

ОБЪЕМНАЯ АКТИВНОСТЬ ТРАНСУРАНОВЫХ ЭЛЕМЕНТОВ В ЖИДКИХ РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДАХ ОБЪЕКТА «УКРЫТИЕ», ВЛИЯЮЩИХ НА ЯДЕРНУЮ И РАДИАЦИОННУЮ БЕЗОПАСНОСТЬ

А. А. Одинцов, В. Е. Хан, В. А. Краснов, В. Н. Щербин

Институт проблем безопасности АЭС НАН Украины, Чернобыль

Приведены экспериментальные данные определения объемной активности ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am , ^{244}Cm и ^{242}Cm в воде, отобранной из неорганизованных водных скоплений на нижних отметках объекта «Укрытие». Показано, что для отдельных водных скоплений характерны свои специфические значения соотношения активностей радионуклидов $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$, $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$, $^{244}\text{Cm}/^{241}\text{Am}$. В водных скоплениях отношение активностей $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ и $^{244}\text{Cm}/^{239+240}\text{Pu}$ в 5 – 10 раз выше, чем в облученном топливе 4-го блока ЧАЭС и лавообразных топливосодержащих материалах.

Введение

Наличие воды внутри объекта «Укрытие» обуславливает возможность протекания химических процессов, которые могут приводить к межфазовому перераспределению урана, продуктов деления и трансураниевых элементов (ТУЭ), их мобилизации, переносу и накоплению в помещениях, расположенных на нижних отметках объекта «Укрытие». Взаимодействие водных растворов с лавообразными топливосодержащими материалами (ЛТСМ) объекта «Укрытие» следует рассматривать как потенциальный фактор ядерной, радиационной и радиоэкологической опасности.

Степень ядерной и радиационной безопасности неорганизованных водных скоплений объекта «Укрытие» в первую очередь определяется содержанием в них альфа-излучающих долгоживущих ТУЭ плутония, америция и кюрия. Основными источниками нейтронов спонтанного деления в жидких радиоактивных отходах (ЖРО) объекта «Укрытие» являются четно-четные изотопы $^{238,240}\text{Pu}$ и $^{242,244}\text{Cm}$. Существенный вклад в образование нейтронов вносят и реакции (α, n).

За годы, прошедшие после аварии на ЧАЭС и сооружения объекта «Укрытие», в рамках научных и регламентных работ выполнено много исследований, направленных на изучение макрокомпонентного и радионуклидного состава водных скоплений в помещениях разрушенного 4-го блока ЧАЭС [1 - 15].

Вода, проникающая внутрь объекта «Укрытие» из различных источников, при перетоке от верхних отметок к нижним выщелачивает растворимые компоненты бетонных конструкций и взаимодействует с различными модификациями ТСМ. В результате этих процессов на нижних отметках блока образуются щелочно-карбонатные растворы, представляющие собой среднеактивные ЖРО сложного химического и радионуклидного состава [4].

Переток ЖРО за пределы 4-го блока может значительно понизить уровень радиоэкологической безопасности объекта «Укрытие» и привести к радиоактивному загрязнению грунтовых вод.

Вода, попадающая в помещения объекта «Укрытие» (а это в основном дождевая) от таяния снега и конденсирующаяся из воздуха, служит своеобразным индикатором состояния ТСМ, в том числе и тех скоплений, которые недоступны прямому контролю. Омывая эти скопления и собираясь в помещениях на нижних отметках объекта «Укрытие», она несет с собой информацию о процессах их деструкции. Расчеты показывают, что в помещениях реакторного отделения 4-го блока растворяется и выносится за его пределы порядка 10 кг урана в год [16].

Анализ и обобщение результатов исследований, проведенных в 1992 - 2004 гг., выявили недостаток информации, важной для оптимального решения проблем обращения с ЖРО и повышения текущей ядерной и радиационной безопасности объекта «Укрытие». Нерешенными оставались следующие важные задачи:

недостаточно экспериментальных данных по содержанию ^{241}Am , ^{244}Cm и суммарной активности альфа-излучателей в воде и донных отложениях объекта «Укрытие»;

отсутствует анализ радионуклидных и изотопных соотношений ТУЭ в водных скоплениях различных помещений объекта «Укрытие»;

не выявлены причины резких повышений объемных концентраций ТУЭ в некоторых потоках и скоплениях ЖРО.

Цель настоящей работы: получение экспериментальных данных по содержанию урана, продуктов деления (ПД) (^{90}Sr , ^{137}Cs) и ТУЭ ($^{238-240}\text{Pu}$, ^{241}Am , ^{244}Cm) в неорганизованных водных скоплениях, изучение радионуклидных и изотопных соотношений ТУЭ в ЖРО, локализованных в различных помещениях объекта «Укрытие».

Материалы и методы

Для определения концентраций урана (мг/дм^3), радионуклидов ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am и ^{244}Cm (Бк/дм^3) и стабильных компонентов HPO_4^{2-} , HCO_3^- , CO_3^{2-} (мг/дм^3) в скоплениях ЖРО на нижних отметках объекта «Укрытие» регулярно отбирались пробы воды в помещении 001/3 ВСРО, бассейне-барботере и в юго-восточной части блока Б. Номера помещений и строительные координаты точек отбора проб воды приведены в табл.1.

Таблица 1. Координаты точек отбора проб воды

Точка отбора	Номер помещения	Строительные координаты		
		Отметка, м	Ряд	Ось
6	012/16	+ 2,2	Ж-Е	48-49
8	01/3	+ 1,25	У1	50 ₋₁₀₀₀ , скв. 2.1.116
10	318/2	+ 12,5	Е-Ж	44-45
13	061/2	+ 6,0	Н-М	41-42
14	406/2	+ 12,5	Е-Ж	43-44
17	014/2	- 0,65	Д-Е	44-45
18	017/2	- 0,65	И-Ж	43-44
20	01/3	+ 2,5	У	труба из ПРК
21	012/13	+ 2,2	Р	46-45
30	001/3	-1,20	У-У1	49-50
31	012/5	- 0,65	С-Т	46-45
32	012/7	- 0,65	Д-Е	47-48
35	012/8	- 0,65	Д-Е	49
36	061/2	+ 6,0	Е-Ж	42-41
37	207/5	+9,1	К ₋₂₀₀₀	49 ₊₈₀₀ , скв. 3-9-К

На рис. 1 показан план-схема локализации неорганизованных водных скоплений и точки отбора проб воды на отметках 0,0, +3,0, +6,0 и + 12,5 м объекта «Укрытие». Наибольшие скопления ЖРО находятся в помещениях 001/3 (~ 270 м³), 012/5-8 (~ 45 м³) и 012/13-16 (~ 40 м³). В помещении 01/3 из скважины 2.1.116 организован сбор низкоактивных протечек со стороны каскадной стены (точка отбора 8) и из трубы, идущей из парораспределительного коридора (ПРК) (точка отбора 20), - высокоактивные протечки.

Подготовка проб воды для проведения радиохимического анализа включала фильтрацию через бумажный фильтр «белая лента» и упаривание фильтрата до сухого остатка. Для озоления органических составляющих сухой остаток обрабатывали концентрированной азотной кислотой с добавлением перекиси водорода.

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.

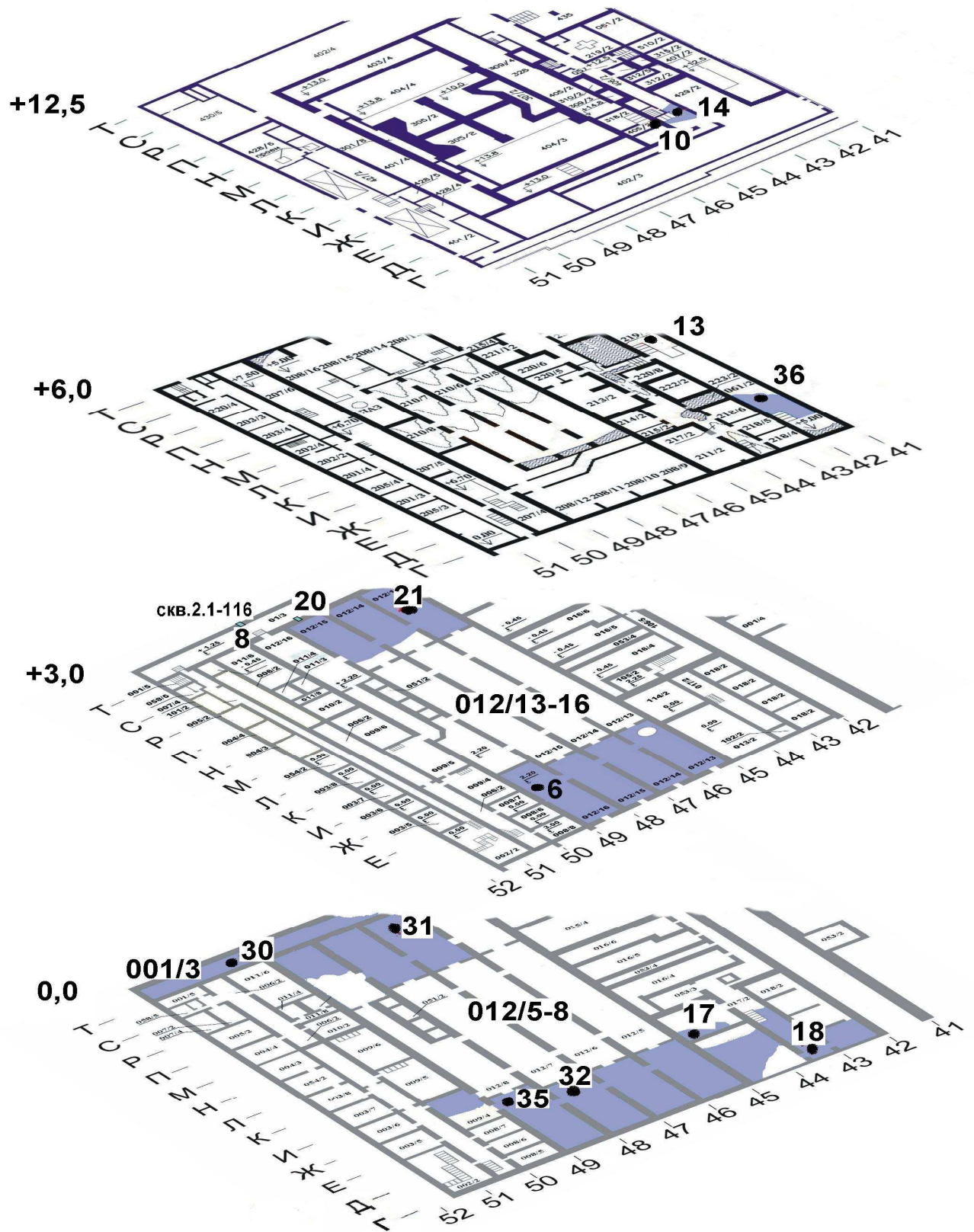


Рис. 1. План-схема расположения основных водных скоплений и точек отбора проб ЖРО.

Объемную активность ^{137}Cs в аликвотах проб ЖРО измеряли в аттестованной геометрии с помощью сцинтилляционного спектрометра, включающего блок детектирования БДЭГ-20P2 и анализатор импульсов LP-4900B.

Уран, плутоний и америций определяли альфа-спектрометрическим методом после ионообменного выделения по методике, описанной в работе [17, 18]. 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.

Объемные концентрации урана, карбонатов и фосфатов в пробах ЖРО, отобранных из неорганизованных водных скоплений в 2006 г., приведены в табл. 2. Заметного изменения макрокомпонентного состава ЖРО по сравнению с предыдущими годами исследований (2004 – 2005 гг.) не наблюдается [14, 15]. Величина рН воды изменяется в пределах от 8,0 до 10,2, вода имеет щелочную реакцию. При данных значениях рН в воде преобладают ионы HCO_3^- , их концентрация в среднем составляет 850 мг/дм^3 . Концентрация фосфат-ионов не превышает 3 мг/дм^3 . Содержание урана в зависимости от точки отбора изменяется от 4 до 40 мг/дм^3 , максимальное содержание урана характерно для ЖРО бассейна-барботера (точки отбора 6, 31, 32). Наибольшее содержание карбонатов и гидрокарбонатов найдено в водном скоплении помещения 012/13 (точка 21).

Таблица 2. Макрокомпонентный состав ЖРО объекта «Укрытие» (2006 г.), мг/дм^3

Точка отбора	рН	Уран	HPO_4^-	CO_3^{2-}	HCO_3^-
6	9,3	40		50	540
10	9,3	0,32	6,2	180	380
13	8,0	2,3	-	-	180
14	9,0	0,37	15	140	650
17	8,5	3,8	1,2	20	570
18	9,1	2,2	1,8	130	540
20	9,4	14	1,4	170	560
21	9,7	7,4	0,82	1440	2900
30	9,0	8,7	0,27	50	460
31	9,0	35	0,64	80	850
32	8,7	28	-	20	390
35	8,8	18	-	10	370
36	8,0	3,8	1,4	-	230
37	8,5	16	н.о*	н.о	н.о.

* Не определяли.

Следует отметить, что макрокомпонентный состав ЖРО объекта «Укрытие» во многих водных скоплениях, кроме приведенных выше компонентов, в значительной степени определяется содержанием реагентов пылеподавляющих составов, содержащих большое количество органических веществ [1, 5].

Результаты и обсуждения

Радионуклидный состав неорганизованных водных скоплений объекта «Укрытие»

Суммарная альфа-активность ЖРО объекта «Укрытие» складывается из активности радионуклидов урана, плутония, америция и кюрия. Вклад в суммарную альфа-активность продуктов распада рядов ^{235}U и ^{238}U в настоящей работе не учитывался. Объемные активности урана и ТУЭ в пробах воды из основных водных скоплений объекта «Укрытие», отобранных в 2005 г., приведены в табл. 3.

Максимальные концентрации радионуклидов и урана в ЖРО из помещений бассейна-барботера (точки 6, 21, 31 и 32) в 2005 г. не превышали ранее зафиксированных максималь-

ных значений и составили: по ^{137}Cs $4,3 \cdot 10^{10}$ Бк/м³ в декабре - точки 31 и 32; по ^{90}Sr $2,2 \cdot 10^{10}$ Бк/м³ в ноябре - точка 32; по урану 38 г/м³ в ноябре - точка 32.

Таблица 3. Объемная активность альфа-излучающих нуклидов в основных водных скоплениях объекта «Укрытие»

Помещение (точка отбора)	Объемная активность, кБк/м ³						
	ΣU^*	^{238}Pu	$^{239+240}\text{Pu}$	^{241}Am	^{244}Cm	^{242}Cm	Σ_{α}
012/16 (6)	$8,6 \cdot 10^2$	$1,2 \cdot 10^3$	$2,4 \cdot 10^3$	$2,3 \cdot 10^4$	$1,1 \cdot 10^3$	64	$2,9 \cdot 10^4$
405/2 (10)	38	$1,3 \cdot 10^2$	$2,7 \cdot 10^2$	$8,3 \cdot 10^2$	30	<МДА**	$1,3 \cdot 10^3$
061/2 (13)	$1,8 \cdot 10^3$	$8,6 \cdot 10^2$	$1,9 \cdot 10^3$	$2,1 \cdot 10^4$	$8,4 \cdot 10^2$	43	$2,6 \cdot 10^4$
406/2 (14)	$1,3 \cdot 10^2$	$2,8 \cdot 10^2$	$6,4 \cdot 10^2$	$4,3 \cdot 10^3$	$1,3 \cdot 10^2$	<МДА**	$5,5 \cdot 10^3$
014/2 (17)	$8,7 \cdot 10^2$	$6,5 \cdot 10^2$	$1,4 \cdot 10^3$	$5,3 \cdot 10^3$	$1,8 \cdot 10^2$	<МДА**	$8,4 \cdot 10^3$
017/2 (18)	62	46	93	$4,7 \cdot 10^2$	14	<МДА**	$6,9 \cdot 10^2$
01/3 (20)	$1,3 \cdot 10^3$	$5,6 \cdot 10^3$	$1,1 \cdot 10^4$	$9,7 \cdot 10^4$	$3,7 \cdot 10^3$	$2,8 \cdot 10^2$	$1,2 \cdot 10^5$
012/3 (21)	$1,4 \cdot 10^2$	76	$1,7 \cdot 10^2$	$2,5 \cdot 10^2$	12	<МДА**	$6,5 \cdot 10^2$
001/3 (30)	$4,5 \cdot 10^2$	$9,7 \cdot 10^2$	$1,9 \cdot 10^3$	$2,8 \cdot 10^4$	$1,4 \cdot 10^3$	77	$3,3 \cdot 10^4$
012/6 (31)	$5,6 \cdot 10^2$	$1,3 \cdot 10^3$	$2,5 \cdot 10^3$	$5,1 \cdot 10^4$	$2,2 \cdot 10^3$	$1,6 \cdot 10^2$	$5,8 \cdot 10^4$
012/7 (32)	$9,0 \cdot 10^2$	$2,1 \cdot 10^3$	$4,2 \cdot 10^3$	$5,3 \cdot 10^4$	$2,7 \cdot 10^3$	$1,7 \cdot 10^2$	$6,3 \cdot 10^4$
012/8 (35)	$3,2 \cdot 10^3$	$4,4 \cdot 10^3$	$8,7 \cdot 10^3$	$1,1 \cdot 10^5$	$5,2 \cdot 10^3$	$2,8 \cdot 10^2$	$1,3 \cdot 10^5$
061/2 (36)	$2,3 \cdot 10^2$	$1,4 \cdot 10^2$	$3,0 \cdot 10^2$	$2,7 \cdot 10^3$	$1,1 \cdot 10^2$	<МДА**	$3,5 \cdot 10^3$
Переток на 3-й блок	$9,9 \cdot 10^2$	$6,0 \cdot 10^2$	$1,2 \cdot 10^3$	$1,1 \cdot 10^4$	$4,9 \cdot 10^2$	22	$1,4 \cdot 10^4$

* Сумма изотопов ^{234}U , ^{235}U , ^{236}U , ^{238}U .

** Менее минимально детектируемой активности.

Максимальная величина суммы объемных активностей ^{137}Cs и ^{90}Sr в вышеуказанных точках пробоотбора не превышала в ноябре $6,4 \cdot 10^{10}$ Бк/м³, что меньше контрольной концентрации ($1,85 \cdot 10^{12}$ Бк/м³) для проб воды объекта «Укрытие» [19].

В примыкающих к бассейну-барботеру с юго-востока помещениях 014/2 и 017/2 на отметке +0,0 м (точки 17 и 18) в 2005 г. максимальные концентрации наблюдались в ноябре в точке 17 и не превысили ранее наблюдавшихся максимальных значений: по ^{137}Cs – $4,7 \cdot 10^9$ Бк/м³; по ^{90}Sr – $1,4 \cdot 10^9$ Бк/м³; по урану – 15 г/м³.

Суммарная объемная активность ^{137}Cs и ^{90}Sr в протечках ЖРО из ПРК (точка 20) в ноябре и декабре составила $3,2 \cdot 10^{10}$ Бк/м³, а максимальная концентрация урана в декабре – 35 г/м³.

Протечки из пробуренных в помещение 305/2 скважин, которые собираются в коллекторе, расположенном в помещении 207/4-5, выводятся в южную часть помещения 012/8 (точка 35). Максимальные концентрации радионуклидов и урана в этих протечках в 2005 г. наблюдались в декабре: $^{137}\text{Cs} + ^{90}\text{Sr} - 5,0 \cdot 10^{10}$ Бк/м³, урана – 26 г/м³.

В ЖРО из помещения 001/3 ВСРО (точка 30), которое является наибольшим водным скоплением объекта «Укрытие», сумма объемных активностей ^{137}Cs и ^{90}Sr на протяжении ноября – декабря 2005 г. не превысила величины $1,2 \cdot 10^{10}$ Бк/м³. Концентрация урана в этот период составляла от $8,6$ до $9,8$ г/м³, а концентрация Pu_{Σ} – $(1,6 - 1,8) \cdot 10^6$ Бк/м³, что ниже ранее зафиксированных в 2005 г. их максимальных значений.

Наблюдавшаяся в 2003 – 2004 гг. для водного скопления в помещении 001/3 устойчивая тенденция к увеличению концентраций продуктов деления и ТУЭ сохранилась и в 2005 г.

Обобщение результатов контроля в 2005 г. альфа-активности урана, плутония, америция и кюрия в пробах воды из основных водных массивов помещений блока Б позволяет сделать следующие выводы:

основной вклад (до 80 % и более) в суммарную альфа-активность ЖРО объекта «Укрытие» вносит ^{241}Am ;

в отдельных водных скоплениях активность ^{244}Cm примерно равна активности $^{239+240}\text{Pu}$ и превышает активность ^{238}Pu ;

наблюдается устойчивый тренд увеличения активности ТУЭ в воде неорганизованных водных скоплений;

вклад изотопов плутония в суммарную альфа-активность ЖРО не превышает 30 %.

Следует отметить, что возрастание объемной активности ^{242}Cm и ^{244}Cm в водных скоплениях может повлиять на уровень ядерной безопасности, так как эти радионуклиды являются одним из основных источников нейтронов спонтанного деления.

Результаты определения объемной активности радионуклидов в пробах воды, отобранной из основных водных скоплений объекта «Укрытие» в 2006 г., представлены в табл. 4. Сравнение объемных активностей радионуклидов в пробах воды в 2005 - 2006 гг. показывает, что в некоторых точках наблюдается значительное снижение объемной активности ТУЭ и концентрации урана.

Таблица 4. Содержание радионуклидов в ЖРО объекта «Укрытие» (2006 г.), кБк/м³

Точка отбора	^{137}Cs	^{90}Sr	^{238}U	^{234}U	^{238}Pu	$^{239+240}\text{Pu}$	^{241}Am	^{244}Cm
6	$3,5 \cdot 10^7$	$7,0 \cdot 10^6$	$6,7 \cdot 10^2$	$2,0 \cdot 10^3$	$1,6 \cdot 10^3$	$2,9 \cdot 10^3$	$3,4 \cdot 10^4$	$1,4 \cdot 10^3$
10	$9,1 \cdot 10^5$	$1,3 \cdot 10^3$	4.3	11	6.1	14	48	МДА
13	$2,4 \cdot 10^7$	$1,9 \cdot 10^6$	29	86	105	210	$1,0 \cdot 10^3$	23
14	$2,5 \cdot 10^5$	$7,2 \cdot 10^3$	6,3	19	22	42	92	МДА
17	$4,1 \cdot 10^6$	$1,8 \cdot 10^4$	51	$1,7 \cdot 10^2$	$3,1 \cdot 10^2$	$6,9 \cdot 10^2$	$1,7 \cdot 10^3$	60
18	$1,3 \cdot 10^6$	$4,8 \cdot 10^4$	43	$1,2 \cdot 10^2$	77	$1,8 \cdot 10^2$	$6,4 \cdot 10^2$	18
20	$1,9 \cdot 10^7$	$1,6 \cdot 10^6$	$1,5 \cdot 10^2$	$4,5 \cdot 10^2$	$2,7 \cdot 10^2$	$5,8 \cdot 10^2$	$2,6 \cdot 10^3$	$1,2 \cdot 10^2$
21	$2,2 \cdot 10^7$	$1,6 \cdot 10^4$	$1,0 \cdot 10^2$	$3,0 \cdot 10^2$	38	85	$1,8 \cdot 10^2$	МДА
30	$8,7 \cdot 10^6$	$2,7 \cdot 10^6$	$1,5 \cdot 10^2$	$3,7 \cdot 10^2$	$5,3 \cdot 10^2$	$1,1 \cdot 10^3$	$1,3 \cdot 10^4$	$5,5 \cdot 10^2$
31	$4,2 \cdot 10^7$	$1,0 \cdot 10^7$	$5,3 \cdot 10^2$	$1,5 \cdot 10^3$	$2,0 \cdot 10^3$	$3,8 \cdot 10^3$	$6,7 \cdot 10^4$	$2,9 \cdot 10^3$
32	$3,2 \cdot 10^7$	$1,3 \cdot 10^7$	$4,3 \cdot 10^2$	$1,3 \cdot 10^3$	$1,7 \cdot 10^3$	$3,3 \cdot 10^3$	$3,8 \cdot 10^4$	$1,7 \cdot 10^3$
35	$3,0 \cdot 10^7$	$8,2 \cdot 10^6$	$3,2 \cdot 10^2$	$9,1 \cdot 10^2$	$6,4 \cdot 10^2$	$1,2 \cdot 10^3$	$1,1 \cdot 10^4$	$4,7 \cdot 10^2$
36	$6,6 \cdot 10^6$	$7,2 \cdot 10^5$	25	63	13	28	77	МДА
3-9-К	$6,5 \cdot 10^7$	$3,5 \cdot 10^7$	н.о	н.о.	$2,2 \cdot 10^3$	$4,7 \cdot 10^3$	$1,0 \cdot 10^5$	$4,9 \cdot 10^3$

В табл. 4 также приведены результаты определения объемной активности радионуклидов в воде, отобранной из скважины 3-9-К. Как следует из табл. 4, объемная активность радионуклидов в воде, поступающей из скважины 3-9-К, в 1,5 - 2 раза выше, чем в водных скоплениях бассейна-барботера (точки отбора 31, 32). Особо необходимо отметить высокое содержание ТУЭ в воде скважины 3-9-К, где объемная активность ^{241}Am составляет порядка $1,0 \cdot 10^8$ Бк/м³.

В табл. 5 приведены результаты определения объемной активности ^{241}Am в основных водных скоплениях объекта «Укрытие» в I – IV кварталах 2006 г. Максимальная объемная активность америция наблюдалась в феврале в водном скоплении, локализованном в южной части помещения 012/7 (точка отбора 32), и составила $1,2 \cdot 10^8$ Бк/м³. Изменения объемной активности ^{241}Am , также как и остальных радионуклидов, носит сезонный характер и в основном зависит от величины поступления атмосферных осадков в подкровельное пространство объекта «Укрытие».

Обобщение результатов контроля в 2006 г. альфа-активности и изотопного состава урана, плутония, америция и кюрия в пробах воды из основных водных скоплений помещений блока Б позволяет сделать следующие выводы:

основной вклад в суммарную альфа-активность ЖРО объекта «Укрытие» вносит ^{241}Am ;

в отдельных водных скоплениях объемная активность ^{241}Am в 2006 г. снизилась по сравнению с 2005 г. от двух до пяти раз.

Таблица 5. Объемная активность ^{241}Am в основных скоплениях ЖРО объекта «Укрытие»

Помещение (точка отбора)	Объемная активность, Бк/м ³			
	I квартал	II квартал	III квартал	IV квартал
012/16 (6)	$6,4 \cdot 10^7$	$3,7 \cdot 10^7$	$1,4 \cdot 10^7$	$2,5 \cdot 10^7$
318/2 (10)	-	$4,8 \cdot 10^4$	$3,7 \cdot 10^4$	$1,9 \cdot 10^5$
061/2 (13)	-	$1,1 \cdot 10^6$	$2,8 \cdot 10^5$	$4,4 \cdot 10^6$
406/2 (14)	-	$9,2 \cdot 10^4$	$1,1 \cdot 10^6$	$1,7 \cdot 10^6$
014/2 (17)	$2,3 \cdot 10^3$	$1,7 \cdot 10^6$	$7,8 \cdot 10^5$	$2,0 \cdot 10^5$
017/2 (18)	$2,1 \cdot 10^3$	$6,4 \cdot 10^5$	$5,2 \cdot 10^5$	$2,8 \cdot 10^5$
01/3 ПРК (20)	$1,9 \cdot 10^4$	$2,6 \cdot 10^6$	$1,0 \cdot 10^7$	$7,9 \cdot 10^6$
012/3 (21)	$2,3 \cdot 10^2$	$1,9 \cdot 10^5$	$2,1 \cdot 10^5$	$1,8 \cdot 10^5$
001/3 (30)	$1,5 \cdot 10^7$	$1,1 \cdot 10^7$	$6,8 \cdot 10^6$	$5,1 \cdot 10^6$
012/6 (31)	$8,6 \cdot 10^7$	$6,7 \cdot 10^7$	$5,9 \cdot 10^7$	$4,7 \cdot 10^7$
012/7 (32)	$1,2 \cdot 10^8$	$3,8 \cdot 10^7$	$5,2 \cdot 10^7$	$3,3 \cdot 10^7$
012/8 (35)	$1,1 \cdot 10^7$	$2,4 \cdot 10^7$	$1,3 \cdot 10^7$	$2,1 \cdot 10^7$
061/2 (36)	-	$7,7 \cdot 10^4$	$1,2 \cdot 10^5$	$4,1 \cdot 10^4$

Динамика изменений объемной активности радионуклидов и концентрации урана в наибольшем водном скоплении объекта «Укрытие» (помещение 001/3, точка 30) и в помещении 01/3 сток из трубы ПРК (точка 20) в период 2004 – 2006 гг. показаны на рис. 2 – 5. В летний период концентрации радионуклидов повышаются, а в зимний снижаются, что связано с изменениями объемов воды, поступающей из скважины 2.1.116 и трубы из ПРК.

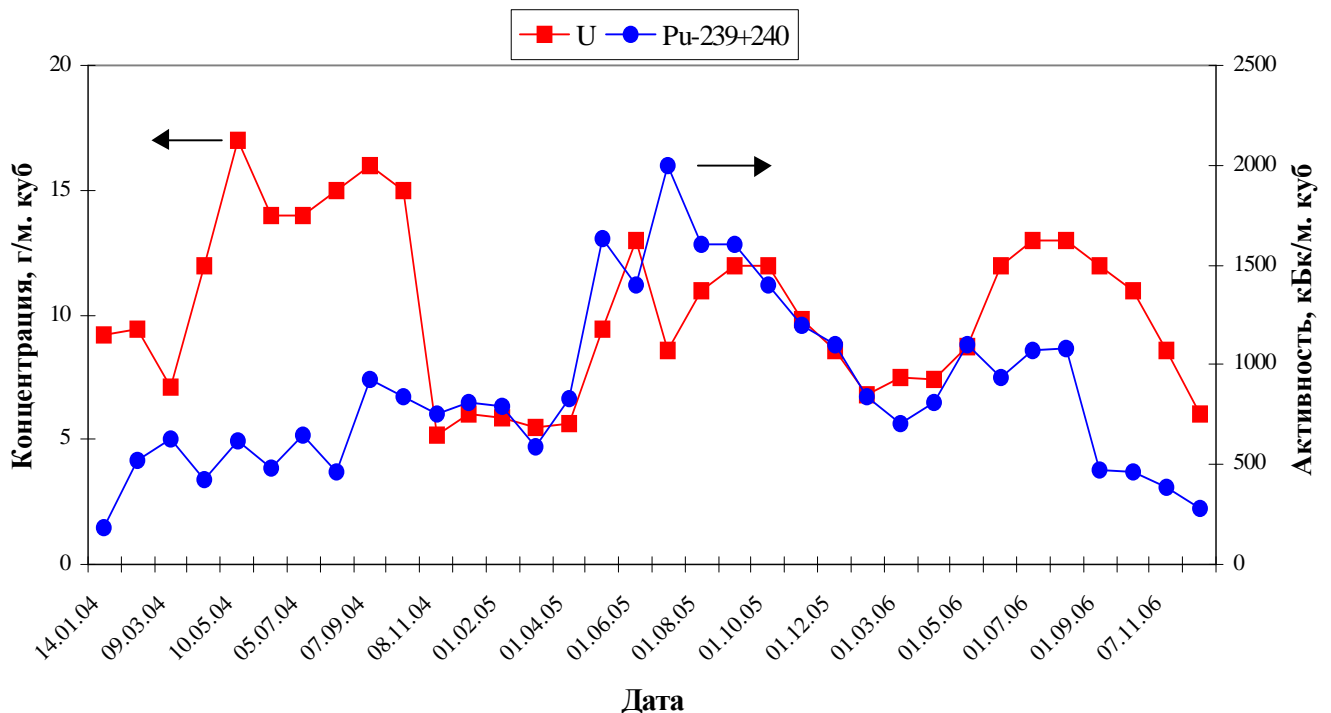


Рис. 2. Динамика изменения активности ТУЭ в ЖРО в помещении 001/3.

Поступление воды зависит от величины атмосферных осадков и температурного режима, который регулирует процессы конденсации и испарения влаги в помещениях объекта «Укрытие». Сезонные изменения температуры воздуха в период "зима - весна" определяют скорость и интенсивность образования талой воды. При повышении температуры в марте - апреле от минусовых до плюсовых значений происходит таяние снега и ледяных образований на верхних отметках объекта «Укрытие», при этом интенсивность поступления воды, например из трубы в ПРК и скважины З-9-К, увеличивается в 5 – 10 раз.

За период наблюдений 2004 - 2006 гг. максимальная объемная активность ТУЭ в воде помещения 001/3 была в летний период 2005 г. (см. рис. 2) и к концу 2006 г. снизилась почти на порядок.

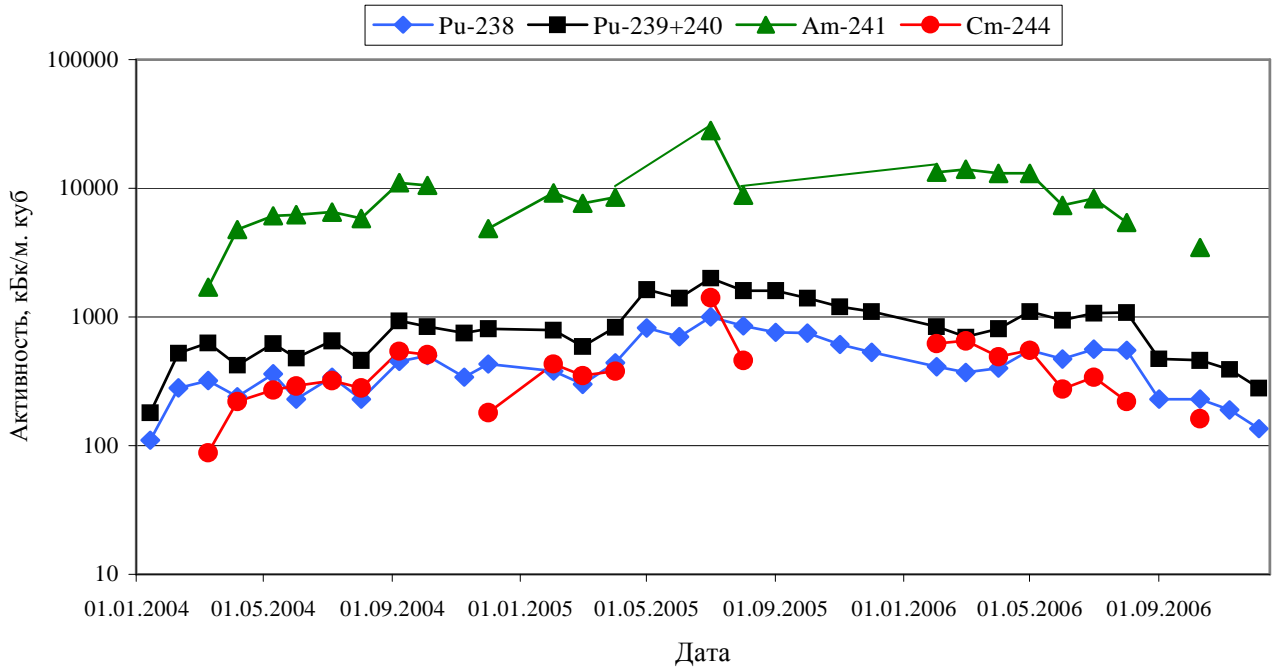


Рис. 3. Изменение концентрации урана и объемной активности плутония в помещении 001/3.

Анализ данных, представленных на рис. 2 и 4, показывает, что изменения объемной активности ТУЭ носят сезонный характер, при этом увеличение и снижение активности плутония, америция и кюрия в воде неорганизованных скоплений происходят синхронно.

Значительное повышение концентрации ТУЭ в воде из трубы ПРК (точка 20) в 2004 - 2005 гг. (см. рис. 4) вызвано, вероятно, проведением испытаний модернизированной системы пылеподавления (МСПП). Следует отметить, что в 2006 г. концентрации радионуклидов снизились более чем на порядок.

Сопоставление содержания урана и плутония в воде помещения 001/3 и в воде, поступающей в помещение 01/3 из трубы из ПРК (см. рис. 3 и 5), показывает одинаковую тенденцию в характере изменения концентраций урана и плутония. Как видно на рис. 3 и 5, повышение объемной активности плутония происходит с некоторым запозданием, что, вероятно, связано с различием поведения урана и плутония в щелочно-карбонатных растворах, каковыми являются ЖРО объекта «Укрытие».

На рис. 6 показано изменение объемной активности плутония в воде, поступающей из трубы ПРК (точка 20) в зависимости от количества выпавших атмосферных осадков.

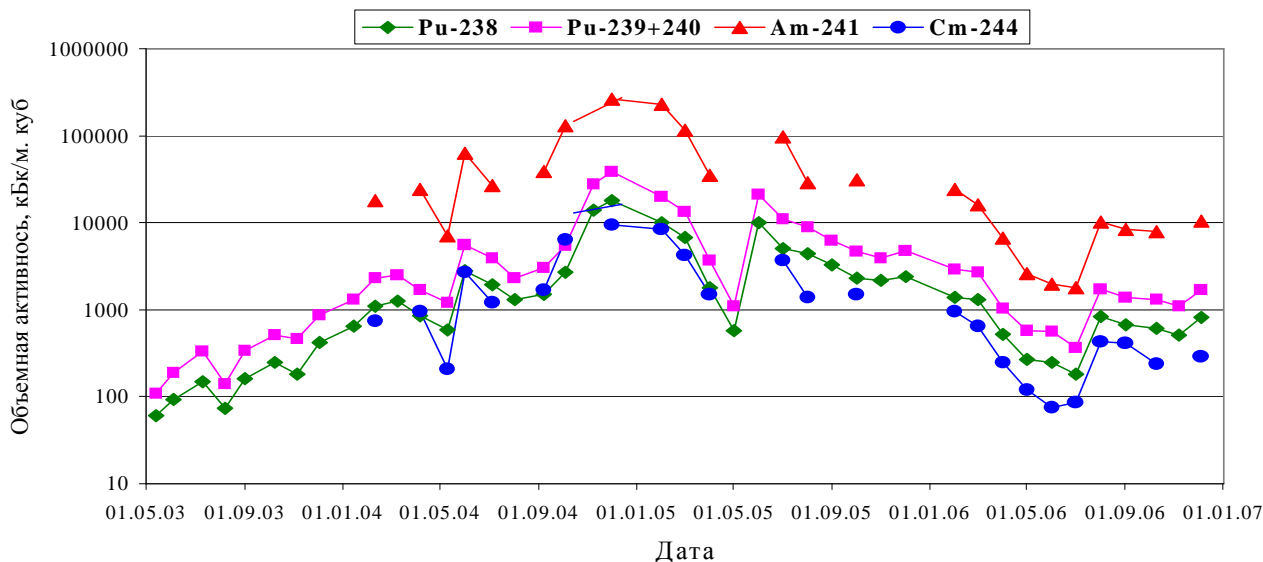


Рис. 4. Динамика сезонных изменений концентраций ТУЭ в ЖРО в помещении 01/3 (труба из ПРК, точка отбора 20).

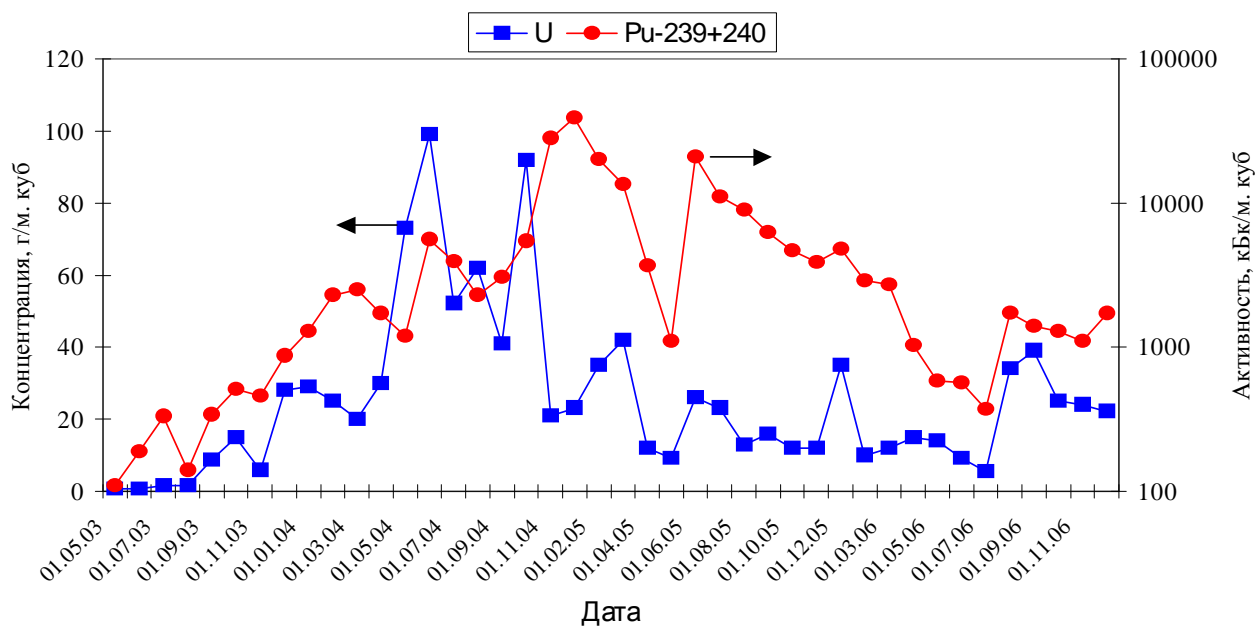


Рис. 5. Сезонные изменения концентрации урана и объемной активности плутония в помещении 01/3 (труба из ПРК, точка отбора 20).

Особенности радионуклидных соотношений ТУЭ в неорганизованных водных скоплениях объекта «Укрытие»

В табл. 6 приведены отношения активностей ^{238}Pu , ^{241}Am и ^{244}Cm к активности $^{239+240}\text{Pu}$ в ЖРО из различных помещений объекта «Укрытие» (средние значения для 15 - 20 проб, отобранных из каждого водного скопления). Как следует из табл. 6, для каждого водного скопления отношения активностей ^{238}Pu , ^{241}Am и ^{244}Cm к активности $^{239+240}\text{Pu}$ имеют свои специфические значения, причем отношения активности ^{241}Am и ^{244}Cm к $^{239+240}\text{Pu}$ значительно отличаются от расчетных значений для облученного топлива 4-го блока ЧАЭС (последняя строка таблицы).

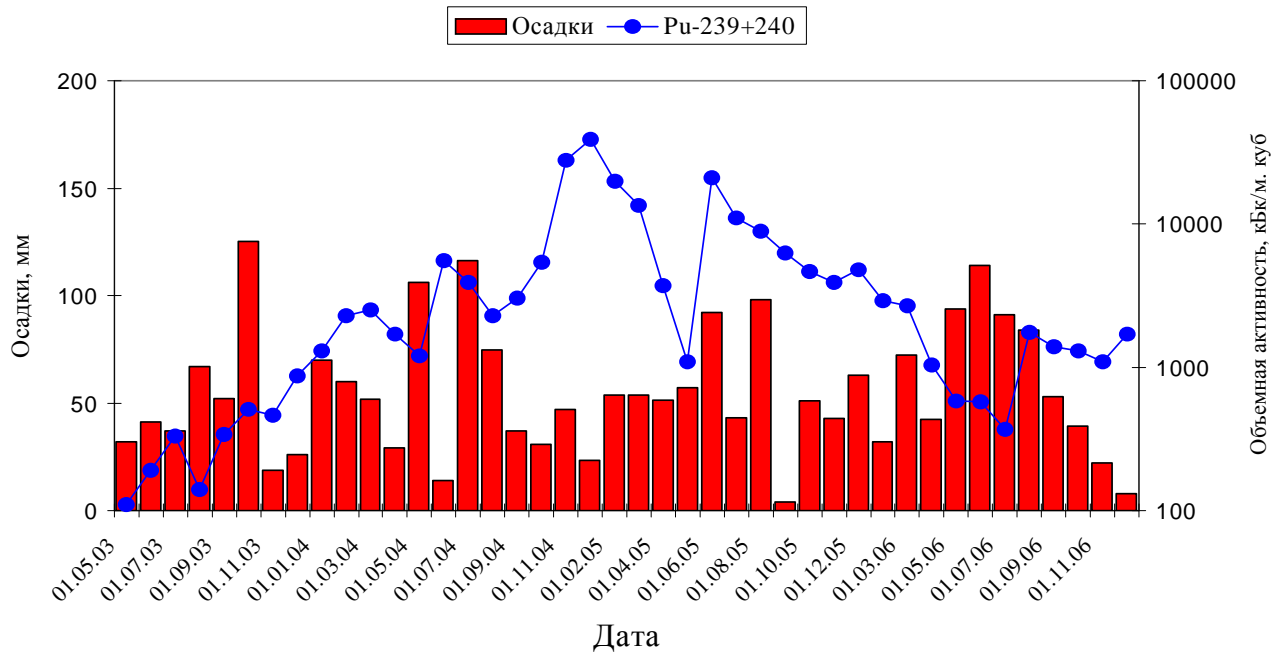


Рис. 6. Количество атмосферных осадков и объемная активность плутония в помещении 01/3 (труба из ПРК, точка отбора 20).

Содержания плутония, америция и юрия в водных скоплениях регулируются их поведением в щелочно-гидрокарбонатных средах, каковыми являются водные скопления объекта «Укрытие». Как показывают исследования фазового распределения америция и плутония в пробах ЖРО, отобранных в помещении 012/7 (точка 32) и 012/16 (точка 6), подавляющее количество плутония и большая часть америция ассоциировано с коллоидно-дисперсными частицами. Это объясняется тем, что процессы гидролиза и образования мало-растворимых гидроокисей плутония и америция в ЖРО объекта «Укрытие» преобладают над процессами образования их растворимых карбонатных комплексов. При этом практически во всех водных скоплениях отношения $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ значительно выше расчетного значения для базового состава облученного топлива 4-го блока ЧАЭС.

Таблица 6. Отношения активностей ТУЭ в ЖРО в различных помещениях объекта «Укрытие», отн. ед.

Направление потока	Помещение (точка отбора)	$^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$	$^{244}\text{Cm}/^{239+240}\text{Pu}$
Север	01/3 (20)	0,491 ± 0,021	7,5 ± 2,5	0,31 ± 0,11
	012/13 (21)	0,448 ± 0,036	2,1 ± 0,9	0,098 ± 0,041
	001/3 (30)	0,502 ± 0,019	11 ± 3	0,51 ± 0,15
	012/5 (31)	0,525 ± 0,028	13 ± 5	0,65 ± 0,25
Юг	012/16 (6)	0,519 ± 0,029	12 ± 3	0,55 ± 0,14
	012/7 (32)	0,520 ± 0,031	11 ± 5	0,54 ± 0,25
	012/8 (35)	0,501 ± 0,016	9,7 ± 5,2	0,46 ± 0,25
Восток	318/2 (10)	0,450 ± 0,016	3,2 ± 1,2	-
	061/2 (13)	0,466 ± 0,018	5,6 ± 1,4	0,21 ± 0,15
	406/2 (14)	0,446 ± 0,026	3,7 ± 1,6	-
	061/2 (36)	0,463 ± 0,016	4,9 ± 1,1	-
Юго-восток	014/2 (17)	0,476 ± 0,035	3,6 ± 1,7	0,12 ± 0,05
	017/2 (18)	0,453 ± 0,024	2,9 ± 1,4	0,10 ± 0,04
Центр	207/5 (Скв. 3-9-К)	0,487 ± 0,005	22 ± 3	1,1 ± 0,2
«Среднее» топливо 4-го блока ЧАЭС		0,504	1,5	0,078

Так, в помещениях 012/5 - 8 (точки 6, 31, 32) величина отношения $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ превышает расчетное значение почти в 10 раз. Причем для конкретных водных скоплений и потоков характерно свое значение отношения $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$, которое устойчиво сохранялось в течение всего 2006 г. Величина отношения $^{244}\text{Cm}/^{239+240}\text{Pu}$ для различных скоплениях ЖРО объекта «Укрытие» также значительно выше расчетного значения. Следует отметить, что в пробе воды, отобранной из скважины 3-9-К, активность ^{244}Cm выше, чем суммарная активность $^{239+240}\text{Pu}$.

Как следует из табл. 6, отношение активности изотопов плутония $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ в ЖРО из различных помещений объекта «Укрытие» изменяется от 0,45 до 0,53, что в целом совпадает с расчетным значением для «среднего» (базового состава) топлива 4-го блока ЧАЭС, равным 0,50 [20]. При этом следует отметить, что для конкретных скоплений и протечек ЖРО отношение между изотопами плутония имеет свое устойчивое специфическое значение, изменяющееся соответственно распаду ^{238}Pu ($T_{1/2}$ 87,8 лет).

На рис. 7 представлена схема расположения основных водных скоплений с характерными для них значениями отношения активностей $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ в ЖРО. Следует отметить значительное различие отношений $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ для ЖРО в помещении 012/16 (юг, точка 6) и помещении 012/13 (север, точка 21). Это может свидетельствовать об отсутствии на сегодняшний день гидравлической связи между северной и южной частями второго этажа бассейна-барботера.

Изменение отношения активности $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ в пробах воды, отобранных в помещении 01/3 (труба из ПРК, точка 20) в период 2003 – 2006 гг., показано на рис. 8 (точки - определенные значения и линия тренда). На рис. 8 также приведена кривая изменения отношения расчетных значений активностей $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ за счет распада ^{238}Pu (период полураспада 87,7 лет) для «среднего» топлива 4-го блока ЧАЭС. За период наблюдения линия тренда значений отношения активностей $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ проходит ниже расчетных значений, т.е. вода, поступающая из трубы ПРК, омывает скопления ТСМ с выгоранием топлива меньшим, чем в среднем по 4-му блоку.

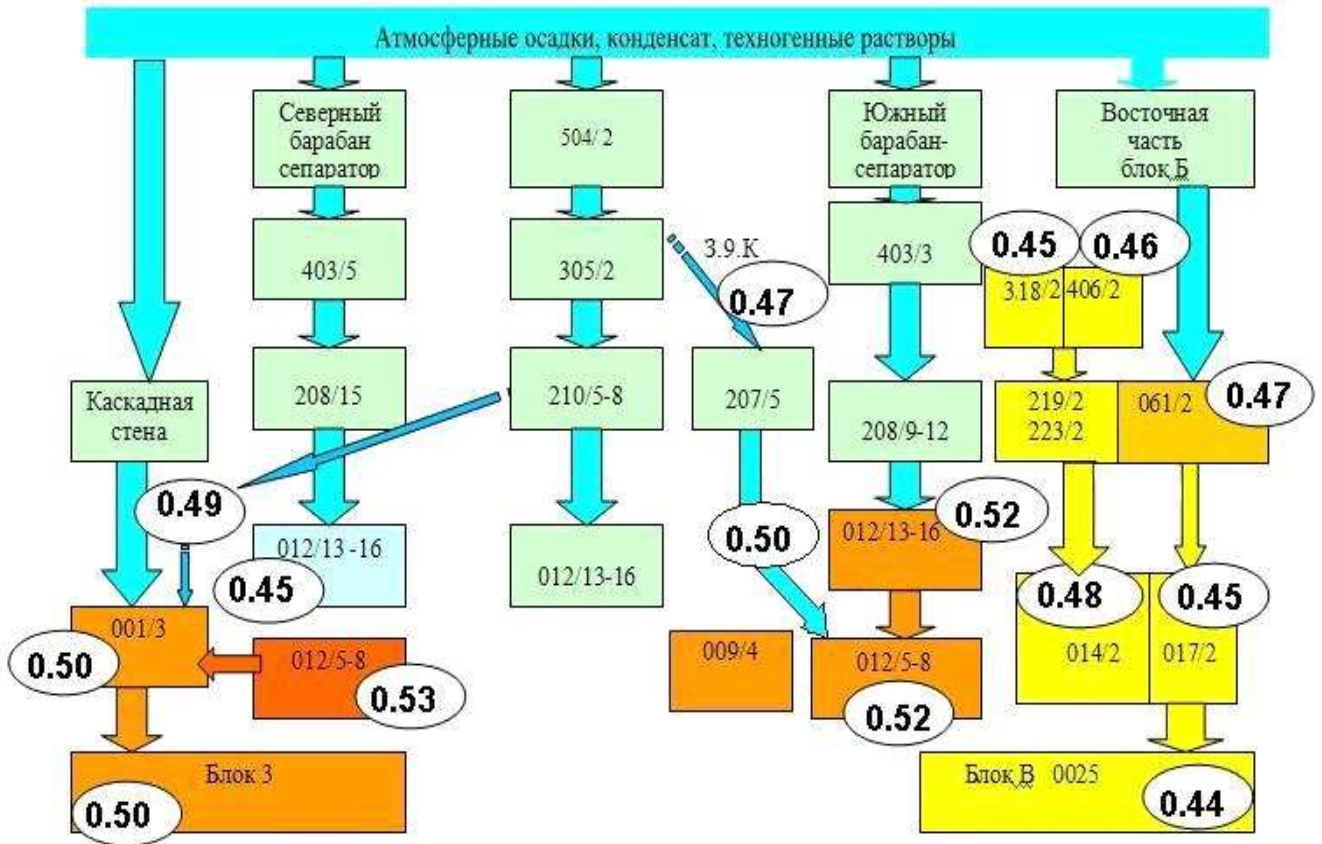


Рис. 7. Схема водных протечек и скоплений с различными значениями отношения $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$.

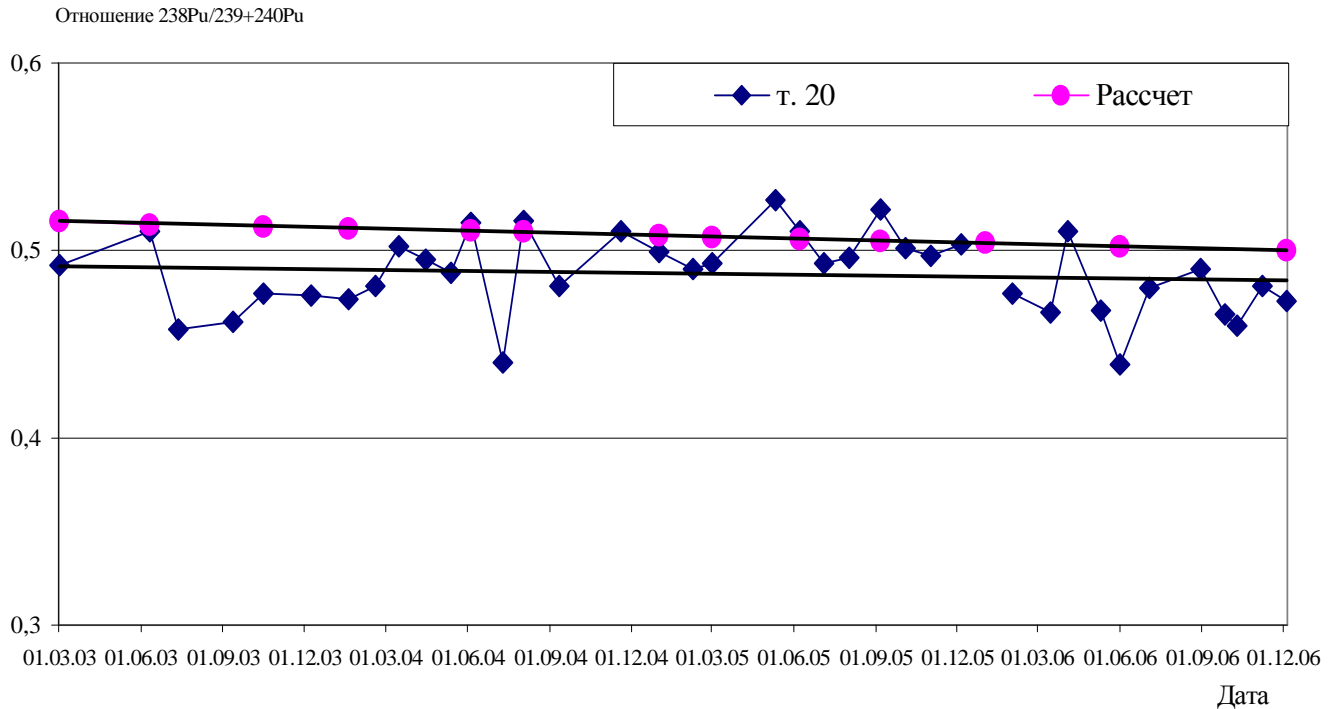


Рис. 8. Отношение активностей $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ в пробах воды, отобранной в помещении 01/3 (труба из ПРК, точка 20).

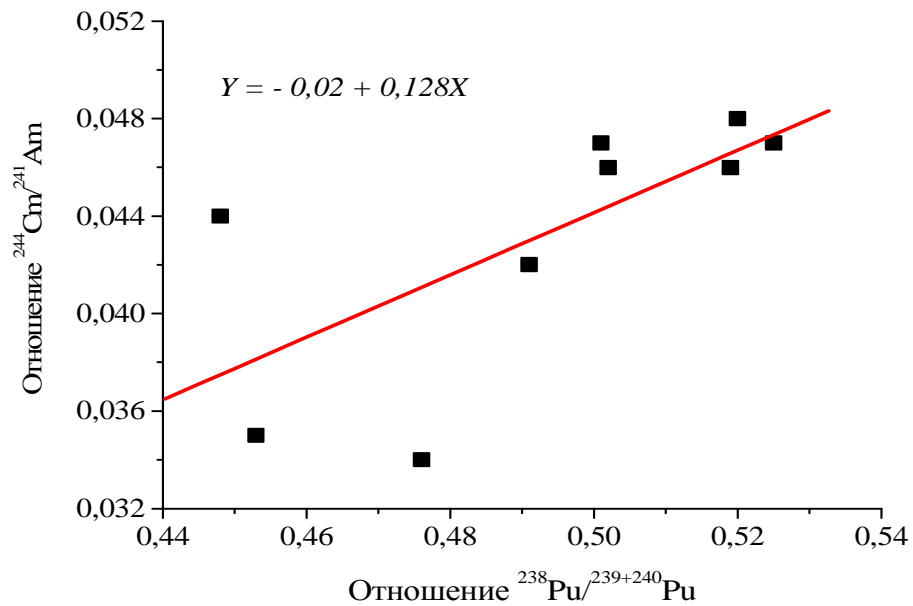


Рис. 9. Корреляция между отношениями активностей $^{244}\text{Cm}/^{241}\text{Am}$ и $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$.

На рис. 9 показана двойная корреляция между отношениями активностей $^{244}\text{Cm}/^{241}\text{Am}$ и $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ в пробах ЖРО объекта «Укрытие». Как следует из рис. 9, отношение активностей $^{244}\text{Cm}/^{241}\text{Am}$ увеличивается прямо пропорционально с увеличением отношения активностей $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$, что хорошо согласуется с теоретическими расчетами. Относительное увеличение содержания ^{238}Pu и ^{244}Cm в пробах воды говорит о том, что в воде присутствует облученное топливо с более высоким выгоранием. Экспериментально определенные корреляции между отношениями активностей $^{244}\text{Cm}/^{241}\text{Am}$, $^{244}\text{Cm}/^{239+240}\text{Pu}$ и $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ могут

быть использованы для уточнения исходных параметров при расчетах выгорания топлива в ЛТСМ и ЖРО объекта “Укрытие”.

Выводы

Для конкретных скоплений и протечек ЖРО отношение между изотопами плутония $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ имеет свое специфическое значение. Во всех водных скоплениях отношение $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ значительно выше расчетного значения для базового состава облученного топлива 4-го блока ЧАЭС.

Проведенный детальный анализ экспериментально определенных радионуклидных и изотопных соотношений ТУЭ в неорганизованных водных скоплениях на нижних отметках объекта «Укрытие» позволяет:

определять выгорание топлива в ЖРО и ТСМ, из которых выщелачиваются ТУЭ, поскольку величина отношения $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ прямо пропорциональна глубине выгорания;

выявлять гидравлическую связь между различными водными скоплениями и потоками внутри объекта «Укрытие»;

оценить роль различных процессов (гидролиз, комплексообразование), влияющих на механизмы миграции радионуклидов плутония, америция и кюрия в водных потоках объекта «Укрытие».

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Задание 13. Обращение с водой объекта «Укрытие». Отчет по характеристике воды. SIP-03/1/C01, TN/00139, 2000.*
2. *Богатов С. А., Корнеев А. А., Криницын А. П. и др. Проблема воды в объекте «Укрытие». - Чернобыль, 1999. – 28 с. – (Препр. / НАН Украины. МНТЦ «Укрытие»; 99-5).*
3. *Криницын А.П., Корнеев А.А., Стрихарь О.Л., Щербин В.Н. О механизме формирования жидких радиоактивных отходов в помещениях блока Б и ВСРО // Проблемы Чернобиля. - 2002. – Вип. 9. – С. 98 – 104.*
4. *Корнеев А. А., Криницын А. П., Стрихарь О. Л., Щербин В. Н. Жидкие радиоактивные отходы внутри объекта «Укрытие» // Радиохимия. – 2002. – Т. 44, № 6. – С. 545 – 552.*
5. *Криницын А. П., Стрихарь О. Л., Щербин В. Н. Проблема обращения с жидкими радиоактивными отходами объекта «Укрытие» // Там же. – 2003. – Т. 45, № 5. – С. 461 – 465.*
6. *Ходоровский М. С., Абрамис А. Я., Синицын В. А. и др. Макрокомпонентный и радионуклидный состав вод объекта «Укрытие» // Проблемы Чернобыльской зоны отчуждения. – 2001. - № 5. – С. 120 – 131.*
7. *Криницын А. П., Симановская И.Я., Стрихарь О.Л. К вопросу о макрокомпонентном и радионуклидном составе вод объекта «Укрытие» // Проблемы Чернобыльской зоны отчуждения. – 2001. - № 7. – С. 46 – 49.*
8. *Krinityn A. P., Simanovskaya I. Ya., Strikhar O. L. Action of Water on Construction and Fuel-containing Materials in the Facilities of the Chernobyl Sarcophagus // Radiochemistry. – 1998. - Vol. 40, No. 3. - P. 287 – 297.*
9. *Shcherbin V.N., Krinityn A. P., Strikhar O.L. Determination of ^{235}U in Water Flows in Sarcophagus // Radiochemistry. – 2000. - Vol. 42, No. 3. - P. 303 – 307.*
10. *Боровой А. А., Криницын А. П., Стрихарь О. Л. и др. Контроль накопления радионуклидов и топлива в воде разных помещений объекта «Укрытие». Разработка технических способов и методического обеспечения // Проблемы Чернобиля. – 1999. – Вип. 4. – С. 34 – 35.*
11. *Боровой А. А., Краснов В. А., Павлюченко Н. И. и др. Контроль неорганизованных выбросов из объекта «Укрытие» // Там же. – 2003. - Вип. 12. – С. 126 – 141.*
12. *Выполнение работ по контролю и анализу неорганизованных выбросов из объекта «Укрытие»: (Отчет по дог. № 123/2000) / МНТЦ «Укрытие» НАН Украины. – Чернобыль, 2000. – 75 с.*
13. *Павлюченко Н. И., Хан В. Е., Малюк И. А., Хоренко В. П. Мониторинг неорганизованных выбросов из объекта «Укрытие» // Проблемы Чернобиля. – 2001. – Вип. 7. - С. 170 – 180.*
14. *Павлюченко Н. И., Хан В. Е., Криницын А. П. и др. Контроль неорганизованных сбросов и выбросов из объекта “Укрытие” в 2004 г. // Проблемы безопасности атомных электростанций і Чернобиля. – 2005. – Вип. 2. – С. 22 – 32.*

15. *Контроль* неорганизованных выбросов из объекта «Укрытие»: (Отчет) / ИПБ АЭС НАН Украины. - ГР № 0105U006750. - Чернобыль, 2005. - 86 с.
16. *Боровой А. А.* Ядерное топливо в объекте «Укрытие» // Атомная энергия. – 2006. – Т. 100, № 4. – С. 258 – 267.
17. *Одинцов А. А., Богоуцкий Д. В.* Определение изотопного состава урана и трансурановых элементов в жидких радиоактивных отходах объекта «Укрытие» // Сб. науч. тр. СНУЯЭиП. – 2004.- № 13. – С. 140 – 145.
18. *Одинцов А. А., Пазухин Э.М., Хан В. Е.* Методика одновременного определения содержания урана и трансурановых элементов в грунтовой воде и жидких радиоактивных отходах объекта «Укрытие» // Радиохимия. – 2005. – Т. 47, № 5. – С. 467 – 471.
19. *Контрольные* уровни радиационной безопасности 41П-С. - Архив ПТС ЧАЭС, инв. № 182 от 28.10.05.
20. *Боровой А. А., Бегичев С. Н., Бураков Е. Ф. и др.* Топливо реактора 4-го блока ЧАЭС. Краткий справочник. - Москва, 1990. - 21 с. - (Препр. / ИАЭ им. И. В. Курчатова; ИАЭ- 5268/3).

Поступила в редакцию 25.07.07.

2 ПИТОМА АКТИВНІСТЬ ТРАНСУРАНОВИХ ЕЛЕМЕНТІВ У РІДКИХ РАДІОАКТИВНИХ ВІДХОДАХ ОБ'ЄКТА «УКРИТТЯ», ЩО ВПЛИВАЮТЬ НА ЯДЕРНУ ТА РАДІАЦІЙНУ БЕЗПЕКУ

О. О. Одинцов, В. Є. Хан, В. О. Краснов, В. М. Щербін

Наведено експериментальні дані визначення питомої активності ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am , ^{244}Cm та ^{242}Cm у воді, відібраній із неорганізованих рідких скупчень на нижніх позначках об'єкта «Укриття». Показано, що для окремих скупчень характерні свої специфічні значення співвідношень активностей радіонуклідів $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$, $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$, $^{244}\text{Cm}/^{241}\text{Am}$. У водних скупченнях відношення активностей $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ та $^{244}\text{Cm}/^{239+240}\text{Pu}$ в 5 – 10 раз вище, ніж в опромінену паливі 4-го блока ЧАЕС та лавоподібних паливовмісних матеріалах.

2 VOLUMETRIC ACTIVITY OF TRANSURANIUM ELEMENTS IN LIQUID RADIOACTIVE WASTER OF OBJECT "UKRYTTYA" INFLUENCING ON NUCLEAR AND RADIATING SAFETY

A. A. Odintsov, V. E. Khan, V. A. Krasnov, V. N. Tscherbin

The experimental data of definition of volumetric activity ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am , ^{244}Cm and ^{242}Cm in water selected from unorganized water congestions on the bottom marks of object «Shelter» are given. Is shown, that the specific meanings of a ratio activity $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$, $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$, $^{244}\text{Cm}/^{241}\text{Am}$ are characteristic for separate water congestions. In water congestions the relation activity $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ and $^{244}\text{Cm}/^{239+240}\text{Pu}$ in 5 - 10 times are higher than in the irradiated fuel of 4-th block and fuel contents material.