

РАДИОАКТИВНО ЗАГРЯЗНЕННАЯ ВОДА В ПОМЕЩЕНИЯХ ОБЪЕКТА «УКРЫТИЕ»

Представлены результаты мониторинга скоплений радиоактивно загрязненной воды (РЗВ) на нижних отметках объекта «Укрытие». Определено содержание макрокомпонентов, урана, продуктов деления (^{90}Sr , ^{137}Cs , $^{154,155}\text{Eu}$) и трансурановых элементов (^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am , ^{244}Cm) в РЗВ объекта «Укрытие» в период 2011 – 2013 гг. Показано, что сезонные колебания концентрации урана и объемных активностей радионуклидов в РЗВ могут составлять до одного порядка величины. Соотношения между активностями $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$, $^{90}\text{Sr}/^{239+240}\text{Pu}$, $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ и $^{244}\text{Cm}/^{239+240}\text{Pu}$ в РЗВ значительно отличаются от аналогичных соотношений радионуклидов в лавообразных топливосодержащих материалах объекта «Укрытие».

Ключевые слова: уран, плутоний, америций, жидкие радиоактивные отходы, объект «Укрытие».

Введение

Основными источниками формирования водных скоплений внутри объекта «Укрытие» являются атмосферные осадки, конденсат и пылеподавляющие растворы, поступающие в подкровельное пространство во время проведения сеансов пылеподавления. Водные потоки попадают в помещения, где локализованы топливосодержащие материалы (ТСМ). Взаимодействие воды с конструкционными материалами и ТСМ приводит к образованию радиоактивно загрязненной воды (РЗВ), содержащей уран, продукты деления (ПД) и трансурановые элементы (ТУЭ) [1 - 6]. В результате протечек внутри объекта «Укрытие» с верхних отметок на нижние в помещениях, расположенных ниже отметки +12,50 м, наблюдаются постоянные скопления РЗВ. Суммарный объем РЗВ в контролируемых помещениях в зависимости от периода года составляет 320 – 340 м³ [6]. В период таяния снега и интенсивных осадков небольшие временные скопления воды образуются и на более высоких отметках. С мая по сентябрь, когда температура внутри объекта «Укрытие» ниже, чем снаружи, на нижних отметках происходит образованию конденсата. В работах [4, 6] отмечается, что наряду с сезонными колебаниями концентраций урана и объемной активности радионуклидов в наибольших водных скоплениях наблюдается устойчивый рост содержания урана и ТУЭ в воде помещения 001/3. Регулярный мониторинг радиационных характеристик РЗВ объекта «Укрытие» является одной из задач обеспечения экологической безопасности объекта «Укрытие».

Цель настоящей работы состояла в определении основных радиационных характеристик РЗВ в помещениях на нижних отметках объекта «Укрытие».

Материалы и методы

На рис. 1 показано расположение основных водных скоплений и точек отбора (т. о.) проб воды на плане помещений 4-го блока ЧАЭС на отметке 0,00 м. Номера помещений, координаты точек отбора проб и объемы РЗВ приведены в табл. 1. Суммарный объем РЗВ в контролируемых помещениях составлял по состоянию на сентябрь 2013 г. 348 м³, т. е. объемы РЗВ практически не уменьшаются. Большая часть водных протечек с верхних отметок объекта «Укрытие» собирается в помещении 001/3 (отметка -2,60 м) блока вспомогательных систем реакторного отделения (ВСПО). Далее водный поток просачивается через разделительную стену по оси 41 и уходит за пределы объекта «Укрытие» на 3-й энергоблок. Количество воды в помещении 001/3 в течение года остается практически постоянным. Детальное описание скоплений РЗВ, основные источники и направления перетока воды в помещениях объекта «Укрытие» приведены в работе [6]. Объемы водных скоплений в контролируемых помещениях и динамика перетока в течение года характеризуются сезонной цикличностью. В апреле температура в подкровельном пространстве становится положительной и начинается интенсивное таяние накопившегося в зимний период снега и льда, что приводит к быстрому увеличению влажности на нижних отметках блока. Еще больше влажность возрастает в июне – сентябре, когда температура внутри объекта «Укрытие» ниже, чем снаружи, что приводит к образованию конденсата. В осенне-зимний период в основном происходит испарение влаги, что с уменьшением поступления осадков и вызывает снижение объемов водных скоплений.

© А. А. Одинцов, В. Е. Хан, В. А. Краснов,
В. Н. Щербин, М. Н. Яковенко, 2014

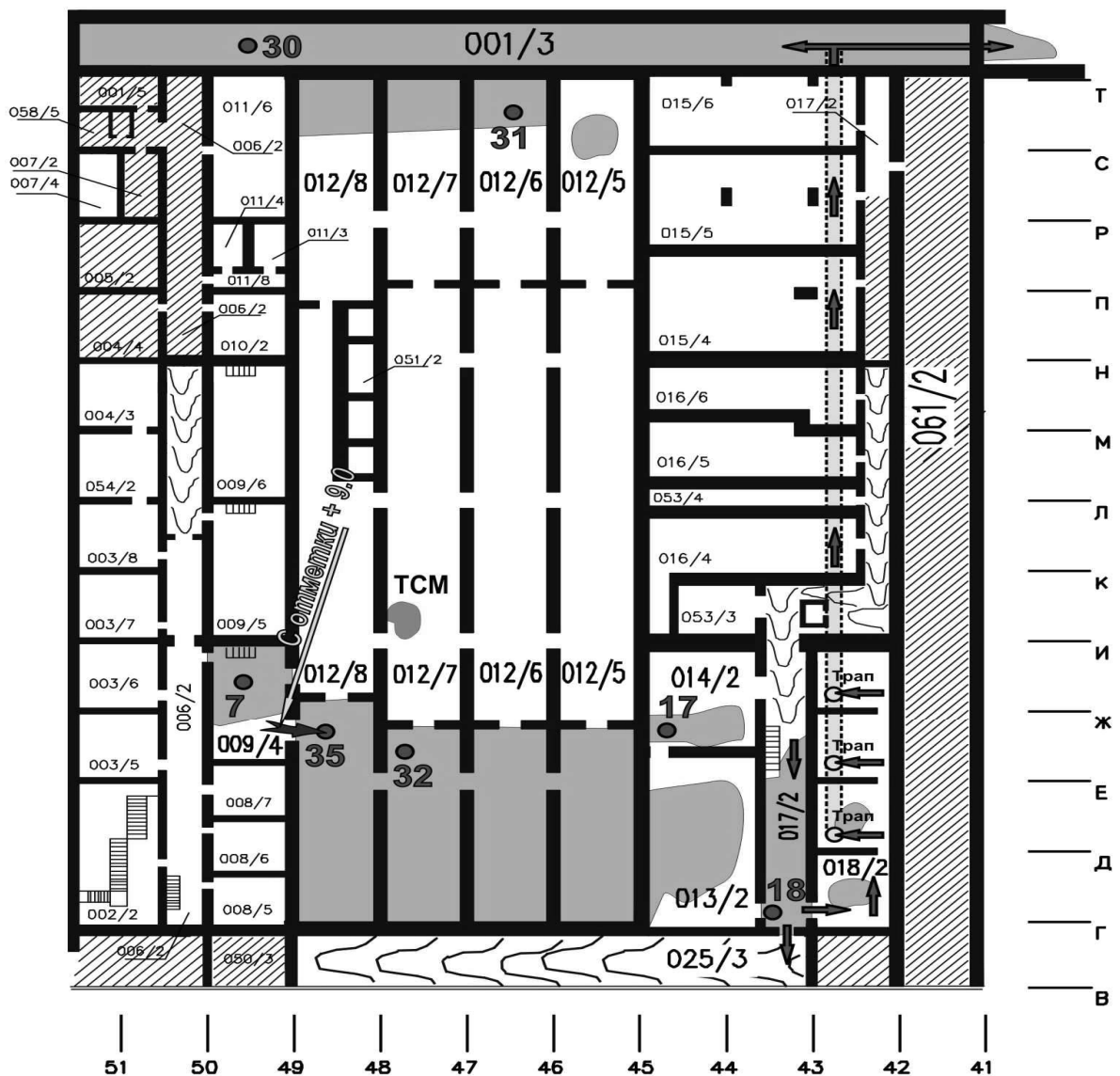


Рис. 1. План расположения точек отбора проб воды в помещениях на отметке +0,00 м.

Таблица 1. Объемы основных водных скоплений (по состоянию на сентябрь 2013 г.)

Помещение	Номер точки отбора проб	Отметка, м	Ось	Ряд	Объем, м ³
012/5 - 8	32, 35	-0,65	45 - 49	Г - Ж	17
012/5 - 8		-0,65	45 - 49	П - Т	4,8
012/6,7,8	31	-0,95	46 - 49	С - Т	8,4
009/4	7	-0,65	49 - 50	Ж - И	3,6
012/13 - 16	6	+2,20	45 - 49	Г - Ж	31
012/13 - 16	21	+2,20	45 - 49	П - Т	3,8
013/2		0,00	44 - 45	Г - Е	1,3
014/2	17	0,00	44 - 45	Ж - И	0,2
017/2	18	0,00	43 - 44	Г - Е	5,4
061/2	13, 36	+6,00	41 - 42	Е - Ж	4,3
001/3	30	- 2,60	41 - 52	У - У ₁	268
01/3	8	+ 1,25	У ₁	50 ₁₀₀₀	Скважина 2.1.- 116
01/3	20	+ 2,20	У	47 - 48	Труба из ПРК*
Всего					348

* Парораспределительный коридор.

В юго-восточной части объекта «Укрытие» постоянные водные скопления наблюдаются в южной части коридора 017/2, в помещениях 013/2, 014/2 и 018/2. Водные скопления в этих помещениях формируются за счет протечек с верхних отметок. Уровень воды в южной части помещения 017/2 составляет 25 – 30 см и определяется высотой порога дверного проема в помещение 018/2. При повышении уровня избыток воды через дверные пороги перетекает в помещение 018/2, а также в помещение 025/3. В качестве примера на рис. 2 приведены фотографии скоплений РЗВ в помещениях 017/2 на отметке -0,65 м и помещении 001/3 на отметке -2,60 м. Глубина водного скопления в помещении 001/3 – 1,05 м.



Помещение 017/2



Помещение 001/3

Рис. 2. Неорганизованные водные скопления на нижних отметках объекта «Укрытие».

Содержание урана, плутония, америция и кюрия определяли из одной пробы воды по ионообменной методике [7]. Активность ^{90}Sr определяли β -радиометрическими измерениями после радиохимического выделения, ^{137}Cs , $^{154,155}\text{Eu}$, ^{241}Am – γ -спектрометрическими измерениями, ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am и ^{244}Cm – α -спектрометрическими измерениями после радиохимического выделения. Концентрацию урана определяли спектрофотометрическим методом. На рис. 3 показан типичный гамма-спектр пробы воды, отобранной из помещения 001/3. Как это следует из рис. 3, в настоящее время в РЗВ объекта «Укрытие» с удовлетворительной погрешностью можно определять активность ^{137}Cs , ^{154}Eu , ^{241}Am . Для измерений активности ^{155}Eu производили очистку $^{154,155}\text{Eu}$ и ^{241}Am от ^{137}Cs . Погрешность определения концентрации урана и объемной активности радионуклидов не превышала 10 – 15 %.

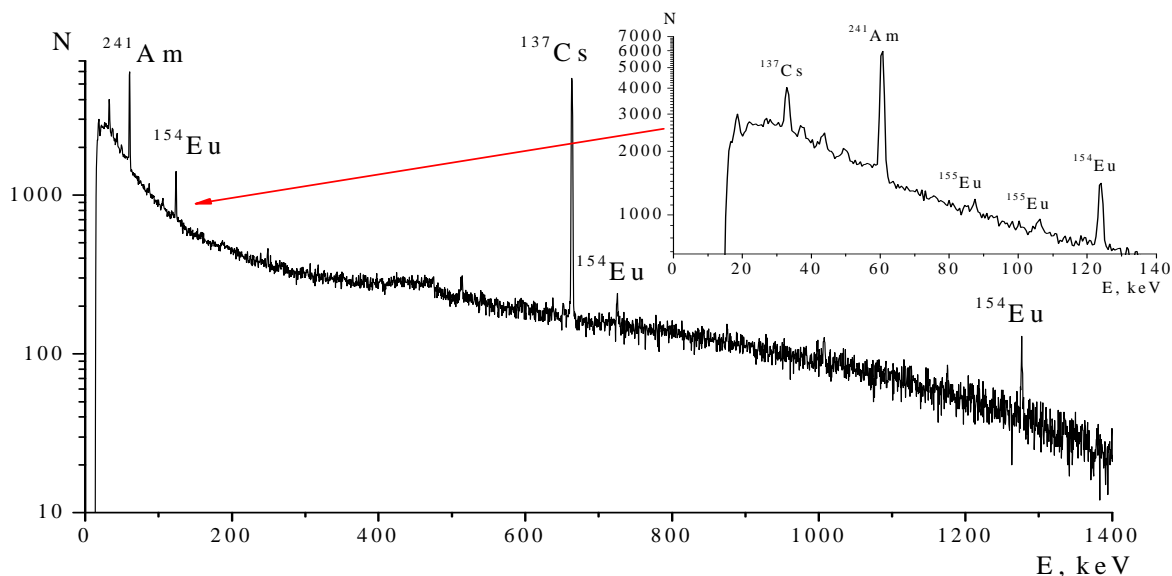


Рис. 3. Типичный γ -спектр пробы РЗВ объекта «Укрытие» (точка отбора 30).

Результаты и обсуждения

Значения рН и концентрации некоторых анионов и катионов в РЗВ объекта «Укрытие» в 2013 г. представлены в табл. 2. Величина рН изменяется от 8,5 до 9,8, что свидетельствует о щелочной среде в водных скоплениях объекта «Укрытие». Концентрация фосфатов (HPO_4^{2-}) изменяется от 0,16 до 1,7 мг/дм³. Содержание карбонатов и гидрокарбонатов составляет 20 – 630 и 160 – 1570 мг/дм³ соответственно. В работах [1, 2] отмечается, что карбонаты, сульфаты, хлориды, силикаты, кальций и магний поступают в воду за счет взаимодействия атмосферных осадков и конденсата с конструкционными материалами объекта «Укрытие» в частности со «свежим» бетоном, залитым в помещения объекта «Укрытие» в 1986 г. Фосфаты и нитраты в водные скопления поступают при проведении сеансов пылеподавления. В соответствии с «Технологическим регламентом объекта «Укрытие» реактора блока № 4 ЧАЭС» 1Р-ОУ при выполнении пылеподавления в подкровельное пространство подается до 45 м³ 0,1 % раствор азотнокислого гадолиния $\text{Gd}(\text{NO}_3)_3 \times 6 \text{H}_2\text{O}$ с начальной концентрацией Gd^{3+} - 520 мг/дм³ и NO_3^- - 620 мг/дм³. В помещениях 009/4, северной части помещений 012/5-8 и 012/13-16, где водные скопления находятся постоянно и переток воды небольшой концентрация натрат-ионов достигает 76 – 390 мг/дм³. Динамика изменения концентрации нейтронного поглотителя гадолиния в воде, поступающей из ПРК (т. о. 20), и протечках из скважин, пробуренных из помещения 207/5 в помещение 305/2, которые собираются в коллекторе, расположенном в помещении 207/4-5 на отметке +9,0 м, и выводятся по трубопроводу в южную часть помещения 012/8 на отметке -0,65 м (т. о. 35) показана на рис. 4.

Таблица 2. Концентрация макрокомпонентов (мг/дм³) в РЗВ объекта «Укрытие»

Номер точки отбора	рН	HPO_4^{2-}	CO_3^{2-}	HCO_3^-	Cl ⁻	SO_4^{2-}	NO_3^-	SiO ₂	Ca ²⁺	Mg ²⁺
6	9,1	0,41	65	390	47	0,29	22	2,2	15	6,2
7	8,6	1,3	20	310	29	0,21	160	3,4	31	7,9
8	8,5	-	-	160	н.о.*	н.о.	3,8	1,4	н.о.	н.о.
17	8,9	1,2	44	370	26	0,21	46	2,2	12	9,1
18	9,2	1,7	73	410	27	0,22	55	2,6	11	7,2
20	9,4	1,5	130	550	61	0,24	250	2,3	18	11
21	9,8	0,47	630	1570	47	0,29	390	0,26	3,1	5,6
30	9,1	0,76	56	330	31	0,24	58	2,1	14	9,9
31	9,2	1,4	120	690	65	0,38	76	1,9	19	11
32	8,7	0,41	33	330	36	0,25	21	2,1	32	10
35	9,1	0,16	74	309	31	0,31	53	2,9	23	11

* Не определяли.

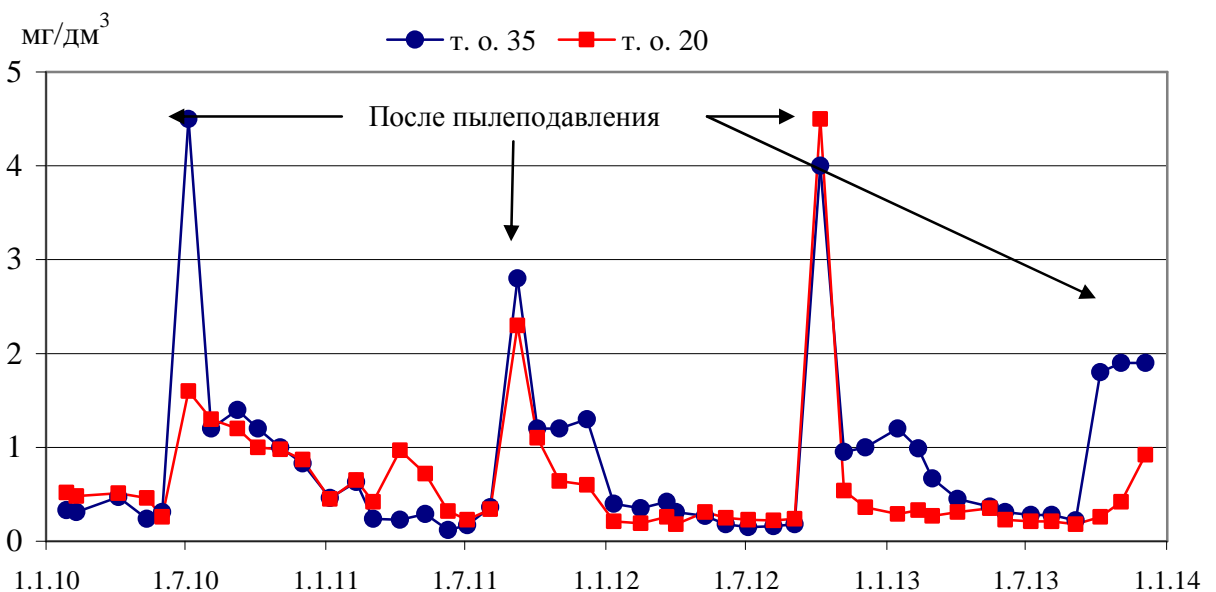


Рис. 4. Концентрация гадолиния в воде, отобранной в помещениях 01/3 (т. о. 20) и 012/8 (т. о. 35).

Содержание гадолиния в протечках из скважин в растворимых и коллоидных формах составляет 0,18 – 4,5 мг/дм³ при исходной концентрации в промывочном растворе 520 мг/дм³ (по металлу). Наибольшая концентрация наблюдалась в протечках, отобранных после сеансов пылеподавления в сентябре 2012 г. В ноябре - декабре 2013 г. концентрация гадолиния в пробах воды в т. о. 20 и 35 так же повысилась после проведения 17.09. – 11.10.2013 г. сеансов пылеподавления. Более половины содержания гадолиния в пробах протечек представлено в виде твердой фазы с размером частиц более 0,2 мкм. Для выявления причин значительных снижений концентрации гадолиния в пробах воды на нижних отметках по сравнению с исходным промывочным раствором в 100 и более раз, была исследована динамика изменения концентрации нитрат-ионов в воде помещений 009/4 (т. о. 7), 012/13 (т. о. 21), 01/3 (т. о. 20) и 012/8 (т. о. 35). Как следует из рис. 5, после проведения сеансов пылеподавления в воде на нижних отметках объекта «Укрытие» концентрация нитрат-ионов значительно выросла в некоторых скоплениях и протечках практически на порядок. В ноябре – декабре 2013 г. концентрация нитрат-ионов в воде помещения 012/13 (т. о. 21) и 01/3 (т. о. 20) составляла 580 – 620 мг/дм³, что практически равно исходной концентрации нитрат-ионов в промывочном растворе, а концентрация гадолиния 0,01 и 0,92 мг/дм³ соответственно. Можно предположить, что в результате образования труднорастворимой гидроокиси Gd(OH)₃ гадолиний совместно с другими макрокомпонентами соосаждается в виде донных отложений на верхних отметках объекта «Укрытие».

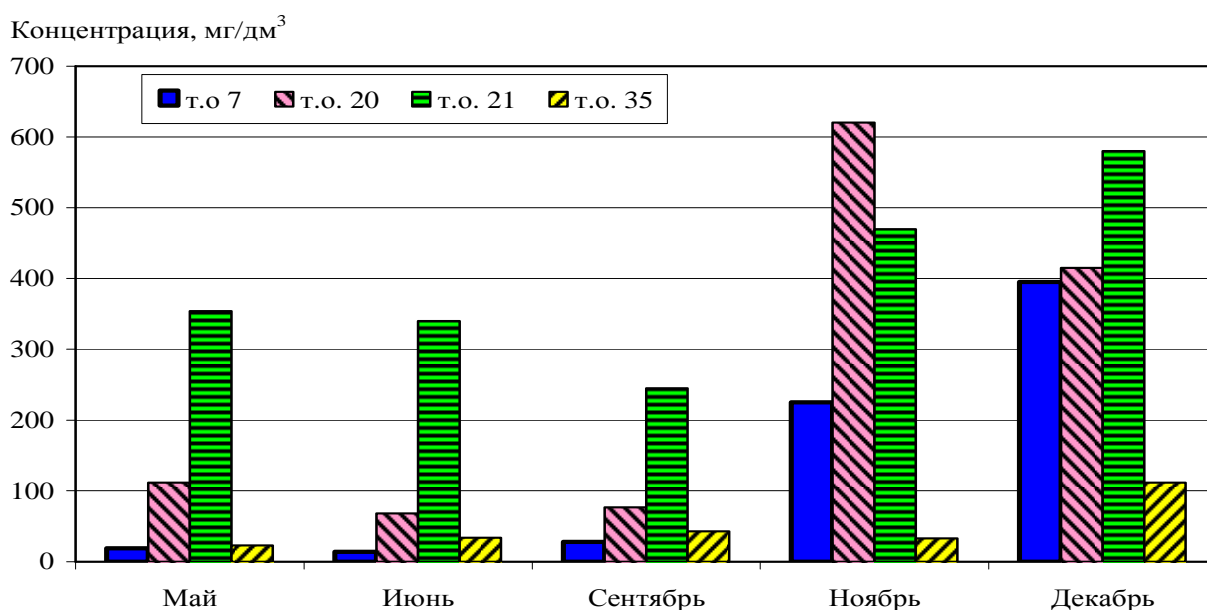


Рис. 5. Концентрация нитрат-ионов в воде, отобранной в помещениях 009/4 (т. о. 7), 012/13 (т. о. 21), 01/3 (т. о. 20) и 012/8 (т. о. 35).

В работе [6] для изучения перетока воды в юго-восточной части блока Б добавляли в водное скопление помещения 017/2 бромид-ион. Определение концентрации нитрат-ионов в водных скоплениях на нижних отметках также позволяет отслеживать переток воды из подкровельного пространства на нижние отметки объекта «Укрытие». Нитрат-ион является хорошим маркером для контроля протечек пылеподавляющих и технологических растворов через помещения, где локализованы ТСМ.

В табл. 3 приведены усредненные данные по 12 пробам (ежемесячный отбор в каждой точке) за 2013 г. γ -спектрометрических измерений и радиохимического анализа проб РЗВ, отобранных на нижних отметках объекта «Укрытие». Результаты представлены с отклонениями от среднего значения, которые изменяются от 12 до 97 % и характеризуют не погрешность определения, а сезонные изменения концентраций урана и объемных активностей радионуклидов в РЗВ различных водных скоплений. Как отмечалось выше, погрешность единичных измерений составляла 5 – 15 %. Наименьший разброс среднегодовых значений концентрации урана и объемной активности радионуклидов наблюдается в малопроточных скоплениях РЗВ, локализованных в помещениях 009/4, северной части помещений 012/5 – 8 и в помещениях 012/13 – 16. Наибольшие изменения концентраций урана и объемной активности ⁹⁰Sr и ТУЭ в течение года наблюдаются в протечках, поступающих из трубы из ПРК (т.о. 20) и коллектора с отметки +9,0 м (т.о. 35) и в помещении 017/2 через, которое проходит основной водопроток в юго-восточной части блока Б.

Таблица 3. Содержание урана (г/м^3) и радионуклидов (Бк/м^3) в РЗВ объекта «Укрытие»

Номер точки отбора	Уран	^{90}Sr	^{137}Cs	^{154}Eu	^{155}Eu
6	12 ± 2	$(3,2 \pm 0,5) \cdot 10^9$	$(2,6 \pm 0,4) \cdot 10^{10}$	$(3,1 \pm 0,9) \cdot 10^6$	$(6,8 \pm 2,2) \cdot 10^5$
7	13 ± 3	$(5,3 \pm 1,1) \cdot 10^9$	$(9,3 \pm 1,6) \cdot 10^9$	$(1,6 \pm 0,9) \cdot 10^7$	$(3,3 \pm 2,0) \cdot 10^6$
8	$0,0082 \pm 0,0056$	$(6,7 \pm 6,3) \cdot 10^5$	$(7,2 \pm 6,6) \cdot 10^6$	н.о.*	н.о.
17	$1,7 \pm 0,4$	$(2,1 \pm 0,9) \cdot 10^8$	$(1,4 \pm 0,4) \cdot 10^9$	$(3,6 \pm 1,7) \cdot 10^5$	$(8,1 \pm 3,9) \cdot 10^4$
18	$0,49 \pm 0,12$	$(3,2 \pm 0,8) \cdot 10^7$	$(6,7 \pm 1,5) \cdot 10^8$	$(2,0 \pm 1,3) \cdot 10^5$	$(4,8 \pm 2,6) \cdot 10^4$
20	38 ± 19	$(5,2 \pm 1,7) \cdot 10^9$	$(2,9 \pm 1,1) \cdot 10^{10}$	$(7,8 \pm 6,9) \cdot 10^6$	$(1,7 \pm 1,5) \cdot 10^6$
21	$3,6 \pm 0,3$	$(2,7 \pm 0,3) \cdot 10^7$	$(6,1 \pm 0,7) \cdot 10^9$	$(4,3 \pm 1,3) \cdot 10^5$	$(8,8 \pm 2,4) \cdot 10^4$
30	11 ± 2	$(3,0 \pm 0,4) \cdot 10^9$	$(9,2 \pm 1,7) \cdot 10^9$	$(2,9 \pm 1,6) \cdot 10^6$	$(6,3 \pm 2,9) \cdot 10^5$
31	49 ± 10	$(4,6 \pm 1,1) \cdot 10^9$	$(3,6 \pm 0,6) \cdot 10^{10}$	$(1,1 \pm 0,8) \cdot 10^7$	$(2,3 \pm 1,7) \cdot 10^6$
32	30 ± 8	$(8,9 \pm 1,7) \cdot 10^9$	$(2,8 \pm 0,3) \cdot 10^{10}$	$(1,6 \pm 0,9) \cdot 10^7$	$(2,9 \pm 1,6) \cdot 10^6$
35	27 ± 16	$(9,9 \pm 3,1) \cdot 10^9$	$(4,4 \pm 1,2) \cdot 10^{10}$	$(9,1 \pm 8,9) \cdot 10^6$	$(2,0 \pm 1,9) \cdot 10^6$

Номер точки отбора	^{238}Pu	$^{239+240}\text{Pu}$	^{241}Am	^{244}Cm	^{242}Cm
6	$(1,4 \pm 0,2) \cdot 10^6$	$(2,8 \pm 0,5) \cdot 10^6$	$(2,2 \pm 0,5) \cdot 10^7$	$(6,1 \pm 1,3) \cdot 10^5$	$(3,4 \pm 1,1) \cdot 10^4$
7	$(2,1 \pm 1,1) \cdot 10^6$	$(4,1 \pm 2,1) \cdot 10^6$	$(6,8 \pm 4,1) \cdot 10^7$	$(2,3 \pm 1,4) \cdot 10^6$	$(1,6 \pm 0,9) \cdot 10^5$
8	$(2,5 \pm 2,2) \cdot 10^2$	$(5,5 \pm 4,1) \cdot 10^2$	$(5,2 \pm 2,8) \cdot 10^2$	< МДА**	< МДА
17	$(1,1 \pm 0,3) \cdot 10^5$	$(2,4 \pm 0,7) \cdot 10^5$	$(1,8 \pm 0,7) \cdot 10^6$	$(4,1 \pm 1,6) \cdot 10^4$	$(4,5 \pm 2,1) \cdot 10^3$
18	$(1,3 \pm 0,8) \cdot 10^5$	$(3,2 \pm 1,9) \cdot 10^5$	$(1,2 \pm 0,7) \cdot 10^6$	$(2,7 \pm 1,6) \cdot 10^4$	$(2,4 \pm 1,6) \cdot 10^3$
20	$(2,5 \pm 1,9) \cdot 10^6$	$(5,3 \pm 4,0) \cdot 10^6$	$(5,1 \pm 4,9) \cdot 10^7$	$(1,2 \pm 1,1) \cdot 10^6$	$(1,4 \pm 1,3) \cdot 10^5$
21	$(4,2 \pm 0,4) \cdot 10^5$	$(8,4 \pm 0,8) \cdot 10^5$	$(3,8 \pm 0,5) \cdot 10^6$	$(1,1 \pm 0,2) \cdot 10^5$	$(5,3 \pm 1,7) \cdot 10^3$
30	$(6,7 \pm 0,2) \cdot 10^5$	$(1,4 \pm 0,3) \cdot 10^6$	$(1,5 \pm 0,6) \cdot 10^7$	$(4,1 \pm 1,6) \cdot 10^5$	$(2,7 \pm 1,1) \cdot 10^4$
31	$(2,0 \pm 0,5) \cdot 10^6$	$(4,1 \pm 1,1) \cdot 10^6$	$(4,0 \pm 0,9) \cdot 10^7$	$(1,3 \pm 0,3) \cdot 10^6$	$(6,1 \pm 1,9) \cdot 10^4$
32	$(2,5 \pm 1,2) \cdot 10^6$	$(5,1 \pm 2,3) \cdot 10^6$	$(7,3 \pm 4,2) \cdot 10^7$	$(2,3 \pm 1,4) \cdot 10^6$	$(1,3 \pm 0,8) \cdot 10^5$
35	$(1,5 \pm 1,3) \cdot 10^6$	$(3,0 \pm 2,8) \cdot 10^6$	$(4,3 \pm 4,0) \cdot 10^7$	$(1,3 \pm 1,2) \cdot 10^6$	$(1,1 \pm 1,0) \cdot 10^5$

* Не определяли.

** Меньше минимально детектируемой активности.

Концентрация урана в РЗВ находится в пределах $0,5 - 49 \text{ г/м}^3$ при наибольшем значении 67 г/м^3 в январе 2013 г. в северной части помещения 012/6. Максимальная концентрация урана в РЗВ в период наблюдения 2011 – 2013 гг. была в помещении 012/7 (т. о. 32) и составляла 190 г/м^3 в июне 2012 г.. Содержание урана в воде, поступающей из-под каскадной стены через скважину 2.1 - 116 (т.о. 8) в помещение 01/3, изменялось в течение года от $0,003$ до $0,019 \text{ г/м}^3$, при этом изотопный состав урана практически соответствует природному урану (см. ниже).

Объемная активность ^{90}Sr в РЗВ в зависимости от места и периода отбора изменяется от $2,7 \cdot 10^7$ до $9,9 \cdot 10^9 \text{ Бк/м}^3$. Максимальная объемная активность ^{90}Sr в РЗВ наблюдалась в мае – июле 2012 г. – $2,6 - 3,6 \cdot 10^{10} \text{ Бк/м}^3$.

Изменения объемной активности ^{137}Cs в течение 2011 – 2013 гг. в постоянных скоплениях РЗВ и быстрых протечках наименьшие относительно других радионуклидов. Объемная активность ^{137}Cs в РЗВ изменяется от $6,7 \cdot 10^8$ (т.о. 18) до $4,4 \cdot 10^{10}$ (т.о. 35) Бк/м^3 при максимальном значении $1,4 \cdot 10^{11}$ (т.о. 32) в июне 2012 г.

Объемная активность относительно короткоживущих изотопов ^{154}Eu ($T_{1/2} - 8,8$ лет) и ^{155}Eu ($T_{1/2} - 4,9$ лет) в РЗВ находится в пределах $4,8 \cdot 10^4 - 1,6 \cdot 10^7 \text{ Бк/м}^3$. В июле 2012 г. в помещении 012/7 (т.о. 32) была максимальная объемная активность ^{154}Eu и ^{155}Eu – $2,7 \cdot 10^8$ и $6,2 \cdot 10^7 \text{ Бк/м}^3$ соответственно.

Суммарная α -активность ТУЭ ($^{238}\text{Pu} + ^{239+240}\text{Pu} + ^{241}\text{Am} + ^{244}\text{Cm} + ^{242}\text{Cm}$) изменяется от $1,7 \cdot 10^6$ (т. о. 18) до $8,3 \cdot 10^7$ (т. о. 32) Бк/м^3 . Следует отметить, что объемная активность ^{244}Cm в РЗВ объекта «Укрытие» практически равна объемной активности ^{238}Pu , а в РЗВ помещения 009/4 даже выше, чем объемная активность ^{238}Pu . Наличие в РЗВ объекта «Укрытие» ^{242}Cm обусловлено распадом материнского радионуклида $^{242\text{m}}\text{Am}$, который является мягким β -излучателем. Наибольший вклад в суммарную α -активность вносит ^{241}Am - более 80 %.

Согласно принятой классификации жидких радиоактивных отходов (ЖРО) по критерию удельной активности низкоактивные, среднеактивные и высокоактивные ЖРО определяют по интервалу значений удельной активности ЖРО в единицах кратности $\text{РС}_\text{В}^{\text{ingest}}$. Для среднеактивных ЖРО интервал кратности составляет $\geq 10^2 < 10^6$, а высокоактивных $\geq 10^6$. Значения $\text{РС}_\text{В}^{\text{ingest}}$ для радионук-

лидов приведены в НРБУ-97: $^{90}\text{Sr} - 1 \cdot 10^4 \text{ Бк/м}^3$, $^{137}\text{Cs} - 1 \cdot 10^5 \text{ Бк/м}^3$, ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , $^{241}\text{Am} - 1 \cdot 10^3 \text{ Бк/м}^3$. Из данных, приведенных в табл. 3 и значений $\text{PC}_B^{\text{ingest}}$ для радионуклидов в обследованных скоплениях РЗВ можно говорить, что РЗВ объекта «Укрытие» являются среднеактивными ЖРО, коэффициент кратности по ^{137}Cs $10^4 - 10^5$, по ТУЭ $10^2 - 10^4$, по ^{90}Sr $10^3 - 10^5$.

Наряду с абсолютными значениями объемной активности радионуклидов в РЗВ для выявления механизмов взаимодействия воды с ТСМ и особенностями миграции радионуклидов с водными потоками важное значение имеют отношения между активностями различных радионуклидов, которые представляют элементы различных групп периодической системы элементов. В табл. 4 представлены отношения активности различных радионуклидов и изотопов в пробах РЗВ.

Таблица 4. Соотношения между активностями радионуклидов в РЗВ объекта «Укрытие»

Номер точки отбора	$^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$	$^{90}\text{Sr}/^{239+240}\text{Pu}$	$^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$	$^{244}\text{Cm}/^{239+240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}/^{154}\text{Eu}$	$^{154}\text{Eu}/^{155}\text{Eu}$
6	7,93	1200	0,502	8,3	0,22	7,1	4,6
7	1,76	1320	0,508	16,8	0,57	4,3	4,6
8	10,7	1210	0,454	0,95	----	---	---
17	6,71	844	0,433	7,6	0,17	5,1	4,5
18	20,7	100	0,407	3,9	0,084	6,1	4,2
20	5,45	994	0,474	9,6	0,23	6,5	4,6
21	227	32	0,499	4,4	0,14	8,7	4,9
30	3,08	2150	0,479	10,6	0,29	5,1	4,6
31	7,79	1120	0,488	9,8	0,31	3,8	4,5
32	3,21	1790	0,503	14,5	0,45	4,5	5,4
35	4,41	3240	0,480	14	0,42	4,7	4,5
ЛТСМ	0,46	52	0,475	1,79	0,051	4,7	5,5
*	1,21	47	0,476	1,78	0,059	2,8	6,1

* Расчетное значение для среднего топлива 4-го блока ЧАЭС на 01.07.2013 г.

Отношения активностей $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$, $^{90}\text{Sr}/^{239+240}\text{Pu}$, $^{244}\text{Cm}/^{239+240}\text{Pu}$ и $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ в РЗВ, отобранных в разных помещениях, заметно отличаются. Эти отношения также отличаются от аналогичных отношений в лавообразных ТСМ (ЛТСМ), что свидетельствует как о разной степени выщелачивания радионуклидов из ТСМ, так и о различном поведении радионуклидов в щелочных гидрокарбонатных растворах, которыми являются РЗВ объекта «Укрытие». Отношение активностей $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ для всех исследованных скоплений РЗВ выше, чем в ЛТСМ и облученном топливе 4-го блока ЧАЭС, и изменяется от 1,8 до 21 за исключением северной части помещения 012/5, где это отношение составляет 227. Следует отметить, что отношение $^{90}\text{Sr}/^{239+240}\text{Pu}$ в этом скоплении минимальное и даже ниже, чем в ЛТСМ. Вероятно, из-за высокого содержания карбонатов более 600 мг/дм^3 и соответственно высокого pH 9,8 в данном скоплении РЗВ происходит соосаждение стронция совместно с карбонатом кальция в виде SrCO_3 . Это подтверждается тем, что в воде данного скопления наименьшая концентрация кальция 3 мг/дм^3 при средней концентрации кальция для остальных водных скоплений 19 мг/дм^3 (см. табл. 2).

Отношения активностей $^{244}\text{Cm}/^{239+240}\text{Pu}$ и $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ изменяются от 0,14 до 0,57 и от 3,9 до 17 соответственно, при этом максимальные значения на порядок выше аналогичных отношений для ЛТСМ. В РЗВ и ЛТСМ отношение активности $^{241}\text{Am}/^{154}\text{Eu}$ с учетом погрешности определения хорошо совпадают, за исключением точек отбора 6 и 21. Расчетное значение для базового топлива 2,8 в два раза ниже среднего значения $5,6 \pm 1,5$ для РЗВ. Это обусловлено ошибкой в расчете наработки изотопов ^{154}Eu и ^{155}Eu в топливе 4-го блока ЧАЭС за время штатной работы блока.

Хорошо известно, что отношение активности изотопов плутония характеризует глубину выгорания облученного ядерного топлива $V = 2,92 + 30,26 \left(\frac{^{238}\text{Pu}}{^{238+239+240}\text{Pu}} \right) \text{ МВт} \cdot \text{сут}/(\text{кг U})$ [8]. В исследованных пробах РЗВ отношение $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ находится в интервале 0,41 – 0,51, что соответствует глубине выгорания топлива 11 - 13 МВт · сут/(кг U).

Среднее значение отношений активностей $^{154}\text{Eu}/^{155}\text{Eu}$ для обследованных скоплений РЗВ составляет $4,6 \pm 0,4$, что немного ниже для измеренных значений отношений активностей $^{154}\text{Eu}/^{155}\text{Eu}$ в ЛТСМ и расчетного для базового топлива. На рис. 6, а показана зависимость между отношениями активностей $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ и $^{154}\text{Eu}/^{155}\text{Eu}$ в РЗВ различных помещений объекта «Укрытие». Наблюдается удовлетворительная корреляция между отношениями $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ и $^{154}\text{Eu}/^{155}\text{Eu}$, что соответствует расчетам наработки изотопов плутония и европия в зависимости от глубины выгорания топлива.

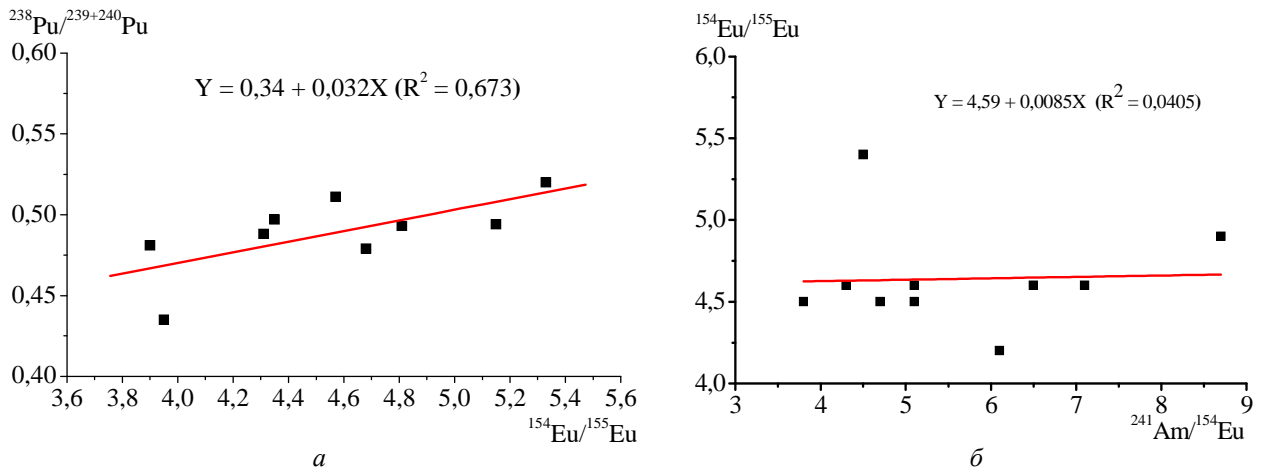


Рис. 6. Корреляционная зависимость между отношениями активностей $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ и $^{154}\text{Eu}/^{155}\text{Eu}$ (а) и $^{241}\text{Am}/^{154}\text{Eu}$ и $^{154}\text{Eu}/^{155}\text{Eu}$ (б) в РЗВ различных помещений объекта «Укрытие».

Как следует из рис. 6, б, корреляция между отношениями активностей америция и европия $^{241}\text{Am}/^{154}\text{Eu}$ и $^{154}\text{Eu}/^{155}\text{Eu}$ практически отсутствует. Отношение $^{241}\text{Am}/^{154}\text{Eu}$ в РЗВ, отобранных в различных помещениях объекта «Укрытие», изменяется от 3,8 до 8,7. Это, вероятно, связано с особенностями поведения в щелочных растворах сложного химического состава америция (продукт распада материнского ^{241}Pu), европия (^{154}Eu и ^{155}Eu продукты деления) и плутония.

На рис. 7 и 8 показано относительное изменение радионуклидного состава γ -излучающих и α -излучающих радионуклидов в ЛТСМ и ЖРО объекта «Укрытие». Доля ^{137}Cs увеличивается с 93 % в ЛТСМ до 99,3 % в ЖРО. Вклад в α -активность ^{241}Am возрастает с 54 % в ЛТСМ до 86 % в ЖРО.

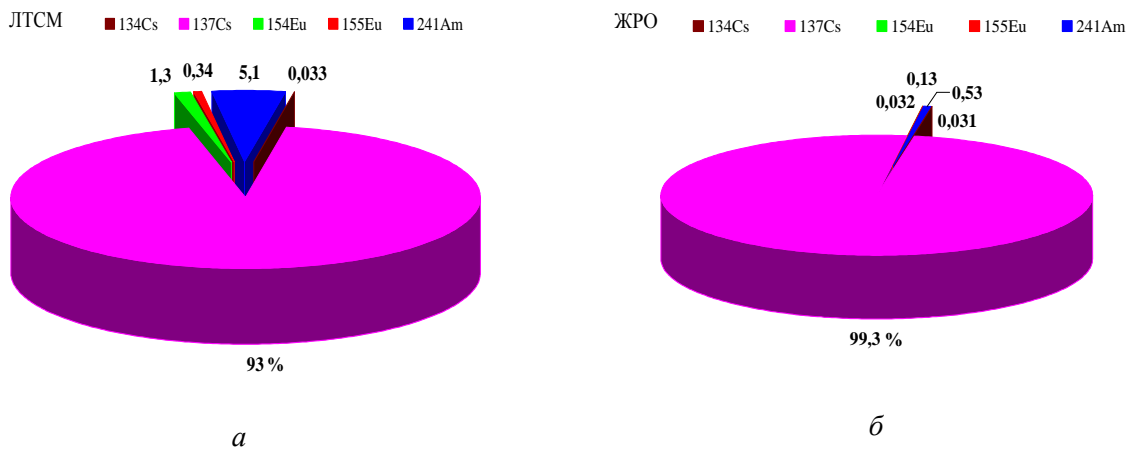


Рис. 7. Относительный вклад радионуклидов в γ -активность ЛТСМ (а) и ЖРО объекта «Укрытие» (б).

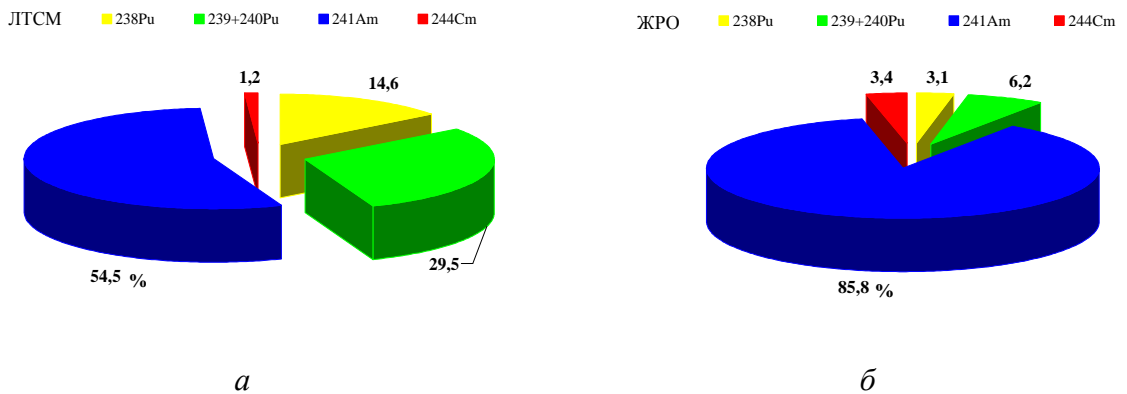


Рис. 8. Относительный вклад радионуклидов в α -активность ЛТСМ (а) и ЖРО объекта «Укрытие» (б).

В РЗВ из помещения 001/3 ВСПО (т.о. 30), которое является наибольшим водным скоплением объекта «Укрытие» (см. табл. 1), сумма объемных активностей ^{137}Cs и ^{90}Sr в 2013 г, не превысила величины $1,5 \cdot 10^{10}$ Бк/м³. Концентрация урана составляла 7,2 – 13 г/м³. Объемная активность Pu_{Σ} ($^{238}\text{Pu} + ^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$) в отчетный период находилась в диапазоне $1,4 \cdot 10^6 - 3,1 \cdot 10^6$ Бк/м³, при этом его максимальное значение не превышает максимальное значение 2012 г.

Динамика концентраций радионуклидов, урана и ТУЭ в помещении 001/3 обусловлена поступлением высокоактивных протечек со стороны бассейна-барботера и низкоактивных протечек со стороны каскадной стены. Переток РЗВ из бассейна-барботера в помещение 001/3 и, как следствие, повышение концентрации радионуклидов начинается в период интенсивного поступления влаги в объекте «Укрытие» в весенне-летний период. Преимущественное поступление низкоактивных протечек со стороны каскадной стены осенью и зимой приводит к разбавлению РЗВ в помещении 001/3. На рис. 9 представлена динамика среднегодовых объемных активностей ^{90}Sr , $^{238+239+240}\text{Pu}$ и ^{241}Am в скоплении РЗВ в помещении 001/3 с 1996 по 2013 г. Наложение линий временного тренда, имеющих экспоненциальный характер, показывает, что для указанных радионуклидов в водном скоплении помещения 001/3 в целом продолжает сохраняться тенденция к увеличению их концентраций.

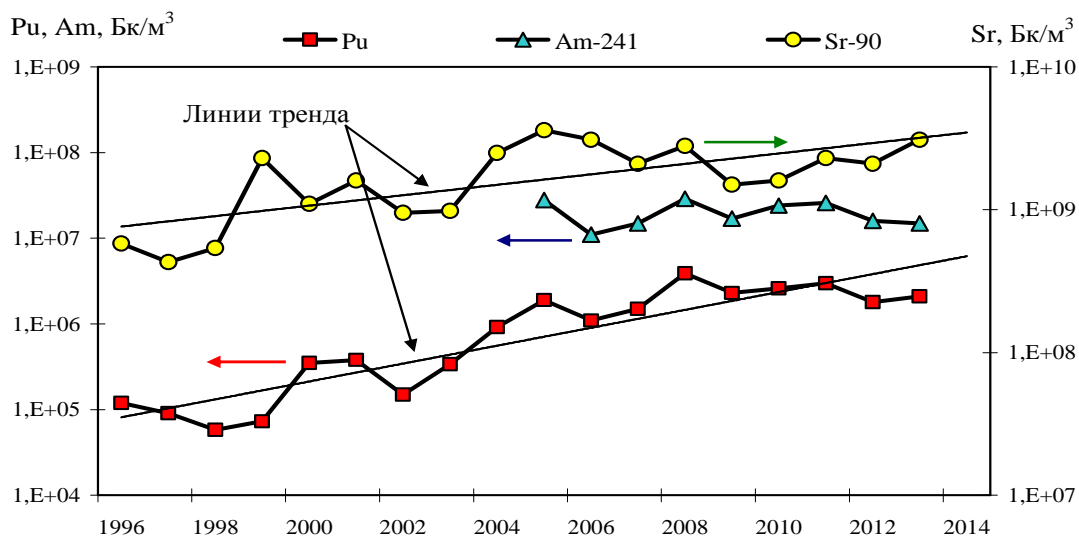


Рис. 9. Динамика среднегодовой объемной активности ^{90}Sr , $^{238+239+240}\text{Pu}$ и ^{241}Am в скоплении РЗВ в помещении 001/3 (т. о. 30).

На рис. 10 представлена динамика среднегодовых объемных активностей ^{90}Sr , $^{238+239+240}\text{Pu}$ и ^{241}Am в протечках РЗВ из ПРК в помещении 01/3. Наложение линий временного тренда, имеющих экспоненциальный характер, показывает, что для указанных радионуклидов в протечках в целом сохраняется тенденция к увеличению их концентраций.

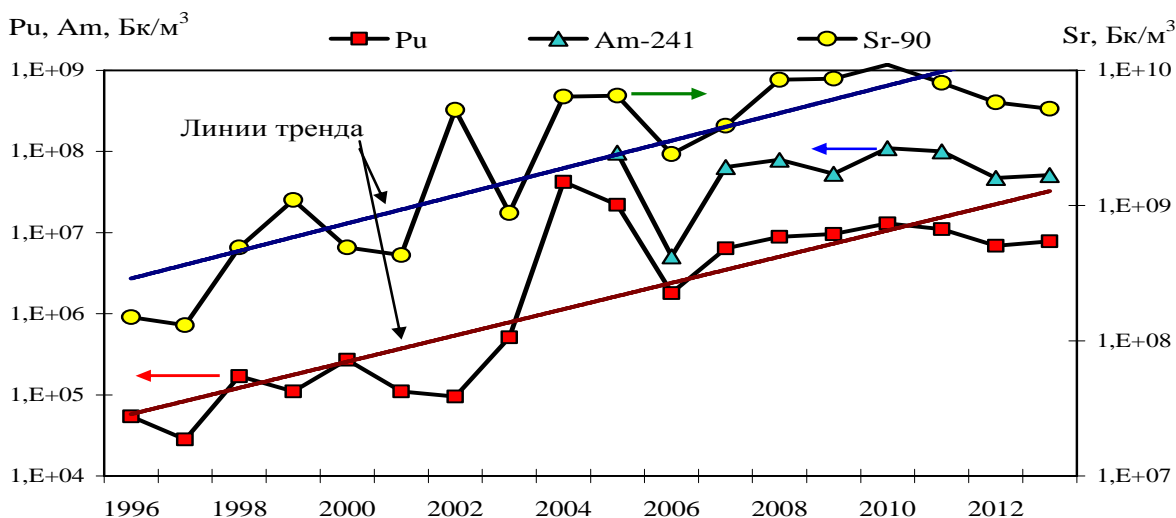


Рис. 10. Динамика среднегодовой объемной активности ^{90}Sr , $^{238+239+240}\text{Pu}$ и ^{241}Am в РЗВ из ПРК (т. о. 20).

Динамика изменений объемной активности ^{241}Am и концентраций урана в водных скоплениях, локализованных на 1-м и 2-м этажах бассейна-барботера, показана на рис. 11 и 12 соответственно. Скопления РЗВ в южной части помещений 012/5-8 (т. о. 32) и северной части этих помещений (т. о. 31) на отметке $-0,65$ м разделены помещениями центральной части ряды Ж – П (см. рис. 1), где нет воды. Поэтому в настоящее время гидравлическая связь между этими помещениями отсутствует. Возможен переток РЗВ в эти помещения из водных скоплений, локализованных выше на отметке $+2,20$ м однако экспериментальные данные (см. табл. 3, рис. 11 и 12) свидетельствуют о том, что объемы перетока из данных помещений незначительны. Скопления РЗВ в южной части помещений 012/13-16 (т. о. 21) и северной части (т. о. 6) на отметке $+2,20$ м разделены помещениями центральной части, ряды Ж – П (см. рис. 1), где вероятно имеются водные скопления, к которым доступа нет. При значительном увеличении уровня воды в центральной части помещений 012/13-16 происходит переток РЗВ в северную часть помещения 012/13 (т. о. 21) и южную часть помещения 012/7 (т. о. 32). В результате происходит резкое возрастание концентрации урана и объемной активности радионуклидов в т. о. 21 и 32.

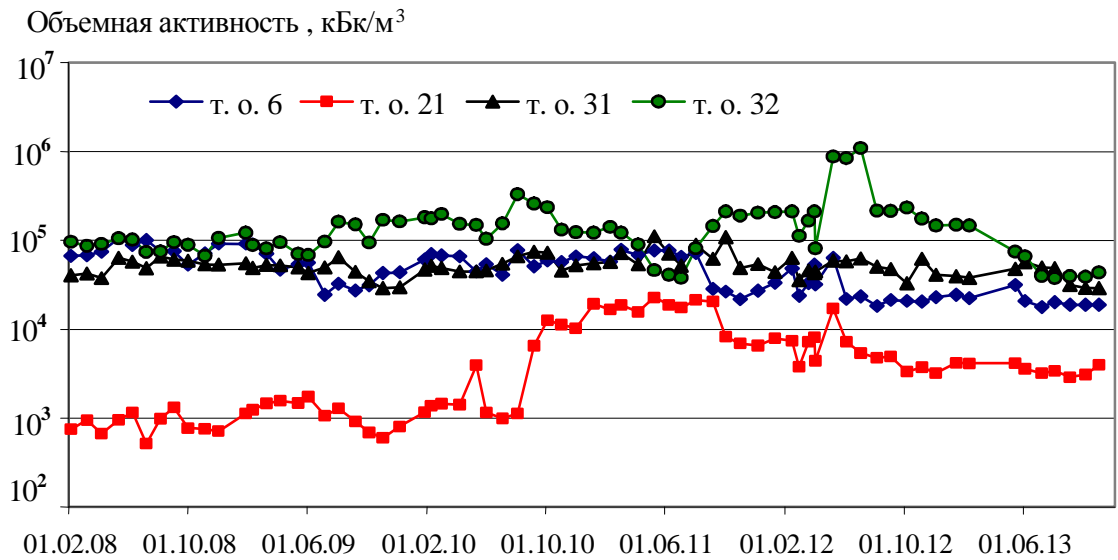


Рис. 11. Объемная активность ^{241}Am в воде помещений 012/16 (т. о. 6), 012/13 (т. о. 21), 012/6 (т. о. 31) и 012/7 (т. о. 32).

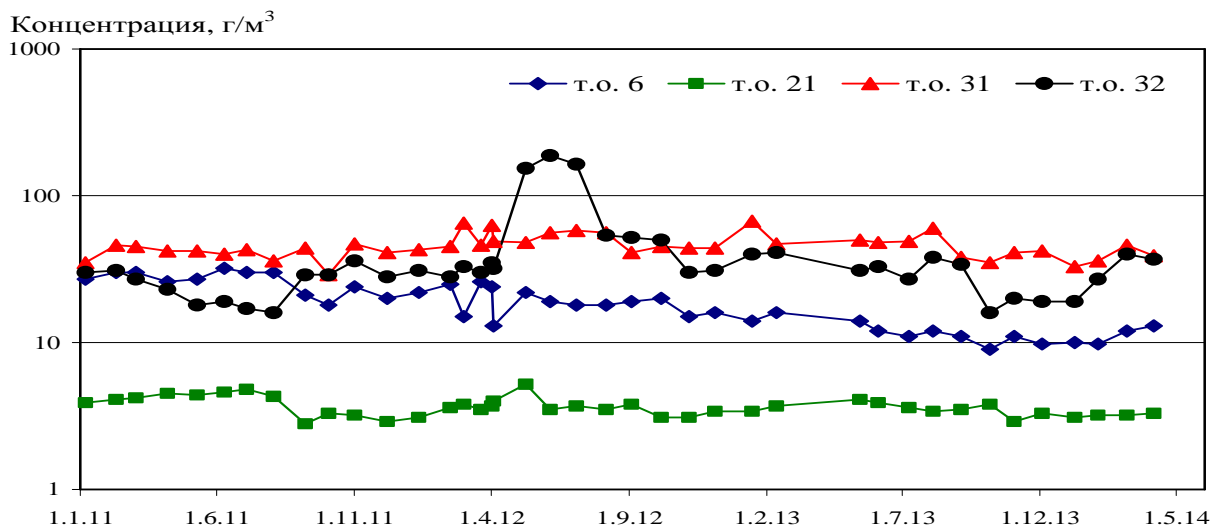


Рис. 12. Динамика концентрации урана в воде помещений 012/16 (т. о. 6), 012/13 (т. о. 21), 012/6 (т. о. 31), и 012/7 (т. о. 32).

На рис. 13 показана динамика изменения концентрации урана в РЗВ помещения 001/3 в период 2011 – 2013 гг. Линия линейного тренда показывает устойчивый рост концентрации урана в этом скоплении, особенно в 2013 г. Это является результатом того, что с марта 2013 г. заметно уменьшилось поступление воды из скважины 2.1.–116, а приток высокоактивных РЗВ из ПРК не уменьшился (рис. 14). Эта же тенденция наблюдается и в начале 2014 г.

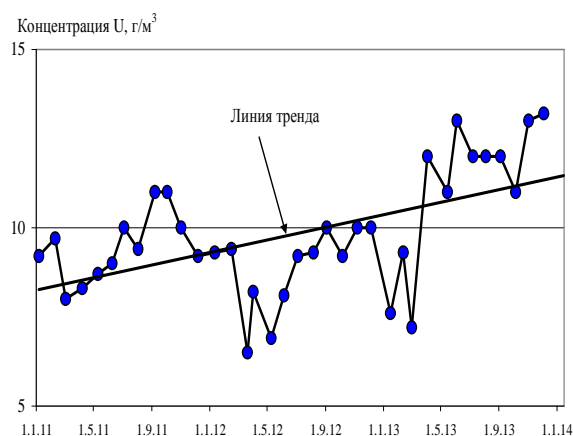


Рис. 13. Концентрации урана в воде помещения 001/3 (т. о. 30).

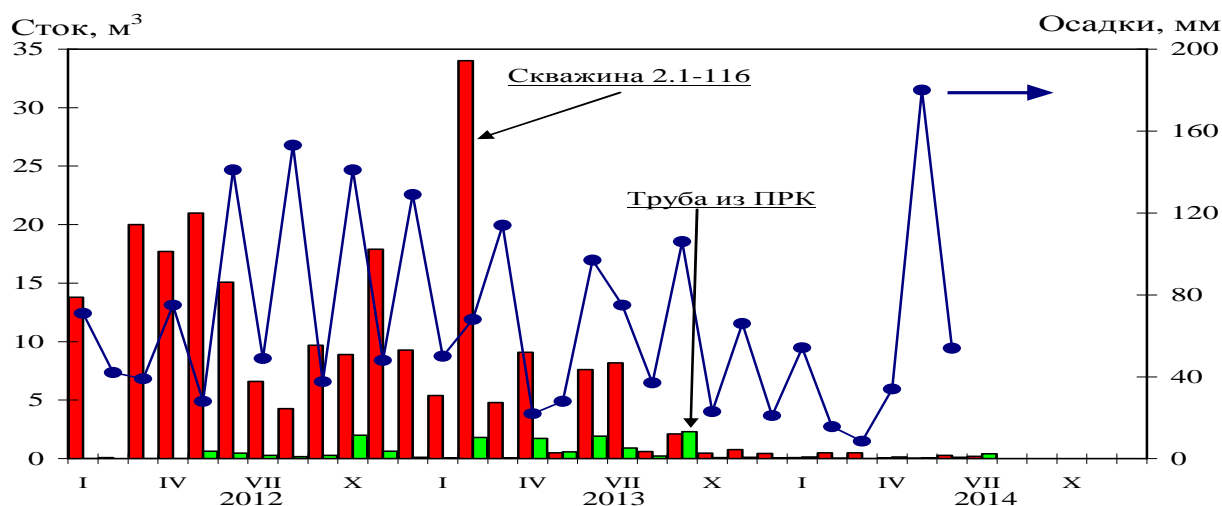


Рис. 14. Динамика поступления воды в помещение 001/3 из скважины 2.1.–116 и трубы из ПРК.

Таблица 5. Объемная активность (Бк/м³) и массовые доли изотопов урана (%) в ЖРО объекта «Укрытие»

Номер точки отбора	²³⁴ U		²³⁵ U		²³⁶ U		²³⁸ U	
	Бк/м ³	%	Бк/м ³	%	Бк/м ³	%	Бк/м ³	%
6	$8,4 \cdot 10^5$	0,015	$1,7 \cdot 10^4$	0,96	$1,0 \cdot 10^5$	0,17	$3,1 \cdot 10^5$	98,87
7	$9,6 \cdot 10^5$	0,014	$2,1 \cdot 10^4$	0,89	$1,4 \cdot 10^5$	0,19	$3,7 \cdot 10^5$	98,92
8	$2,3 \cdot 10^3$	0,016	$3,6 \cdot 10^1$	0,75	$2,3 \cdot 10^2$	0,12	$7,7 \cdot 10^2$	99,12
18	$4,1 \cdot 10^4$	0,017	$9,7 \cdot 10^2$	1,14	$3,9 \cdot 10^3$	0,15	$1,3 \cdot 10^4$	98,77
20	$5,9 \cdot 10^5$	0,015	$1,6 \cdot 10^4$	1,02	$9,1 \cdot 10^4$	0,18	$2,1 \cdot 10^5$	98,80
21	$1,3 \cdot 10^5$	0,017	$2,6 \cdot 10^3$	0,98	$1,6 \cdot 10^4$	0,20	$4,1 \cdot 10^4$	98,83
30	$3,0 \cdot 10^5$	0,016	$5,8 \cdot 10^3$	0,91	$3,1 \cdot 10^4$	0,18	$9,9 \cdot 10^4$	98,93
31	$1,9 \cdot 10^6$	0,018	$3,1 \cdot 10^4$	0,84	$2,2 \cdot 10^5$	0,19	$5,7 \cdot 10^5$	98,96
32	$1,2 \cdot 10^6$	0,015	$2,5 \cdot 10^4$	0,89	$1,8 \cdot 10^5$	0,21	$4,3 \cdot 10^5$	98,89
35	$3,8 \cdot 10^5$	0,015	$7,7 \cdot 10^3$	0,86	$4,8 \cdot 10^4$	0,18	$1,4 \cdot 10^5$	99,01

Для оценки ядерной и радиационной безопасности скоплений РЗВ необходимо знать не только валовое содержание урана, но и его изотопный состав, в частности массовую долю ²³⁵U. Содержание изотопов урана в РЗВ объекта «Укрытие» определяли α-спектрометрическими измерениями ис-

точников урана, выделенного из проб РЗВ. Объемная активность ($\text{Бк}/\text{м}^3$) изотопов $^{234} - ^{238}\text{U}$ в пробах РЗВ, отобранных в контролируемых водных скоплениях объекта «Укрытие», представлена в табл. 5. Массовые доли изотопов урана (%) рассчитывали по результатам обработки α -спектров урана.

Доля урана ^{235}U , за исключением т. о. 8, составляет 0,86 – 1,14 %, что в целом соответствует «среднему» выгоранию ядерного топлива 4-го реактора ЧАЭС. Данные, полученные α -спектрометрическими измерениями хорошо согласуются с результатами масс-спектрометрических измерений. Максимальное содержание урана в РЗВ объекта «Укрытие» наблюдалось в июне 2012 г. и составляло 180 – 190 $\text{г}/\text{м}^3$, при этом концентрация ^{235}U не превышала 1,7 $\text{г}/\text{м}^3$.

Выводы

Согласно принятой классификации ЖРО по интервалу значений удельной активности ЖРО в единицах кратности $\text{РС}_\text{В}^{\text{ingest}}$ можно отнести РЗВ объекта «Укрытие» к категории среднеактивных ЖРО, коэффициент кратности по ^{137}Cs $10^4 - 10^5$, по ГУЭ $10^2 - 10^4$, по ^{90}Sr $10^3 - 10^5$.

В водном скоплении помещения 001/3 продолжает сохраняться тенденция к увеличению концентрации урана и объемной активности радионуклидов.

Целесообразно использовать нитрат-ион в качестве маркера для контроля протечек пылеподавляющих и технологических растворов через помещения, где локализованы ТСМ.

Отношения активностей $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$, $^{90}\text{Sr}/^{239+240}\text{Pu}$, $^{244}\text{Cm}/^{239+240}\text{Pu}$ и $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ в РЗВ, отобранных в разных помещениях, заметно отличаются. Эти отношения также отличаются от аналогичных отношений в ЛТСМ, что свидетельствует как о разной степени выщелачивания радионуклидов из ТСМ, так и о различном поведении радионуклидов в щелочных гидрокарбонатных растворах, которыми являются РЗВ объекта «Укрытие».

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Богатов С. А., Корнеев А. А., Криницин А. П. и др. Исследования водопотоков внутри объекта «Укрытие» // Радиохимия. – 2000. – Т. 42, № 3. – С. 276 – 280.
2. Корнеев А. А., Криницин А. П., Стрихарь О. Л., Щербин В. Н. Жидкие радиоактивные отходы внутри объекта «Укрытие» // Там же. – 2002. – Т. 44, № 6. – С. 545 – 552.
3. Криницин 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.
4. Одинцов А.А., Хан В.Е., Краснов В.А. и др. Трансурановые элементы в жидких радиоактивных отходах объекта «Укрытие» // Там же. – 2009. – Т. 51, № 4. – С. 337 - 343.
5. Боровой А. А. Ядерная безопасность скоплений воды в объекте «Укрытие» // Атомная энергия. – 2009. – Т. 107, № 2. – С. 91 – 95.
6. Одинцов А. А., Хан В. Е., Краснов В. А., Щербин В. Н. Жидкие радиоактивные отходы на нижних отметках объекта «Укрытие» // Проблемы безопасности атомных электростанций і Чернобиля. – 2011. – Вип. 16. – С. 110 – 123.
7. 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.
8. Пазухин Э.М., Боровой А.А. Соотношение изотопов плутония в зависимости от степени выгорания ядерного топлива 4-го блока ЧАЭС // Там же. – 2003. – Т. 45, № 2. – С. 191 – 196.

О. О. Оди́нцов, В. Є. Хан, В. О. Краснов, В. М. Щербін, М. М. Яковенко

Інститут проблем безпеки АЕС НАН України, вул. Кірова, 36а, Чорнобиль, 07270, Україна

РАДІОАКТИВНО ЗАБРУДНЕНІ ВОДИ В ПРИМІЩЕННЯХ ОБ'ЄКТА «УКРИТТЯ»

Представлено результати моніторингу скупчень рідких радіоактивних відходів (РРВ) на нижніх відмітках об'єкта «Укриття». Визначено зміст макрокомпонентів, урану, продуктів поділу (^{90}Sr , ^{137}Cs , $^{154,155}\text{Eu}$) і трансуранових елементів (^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am , ^{244}Cm) в РРВ об'єкта «Укриття» в період 2011 – 2013 рр. Показано, що сезонні коливання концентрації урану та об'ємних активностей радіонуклідів в РРВ можуть становити до одного порядку величини.

Ключові слова: уран, плутоній, америцій, рідкі радіоактивні відходи, об'єкт «Укриття».

RADIOACTIVE CONTAMINATE WATER IN THE ROOMS OF OBJECT «UKRYTTYA»

The results of monitoring of accumulations of liquid radioactive waster (LRW) of object «Ukryttya» are presented. Maintenance of uranium, ^{90}Sr , ^{137}Cs , $^{154,155}\text{Eu}$ and transuranium (^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am , ^{244}Cm) in LRW of object «Ukryttya» in the period of 2011 – 2013 a.a. are determined. It is show that the seasonal variations of concentration of uranium and volumes activity of radionuclides in LRW can to changing to one order of volume.

Keywords: uranium, plutonium, americium, liquid radioactive waster, object “Ukryttya”.

REFERENCES

1. Bogatov S.A., Korneev A.A., Krynitsyn A. P. et al. Researches of water streams into object «Ukryttya» // Radiokhimiya. - 2000. – Vol. 42, № 3. – P. 276 – 280. (Rus)
2. Korenev A. A., Krinitsyn A. P., Strixar O. L., Shcherbin V. M. Liquid radioactive waster into object «Ukryttya» // Radiokhimiya. – 2002. – Vol. 44, № 6. – P. 545 – 552. (Rus)
3. Krinitsyn A. P., Strixar O. L., Shcherbin V. M. The problem of handling the liquid radioactive wasters of object «Ukryttya» // Radiokhimiya. – 2003. – Vol. 45, № 5. – P. 461 – 465. (Rus)
4. Odintsov O. O., Khan V. E., Krasnov V. O. et al. Transuranium elements in the liquid radioactive wasters of object «Ukryttya» // Radiokhimiya. – 2009. – Vol. 51, № 4. – P. 337 - 343. (Rus)
5. Borovoy A. A. Nuclear safety of accumulations of water in an object «Ukryttya» // Atomnaya energiya. - 2009. – Vol. 107, No. 2. – P. 91 – 95. (Rus.)
6. Odintsov O. O., Khan V. E., Krasnov V. O., Shcherbin V. M. Liquid radioactive waster on lower marks of object «Ukryttya» // Problemy bezpeky atomnyh elektrostantsiy i Chornobylya (Problems of nuclear power plants and of Chornobyl). – 2011. - Iss. 16. - P. 110 - 123. (Rus)
7. Odintsov O. O., Pazukchin E.M., Khan V. E., Procedure for Simultaneous Determination of Uranium and Transuranium Elements in Groundwater and Liquid Radioactive Wastes from the Shelter // Radiokhimiya. – 2005. – Vol. 47, № 5. – P. 467 – 471. (Rus)
8. Pazukchin E.M., Borovoy A. A. Correlation of isotopes of plutonium depending on the degree of burning down of nuclear fuel of 4th block of ChNPP // Radiokhimiya. – 2003. – Vol. 45, № 2. – P. 192 – 196. (Rus)

Надійшла 08.07.2014

Received 08.07.2014