         | 0,0035 ± 0,0014   | 0,0078 ± 0,0018       | 0,0094 ± 0,0022   |

\* Отбор без предварительной прокачки скважины.

\*\* Не определяли.

Отношение активности радионуклидов  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ , и  $^{241}\text{Am}$  к активности  $^{239+240}\text{Pu}$  приведено в табл. 2. Соотношения радионуклидов в грунтовой воде значительно отличается от такового в ЖРО объекта «Укрытие», например из помещения 001/3, где 80 % альфа-активности составляет  $^{241}\text{Am}$ . Как следует из табл. 2, на фоне значительного обогащения по цезию и стронцию наблюдается близость значения среднего отношения  $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$  (в пределах разброса данных) к величине отношения этих радионуклидов в базовом составе

топлива 4-го энергоблока ЧАЭС. Учитывая существенное различие в миграции этих ТУЭ в почвах, можно сделать вывод о достаточно близком расположении источника загрязнения по отношению к скважине 4-Г.

**Таблица 2. Отношение активности радионуклидов к активности  $^{239+240}\text{Pu}$  ( $A_i/A_{239+240\text{Pu}}$ ) в грунтовой воде скважины 4Г, отн. ед.**

| Дата отбора                         | $^{137}\text{Cs}/^{239+240}\text{Pu}$ | $^{90}\text{Sr}/^{239+240}\text{Pu}$ | $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ | $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ |
|-------------------------------------|---------------------------------------|--------------------------------------|---------------------------------------|---------------------------------------|
| 01.12.04*                           | 4,5                                   | 118                                  | 0,50                                  | 0,32                                  |
| 01.12.04                            | 65                                    | 1100                                 | 0,45                                  | 0,45                                  |
| 02.02.05*                           | 23                                    | 2100                                 | 0,48                                  | 0,13                                  |
| 02.02.05                            | 28                                    | 660                                  | 0,39                                  | 1,3                                   |
| 10.02.05*                           | 900                                   | 15000                                | 0,44                                  | 1,4                                   |
| 10.02.05                            | 580                                   | 12000                                | 0,54                                  | ---                                   |
| 17.02.05*                           | 172                                   | 7900                                 | 0,52                                  | 1,1                                   |
| 17.02.05                            | 500                                   | 4300                                 | 0,53                                  | 2,2                                   |
| 24.02.05*                           | 58                                    | 1400                                 | 0,45                                  | 0,49                                  |
| 24.02.05                            | 50                                    | 2700                                 | 0,54                                  | 1,8                                   |
| 12.04.05                            | 41                                    | 3700                                 | 0,52                                  | 1,5                                   |
| 07.11.05                            | 590                                   | 50600                                | 0,49                                  | 2,0                                   |
| 07.12.05                            | 640                                   | 29500                                | 0,45                                  | 1,2                                   |
| Среднее                             | $2,5 \cdot 10^2$<br>(5 – 590)         | $1,0 \cdot 10^4$<br>(120 – 50600)    | 0,49<br>(0,39 – 0,54)                 | 1,2<br>(0,13 – 2,2)                   |
| Топливо 4-го блока ЧАЭС на 31.10.05 | 68                                    | 57                                   | 0,50                                  | 1,5                                   |

\* Отбор без предварительной прокачки скважины.

Среднее содержание урана в воде скважины 4-Г составляет  $0,75 \text{ мкг/дм}^3$  (табл. 3). При этом изотопный состав соответствует природному урану, массовые доли которого хорошо известны:  $^{234}\text{U}$  – 0,0056,  $^{235}\text{U}$  – 0,721 и  $^{238}\text{U}$  – 99,274 % [15].

В альфа-спектрах урана из проб воды скважины 4-Г отсутствует  $^{236}\text{U}$ , наличие которого характерно для ЖРО, образующихся в объекте «Укрытие». Это может свидетельствовать о подавляющем вкладе природного урана в общее количество урана в воде скважины 4-Г.

**Таблица 3. Содержание урана ( $\text{мкг/дм}^3$ ) и массовые доли изотопов урана (%) в грунтовой воде скважины 4Г**

| Дата отбора | $C_u, \text{ мкг/дм}^3$ | $^{234}\text{U}$ | $^{235}\text{U}$ | $^{236}\text{U}$ | $^{238}\text{U}$ |
|-------------|-------------------------|------------------|------------------|------------------|------------------|
| 10.02.05    | 0,94                    | 0,0057           | 0,67             | ---              | 99,31            |
| 17.02.05    | 1,3                     | 0,0078           | 0,74             | ---              | 99,26            |
| 24.02.05    | 0,41                    | 0,0066           | 0,63             | ---              | 99,37            |
| 24.02.05    | 0,95                    | 0,0068           | 0,78             | ---              | 99,19            |
| 09.03.05    | 1,4                     | н.о.*            | н.о.             | н.о.             | н.о.             |
| 12.04.05    | 0,11                    | 0,0094           | 0,79             | ---              | 99,20            |
| 07.11.05    | 0,13                    | н.о.             | н.о.             | н.о.             | н.о.             |
| Среднее     | 0,75                    | 0,0073           | 0,72             | ---              | 99,29            |

\* Не определяли.

Распределение урана и радионуклидов по фракциям взвесей различной дисперсности, выделенных из грунтовой воды скважины 4-Г фильтрацией через бумажный фильтр “белая лента” и мембрану с размером пор 0,2 мкм, представлено в табл. 4.

Таблица 4. Содержание урана (г/г) и радионуклидов (Бк/г) в осадках, выделенных из грунтовой воды скважины 4-Г

| Размер частиц, мкм | Дата отбора | U                   | <sup>123</sup> Cs | <sup>90</sup> Sr | <sup>238</sup> Pu | <sup>239+240</sup> Pu | <sup>241</sup> Am | <sup>244</sup> Cm |
|--------------------|-------------|---------------------|-------------------|------------------|-------------------|-----------------------|-------------------|-------------------|
| > 3,0              | 12.04.05    | $1,3 \cdot 10^{-6}$ | 78                | 310              | 0,35              | 0,65                  | 1,1               | 0,034             |
| 0,2 – 3,0          |             | $3,9 \cdot 10^{-6}$ | 100               | 950              | 0,15              | 0,29                  | 0,78              | < МДА*            |
| > 3,0              | 07.12.05    | н.о.                | 290               | 1100             | 3,68              | 7,63                  | 13,4              | 0,55              |
| 0,2 – 3,0          |             | н.о.                | 60                | 790              | 0,29              | 0,64                  | 1,2               | 0,056             |

\* Меньше минимально детектируемой активности.

Содержание урана в осадке с размером частиц более 3 мкм составляет  $1,3 \cdot 10^{-6}$  г/г (табл. 4), что несколько ниже средних значений для почвы  $3 - 4 \cdot 10^{-6}$  г/г [16]. Изотопный состав урана, выделенного из осадка, отличается от такового в воде скважины 4-Г. В альфа-спектре урана, выделенного из осадка на фильтре «белая лента», присутствуют линии, характерные для <sup>236</sup>U. Массовые доли изотопов урана в осадке составляют: <sup>234</sup>U – 0,011, <sup>235</sup>U – 0,92, <sup>236</sup>U – 0,088 и <sup>238</sup>U – 99,02 %. Это говорит о том, что в дисперсной фазе грунтовой воды присутствуют как частицы почвы, так и топливные «горячие» частицы. Растворение матрицы «горячих» частиц и выщелачивание радионуклидов грунтовой водой с pH 11 приводит к загрязнению грунтовой воды радионуклидами <sup>90</sup>Sr, <sup>137</sup>Cs, <sup>238</sup>Pu, <sup>239+240</sup>Pu и <sup>241</sup>Am. Анализ соотношений между активностями ТУЭ (табл. 5) показывает, что в осадке присутствуют топливные «горячие» частицы [12, 13].

Таблица 5. Отношение активности радионуклидов к активности <sup>239+240</sup>Pu (A<sub>i</sub>/A<sub>239+240Pu</sub>) в осадках, выделенных из грунтовой воды скважины 4-Г, отн. ед.

| Размер частиц, мкм | <sup>123</sup> Cs | <sup>90</sup> Sr | <sup>238</sup> Pu | <sup>241</sup> Am | <sup>244</sup> Cm |
|--------------------|-------------------|------------------|-------------------|-------------------|-------------------|
| > 3,0              | 120               | 480              | 0,53              | 1,7               | 0,052             |
| 0,2 – 3,0          | 344               | 3300             | 0,52              | 2,6               | ----              |
| > 3,0              | 38                | 144              | 0,48              | 1,7               | 0,072             |
| 0,2 – 3,0          | 93                | 1230             | 0,45              | 1,9               | 0,087             |

Их наличие в пробах грунтовой воды, особенно частиц крупнее 3 мкм, может быть объяснено только загрязнением самой скважины, поскольку вклад грубодисперсной твердой фазы в процесс миграции радионуклидов чрезвычайно мал по сравнению, например, с диффузией в раствор. С другой стороны, диффузионный механизм переноса радионуклидов, в силу существенных различий в скоростях миграции ТУЭ, не может привести к накоплению на частицах твердой фазы указанных элементов в «топливных» соотношениях. Осадок с размером частиц 0,2 – 3,0 мкм значительно больше обогащен радионуклидами <sup>137</sup>Cs и <sup>90</sup>Sr относительно <sup>239+240</sup>Pu, чем осадок с размером частиц более 3 мкм.

В табл. 6 показана степень перехода (% от содержания в почве) в растворимое состояние радионуклидов при обработке навесок почвы раствором 0,1 моль/л NaOH [17]. В щелочную вытяжку (pH ~ 13) переходит не более 1 – 6 % <sup>137</sup>Cs. При растворении гуминовых кислот дерново-подзолистых песчаных почв в раствор переходит 17 – 20 % <sup>90</sup>Sr. Для исследованных проб почвы определено, что в условиях эксперимента в растворимое состояние переходит 30 – 50 % <sup>239+240</sup>Pu и <sup>241</sup>Am. Растворение плутония в щелочных растворах возможно за счет образования карбонатных комплексов, однако исследуемые почвы кислые, т.е. содержание карбонатов в них незначительно и в эксперименте использовался раствор свежеприготовленного 0,1 моль/л NaOH, не содержащего CO<sub>2</sub>. Можно сделать вывод, что в раствор переходят радионуклиды плутония и америция, связанные с растворимыми в щелочном растворе природными органическими веществами, в частности с гуминовыми кислотами. При обработке дерново-подзолистой песчаной почвы щелочным раствором в раствор переходит до 40 % природного тория. Практически одинаковая степень



растворимости природного тория и техногенного плутония свидетельствует о том, что в почве произошла трансформация топливных выпадений и радионуклиды связаны с различными компонентами почвенного поглощающего комплекса.

Таблиц 6. Содержание радионуклидов в вытяжке 0,1 моль/л NaOH, % от валового содержания в почве [17]

| Почва   | Слой, см | Радионуклид       |                  |                   |                       |                         |
|---|----------|-------------------|------------------|-------------------|-----------------------|-------------------------|
|   |          | $^{137}\text{Cs}$ | $^{90}\text{Sr}$ | $^{241}\text{Am}$ | $^{239+240}\text{Pu}$ | $\text{Th}_{\text{пр}}$ |
| Дерново-слабоподзолистая песчаная, северо-запад, 6 км от ЧАЭС | 0 – 2    | $3,9 \pm 0,5$     | $19 \pm 3$       | $48 \pm 4$        | $46 \pm 3$            | н.о.*                   |
| Дерново-подзолистая песчаная, северо-запад, 6 км от ЧАЭС      | 0 – 2    | $4,3 \pm 0,6$     | $18 \pm 2$       | $42 \pm 4$        | $47 \pm 3$            | $39 \pm 4$              |

\* Не определяли.

В ходе полного комплексного анализа проб грунтовой воды, отобранной в скважине 4-Г, определено содержание радионуклидов чернобыльских выпадений и природных урана и тория. Распределение радионуклидов по различным фракциям взвесей и в фильтрате показывает, что плутоний и америций в основном связаны с крупнодисперсной фракцией, т.е. находятся в составе топливных «горячих» частиц. Механический перенос «горячих» частиц на УГВ произошел при бурении скважины, а также по механизму лесиважа в более поздние периоды.

### Выводы

1. Результаты гамма-каротажа в скважине в интервале аллювиальных отложений показали, что уровень уменьшения МЭД практически соответствует снижению за счет естественного распада гамма-излучающих радионуклидов, входящих в топливную матрицу. Следовательно, на этом участке глубин имеет место загрязнение грунтов топливными частицами, что также подтверждается соотношениям ТУЭ в пробах грунтовых вод.

2. Содержание  $^{90}\text{Sr}$  в воде скважины 4-Г на протяжении 2004 - 2005 гг. значительно возросло по сравнению с предыдущими годами и стабилизировалось на уровне 300 – 400 Бк/дм<sup>3</sup>. При этом концентрация  $^{137}\text{Cs}$  осталась на прежнем уровне.

3. Изотопный состав урана в грунтовой воде скважины 4-Г соответствует природному урану. Отношение активности плутония и америция соответствует расчетным значениям для облученного топлива 4-го блока ЧАЭС.

4. Характер динамики изменения концентрации стронция, урана и ТУЭ на протяжении 2005 г. не позволяет утверждать, что происходит утечка ЖРО из объекта «Укрытие» в гидрогеологическую среду и что фронт распространения блочных вод достиг места расположения скважины 4-Г.

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Результаты работ, проведенных в отделе радиационного мониторинга МНТЦ «Укрытие» в 1993 г.:* (Отчет) / МНТЦ «Укрытие» НАН Украины. - Инв. 09-05/33. - Чернобыль, 1993. - 204 с.
2. *Результаты работ, проведенных в отделе радиационного мониторинга МНТЦ «Укрытие» в 1994 г.:* (Отчет) / МНТЦ «Укрытие» НАН Украины. - Инв. 09-13/72. - Чернобыль, 1994. - 150 с.
3. *Выполнение работ по анализу неорганизованных выбросов из объекта «Укрытие»:* (Отчет) / МНТЦ «Укрытие» НАН Украины. - № ГР 0198U007454. - Учетн. № 0399U002202 УкрИНТИ. - Чернобыль, 1998. - 67 с.
4. *Выполнение работ по анализу неорганизованных выбросов из объекта «Укрытие»:* (Отчет) / МНТЦ «Укрытие» НАН Украины. - № ГР 0100U004161. - Учетн. № 0301U000238 УкрИНТИ. - Чернобыль, 2000. - 75 с.

5. *Контроль* неорганизованных выбросов из объекта «Укрытие»: (Отчет) / МНТЦ «Укрытие» НАН Украины. - № ГР 0100U003128. - Учетн. № 0302U001342 УкрИНТИ. - Чернобыль, 2001. - 68 с.
6. *Контроль* неорганизованных выбросов из объекта «Укрытие»: (Отчет) / ИПБ АЭС НАН Украины. - № ГР 0104U006534. - Учетн. № 0302U001342 УкрИНТИ. - Чернобыль, 2004. - 74 с.
7. *Контрольные уровни* радиационной безопасности на объекте «Укрытие» (КУРБ-ОУ-2002). - Инв. № 36 (архив Объекта "Укрытие").
8. Радиогидроэкологический мониторинг в районе объекта «Укрытие». Этап 4: (Отчет о НИР) / МНТЦ «Укрытие» НАН Украины - № ГР 0100U006994. - К., 2004.
9. *Калиновский А.К., Малюк И.А., Панасюк Н.И. и др.* Использование результатов гамма-спектрометрических исследований при интерпретации данных гамма-каротажа скважин локальной зоны объекта «Укрытие» // Проблемы Чернобиля. - 2001 - Вип. 8. – С. 15 - 20.
10. *Одинцов А. А., Богуцкий Д. В.* Развитие методики ионообменного определения урана и трансурановых элементов в грунтовых водах и жидких радиоактивных отходах объекта «Укрытие» // 36. наук. праць Ін.-ту ядерних дослід. - 2005.- № 1(15).- С. 137 - 143.
11. *Овчинников А.К., Иващенко Т.Ф.* Инструкция по гамма-каротажу при поисках и разведке урановых месторождений - М.: Министерство геологии СССР, 1987.
12. *Анализ* текущей безопасности объекта «Укрытие» и прогнозные оценки развития ситуации: (Отчет) / МНТЦ «Укрытие» НАН Украины. - Чернобыль, 1996.
13. *К вопросу* о выщелачивании и миграции радионуклидов из грунтов района ЧАЭС: (Отчет) / РИ им. В. Г. Хлопина. - Арх. № 031516. – Л., 1986.
14. *Определение* экологической опасности РАО, локализованных на территории объекта «Укрытие» и прилегающей территории и разработка технических мероприятий по их удалению: (Отчет) / Обнинский филиал НИКИМТ. – Обнинск, 1994.
15. *Фролов В. В.* Ядерно-физические методы контроля делящихся веществ. – М.: Энергоатомиздат, 1989. - 184 с.
16. *Марков В.К., Виноградов А. В., Елинсон С. В. И др.* Уран методы его определения. – М.: Атомиздат, 1960. - 263 с.
17. *Одинцов. А.А., Пазухин Э.М., Саженьюк А.Д.* Распределение  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$  и  $^{244}\text{Cm}$  по компонентам природных органических веществ почв ближней зоны отчуждения ЧАЭС // Радиохимия. - 2005. - Т. 47, № 1.- С. 91 - 96.

Поступила в редакцию 12.01.06

**24 ВИВЧЕННЯ ОСОБЛИВОСТЕЙ РАДИОНУКЛИДНОГО СКЛАДУ ГРУНТОВОЇ ВОДИ  
У СВЕРДЛОВИНІ 4-Г ЛОКАЛЬНОЇ ЗОНИ ОБ'ЄКТА «УКРИТТЯ»****В. Е. Хан, О. О. Одинцов, О. К. Калиновський, П. Н. Дубенко, Е. М. Пазухін, В. О. Краснов**

Наведено експериментальні результати визначення радіонуклідного та макрокомпонентного складу ґрунтової води у свердловині 4-Г локальної зони об'єкта «Укриття». Доведено, що зміни макрокомпонентного складу та збільшення рН ґрунтової води можуть спричинити збільшення вмісту радіонуклідів  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$  і  $^{241}\text{Am}$  внаслідок вилуговування із ґрунту і «гарячих» частинок. Ізотопний склад урану в ґрунтовій воді свердловин 4-Г відповідає природному урану.

**24 STUDY OF PARTICULARITIES OF RADIONUCLIDES COMPOSITION IN GROUND WATERS 4-G  
BOREHOLE OF LOCAL AREA OF "UKRYTTYA" OBJEKT****V. E. Khan, A. A. Odintsov, O. K. Kalynovsky, P. N. Dubenko, E. M. Pazuksin. V. A. Krasnov**

The results of determination of radionuclides and macro components of a composition of ground waters in a local area of "Ukryttya" objekt are submitted. It is shown, that variation of the contents carbonates, phosphates and increasing of pH of ground water can call magnifying of the contents of radionuclides  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$  and  $^{241}\text{Am}$ . The radioactivity composition of uranium in ground water of a slit 4-G corresponds to natural uranium.