

СОДЕРЖАНИЕ  $^{129}\text{I}$  В РАДИОАКТИВНО ЗАГРЯЗНЕННОЙ ВОДЕ ОБЪЕКТА «УКРЫТИЕ»

Определено содержание  $^{129}\text{I}$  в радиоактивно загрязненной воде (РЗВ), отобранной из помещений объекта «Укрытие». Активность изотопов йода определяли  $\gamma$ -спектрометрическими измерениями фракции йода, выделенной из РЗВ на носителе стабильного йода. Концентрирование и очистку изотопов йода от присутствующих в РЗВ  $\gamma$ -излучающих радионуклидов  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{154,155}\text{Eu}$  и  $^{241}\text{Am}$  производили по экстракционной методике. Объемная активность  $^{129}\text{I}$  в исследованных пробах РЗВ составляет  $5,3 \pm 2,1$  Бк/дм<sup>3</sup>. Отношения активностей в РЗВ  $^{90}\text{Sr}/^{129}\text{I} - (2,6 \pm 1,3) \cdot 10^6$  и  $^{137}\text{Cs}/^{129}\text{I} - (5,7 \pm 1,8) \cdot 10^6$ . В пробах воды, непосредственно протекающей через помещения с топливосодержащими материалами с высокой концентрацией урана, отобранных из скважины Ю-9-Б, короткоживущих изотопов йода  $^{131, 132, 133, 135}\text{I}$  не обнаружено.

*Ключевые слова:*  $^{129}\text{I}$ , экстракция, жидкие радиоактивные отходы, объект «Укрытие».

## Введение

При эксплуатации АЭС, переработке и утилизации отработавшего ядерного топлива (ОЯТ) в окружающую среду, несмотря на предпринимаемые усилия по минимизации выбросов, попадают техногенные радионуклиды. Одним из продуктов деления, которому уделяется большое внимание, является радиоактивный йод. Из-за большого разнообразия химических форм, а также высокой мобильности изотопов йода в окружающей среде он представляет большую экологическую опасность. Среди изотопов йода основное внимание уделяется наиболее долгоживущему  $^{129}\text{I}$  ( $T_{1/2} = 1,57 \cdot 10^7$  лет) и короткоживущему  $^{131}\text{I}$  ( $T_{1/2} = 8,04$  сут) [1].

Радиоактивные изотопы йода являются одними из основных радионуклидов, определяющих внутреннее облучение в первые недели после аварийных выбросов на АЭС. Изотопы йода поступают в организм различными путями (через легкие, пищеварительный тракт, кожу) и накапливаются в щитовидной железе.

В процессе эксплуатации твэлов в ядерных реакторах возможно нарушение герметичности их оболочек. Различают два типа таких нарушений: образование микротрещин, через которые могут проникать только газообразные продукты деления (ПД) (газовая неплотность), и наличие дефектов, при которых возможен непосредственный контакт диоксида урана с теплоносителем, что приводит к проникновению в него кроме газообразных еще и других осколков деления. К числу реперных для контроля герметичности оболочек твэлов отнесены следующие радионуклиды:  $^{131}\text{I}$ ,  $^{132}\text{I}$ ,  $^{133}\text{I}$ ,  $^{134}\text{I}$ ,  $^{135}\text{I}$ . В работе [2] представлена методика, ориентированная на контроль активности  $^{131}\text{I}$ ,  $^{132}\text{I}$ ,  $^{133}\text{I}$ ,  $^{134}\text{I}$ ,  $^{135}\text{I}$  в циркулирующем по байпасной линии теплоносителя первого контура реактора ВВЭР-1000 в диапазоне величин  $(3,7 \cdot 10^3 \div 3,7 \cdot 10^8)$  Бк/кг.

В работе [3] было высказано и обосновано предположение о том, что в юго-восточном квадранте помещения 305/2 объекта «Укрытие» находятся два скрытых скопления топливосодержащих материалов (ТСМ). При этом, как показали расчеты, в такой лаве содержание урана должно быть значительно выше, чем в других продуктах взаимодействия ядерного топлива с конструкционными материалами разрушенного блока. Общепринятый консервативный подход к проблемам ядерной безопасности применительно к анализу состояния возможного скрытого скопления лавы в помещении 305/2 дает основание утверждать, что в настоящее время эта структура может являться потенциально опасной критмассовой зоной, которая для обеспечения ядерной и радиационной безопасности объекта «Укрытие» требует систематического контроля. Одними из маркеров протекания реакций деления могут являться короткоживущие изотопы  $^{131}\text{I}$ ,  $^{132}\text{I}$ ,  $^{133}\text{I}$ ,  $^{134}\text{I}$ ,  $^{135}\text{I}$ . В реальных условиях объекта «Укрытие» наиболее вероятно определение в воде омывающей ТСМ объемной активности  $^{131}\text{I}$ .

Исследованиям радионуклидного и макрокомпонентного состава радиоактивно загрязненной воды (РЗВ) объекта «Укрытие» посвящен ряд работ [4 - 6]. Определено содержание макрокомпонентов, урана,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{154,155}\text{Eu}$ ,  $^{238,239,240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$  и  $^{242,244}\text{Cm}$  в скоплениях и протечках РЗВ в помещениях на нижних отметках объекта «Укрытие». Однако работ по определению содержания изотопов йода до настоящего времени не производилось.

Целью данной работы было определение объемной активности изотопов йода  $^{129}\text{I}$ ,  $^{131}\text{I}$ ,  $^{132}\text{I}$ ,  $^{133}\text{I}$  и  $^{135}\text{I}$  в РЗВ, поступающей из скважин, пробуренных в помещении 305/2, и основных водных скоплениях локализованных на нижних отметках объекта «Укрытие».

### Материалы и методы

Пробы РЗВ для определения содержания изотопов йода отбирались из скважин, пробуренных в помещении 305/2 на отметке +9,0 м и вводных скоплениях на нижних отметках объекта «Укрытие». Пробы воды отбирали в период с апреля 2009 г. по ноябрь 2013 г. В настоящее время наиболее информативной скважиной по радионуклидному составу РЗВ можно считать скважину Ю-9-Б, которая пробурена на отметке +8,8 м из помещения 208/10 с юга на север помещения 305/2. Эта скважина проходит в непосредственной близости от скопления лавообразных ТСМ (ЛТСМ). На рис. 1 показано расположение скважины Ю-9-Б.

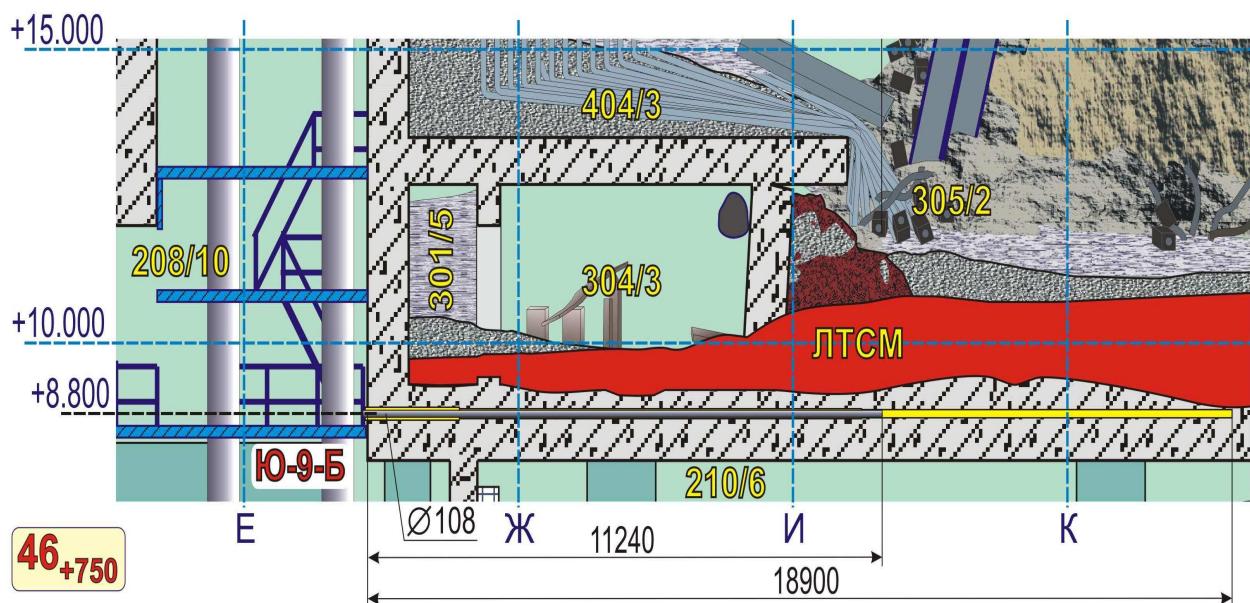


Рис. 1. План-схема расположения скважины Ю-9-Б.

В зависимости от сезона и интенсивности атмосферных осадков из скважины Ю-9-Б в помещение 208/10 поступает РЗВ в количестве от 0,01 до 1,0  $\text{дм}^3/\text{сут}$ . Воду собирали в контейнер, установленный непосредственно у скважины Ю-9-Б. Объем пробы воды, отбираемый для исследований, составлял 0,7 – 1,0  $\text{дм}^3$ . Предварительная подготовка проб воды заключалась в фильтровании пробы через бумажный фильтр «синяя лента» и внесение носителя стабильного йода в виде  $\text{NH}_4\text{I}$ . Параллельно в каждой пробе воды определяли pH, макрокомпонентный состав, концентрацию урана и объемные активности радионуклидов.

Выделение и концентрирование радиоизотопов йода из РЗВ объекта «Укрытие» производили по экстракционной методике, за основу которой была принята схема выделения, предложенная в работе [7]. Методика адаптирована с учетом сложного макрокомпонентного состава РЗВ. В работах [4 – 6] определено, что РЗВ объекта «Укрытие» являются щелочными карбонатными растворами с pH 8,5 – 10. Методика основана на экстракции  $\text{I}_2$  четыреххлористым углеродом после осуществления полного обмена между радиойодом и носителем (стабильный йод). Полный обмен достигается окислением  $\text{I}^-$  до  $\text{I}_2$  в подкисленном растворе (рис. 2, а). Йод экстрагируется  $\text{CCl}_4$  при комнатной температуре при интенсивном перемешивании в течение 5 – 10 мин. Соотношение водной и органической фаз 20 : 1. Измерение активности выделенного препарата выполняли на  $\gamma$ -спектрометрическом комплексе, состоящем из полупроводникового детектора GL2020R из сверхчистого германия CANBERRA с разрешением 0,57 кэВ для энергии  $\gamma$ -квантов 122 кэВ ( $\gamma$ -линии  $^{57}\text{Co}$ ) и 16000-канального амплитудного анализатора импульсов CANBERRA. Измерительный диапазон охватывает интервал от 10 до 1400 кэВ. Детектор имеет бериллиевое окно толщиной 500 мкм. Минимально измеряемая активность для геометрии измерений на  $\gamma$ -линии 59 кэВ  $^{241}\text{Am}$  равна 0,03 Бк/пробу, а для  $^{137}\text{Cs}$  (661,6 кэВ) – 0,4 Бк/пробу. Обработку аппаратных спектров производили с использованием программы GENIE-2000 по алгоритмам, заложенным в программе.

Измерение активности изотопов йода производили непосредственно в виде органической фазы  $\text{CCl}_4$  в полиэтиленовой вialsе объемом 20 мл (см. рис. 2, б). Чувствительность метода для  $^{129}\text{I}$  – 0,2 Бк/препарат, химический выход в среднем составляет 80 – 90 % за две экстракции.

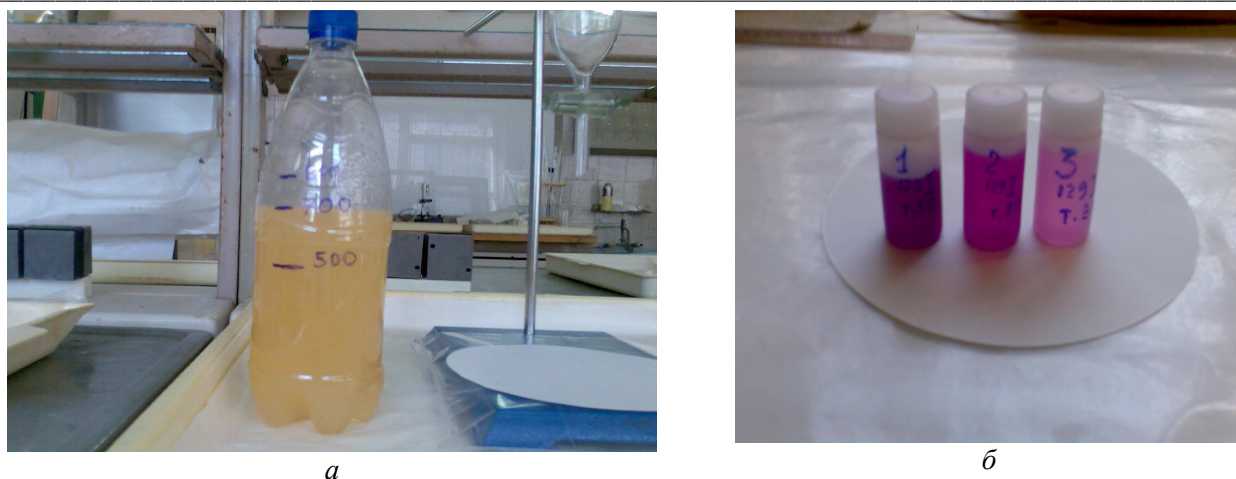


Рис. 2 Исходная проба РЗВ (а) и выделенные препараты изотопов йода (б).

С помощью  $\gamma$ -спектрометра нами были получены и проанализированы  $\gamma$ -спектры исходных проб РЗВ объекта «Укрытие» и выделенных из них фракций йода. Сложность спектров зависит от радионуклидного состава проб РЗВ, времени доставки проб до измерительного участка и эффективности очистительной методики. В качестве примера на рис. 3 приведен  $\gamma$ -спектр, типичный для РЗВ из скважины Ю-9-Б объекта «Укрытие». На рис. 4 показан  $\gamma$ -спектр выделенной и очищенной от других радионуклидов фракции йода.

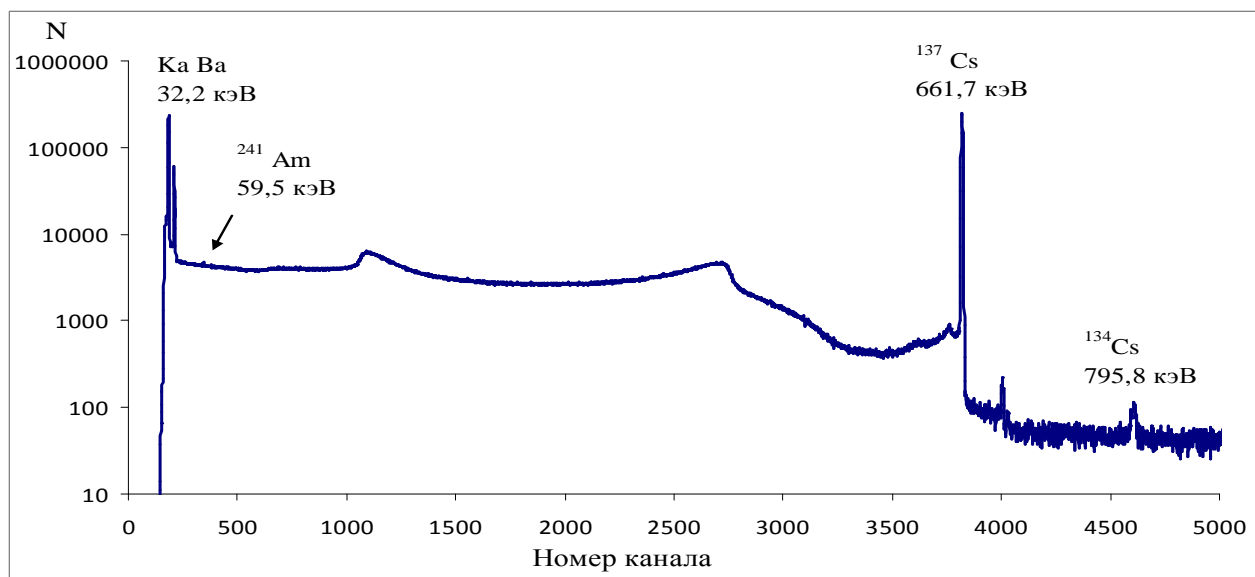


Рис. 3. Типичный  $\gamma$ -спектр РЗВ из скважины Ю-9-Б.

Как видно на рис. 4, в выделенной фракции йода присутствуют небольшие количества  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{241}\text{Am}$ . В низкоэнергетической области спектра хорошо видны основные линии  $^{129}\text{I}$ : 29,45 + 29,78; 33,6; 39,58 кэВ. Коэффициент очистки фракции йода от  $^{137}\text{Cs}$  –  $4 \cdot 10^6 - 1 \cdot 10^8$ ,  $^{154}\text{Eu}$  –  $> 3 \cdot 10^4$ ,  $^{241}\text{Am}$  –  $> 4 \cdot 10^4$ .

Относительно низкие коэффициенты очистки йода от америция и европия по сравнению с цезием при экстракции четыреххлористым углеродом можно объяснить образованием в воде объекта «Укрытие» металлоорганических комплексов америция и европия, которые в данных условиях переходят в органическую фазу. В целом адаптированная экстракционная методика позволяет выделять изотопы йода из РЗВ объекта «Укрытие» с удовлетворительной радиохимической чистотой для прямых  $\gamma$ -спектрометрических измерений  $^{129,131}\text{I}$ . В объектах окружающей среды из-за низкого удельного содержания  $^{129}\text{I}$  определяют в основном методом нейтронно-активационного анализа или масс-спектрометрии, что связано с определенными техническими трудностями.

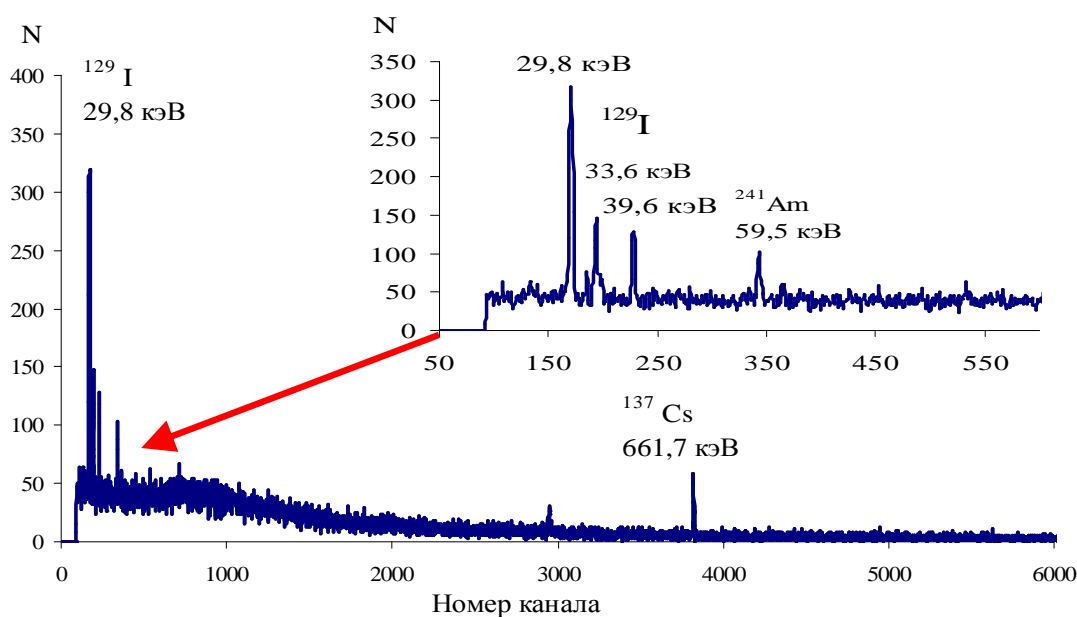


Рис. 4. Гамма-спектр фракции йода, выделенной из РЗВ объекта «Укрытие»

### Результаты и обсуждения

Содержание фосфатов, карбонатов и гидрокарбонатов в воде, поступающей из скважины Ю-9-Б, приведено в табл. 1. В период наблюдений с апреля 2009 г. по ноябрь 2013 г. pH воды увеличился с 8,5 до 9,1, при этом концентрация карбонатов  $\text{CO}_3^{2-}$  возросла до  $40 \text{ мг/дм}^3$ . В 2013 г. средние значения этих показателей для контролируемых водных скоплений составляли pH  $9,1 \pm 0,34$  и концентрация  $\text{CO}_3^{2-}$   $68 \pm 36 \text{ мг/дм}^3$  [8], т.е. вода, поступающая из скважины Ю-9-Б по макрокомпонентному составу, незначительно отличается от РЗВ локализованных в других водных скоплениях.

Таблица 1. Концентрация макрокомпонентов в воде скважины Ю-9-Б,  $\text{мг/дм}^3$ 

Дата отбора	pH	$\text{HPO}_4^{2-}$	$\text{CO}_3^{2-}$	$\text{HCO}_3^-$
06.04.2009	8,6	0,72	-	240
08.04.2010	8,5	-	-	520
01.06.2010	8,7	0,09	-	510
29.06.2010	8,8	0,6	-	460
04.09.2013	9,1	-	40	380
29.10.2013	9,1	-	37	410

Объемная активность радионуклидов и концентрация урана в пробах воды, отобранной из скважины Ю-9-Б, представлены в табл. 2. Как следует из таблицы, в РЗВ скважины Ю-9-Б присутствуют уран, ПД  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{154}\text{Eu}$ ,  $^{155}\text{Eu}$  и  $^{129}\text{I}$  и трансурановые элементы (ТУЭ)  $^{238+239+240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{244}\text{Cm}$  и  $^{242}\text{Cm}$ . Следует отметить, что концентрация урана в воде скважины Ю-9-Б в апреле – июне 2010 г. составляла  $140 - 180 \text{ г/м}^3$ , в то время как максимальная концентрация урана в других водных скоплениях не превышала  $44 \text{ г/м}^3$ . Наличие в воде, поступающей из скважины Ю-9-Б урана, ПД и ТУЭ свидетельствует о том, что данная вода непосредственно контактировала с ТСМ. Объемная активность  $^{129}\text{I}$  в исследованных пробах воды из скважины Ю-9-Б находится в пределах от 5,6 до  $8,4 \text{ Бк/дм}^3$ , среднее значение  $6,7 \pm 2,5 \text{ Бк/дм}^3$  (средневзвешенное значение с учетом погрешностей индивидуальных измерений  $5,9 \pm 0,6 \text{ Бк/дм}^3$ ). При штатной работе реактора  $^{129}\text{I}$  образуется за счет деления с выходом 0,9 % и при распаде материнского  $^{129}\text{Te}$  ( $T_{1/2} = 69 \text{ мин}$ ) и  $^{129\text{m}}\text{Te}$  ( $T_{1/2} = 33,6 \text{ сут}$ ). По различным оценкам в период активной фазы аварии на 4-м блоке ЧАЭС до 60 % изотопов йода было выброшено в виде легколетучих соединений. Поверхностное загрязнение помещений объекта «Укрытие» обусловлено суперпозицией двух компонент «топливной» (диспергированное ядерное топливо в виде «горячих» частиц) и конденсационной (легколетучие соединения цезия, рутения и йода). В РЗВ объекта «Укрытие» наличие  $^{129}\text{I}$  может быть обусловлено двумя источниками: выщелачивание из ТСМ; смыв с загрязненных поверхностей на верхних отметках объекта «Укрытие».

В пробе воды, отобранной 13.05.2010 г. наблюдались следовые количества короткоживущего  $^{131}\text{I}$  ( $T_{1/2} = 8,04 \text{ сут}$ ) порядка  $0,7 \text{ Бк/дм}^3$ . В работе [2] отмечается, что контроль активности  $^{131}\text{I}$ ,  $^{132}\text{I}$ ,  $^{133}\text{I}$ ,

$^{134}\text{I}$ ,  $^{135}\text{I}$  в циркулирующем по байпасной линии теплоносителя первого контура реактора ВВЭР-1000 производится в диапазоне величин ( $3,7 \cdot 10^3 \div 3,7 \cdot 10^8$ ) Бк/кг. Предельные значения указанного диапазона обусловлены снизу уровнем поверхностного загрязнения делящимися нуклидами, а сверху допустимыми значениями удельной активности радионуклидов йода в соответствии с регламентом эксплуатации реакторов типа ВВЭР-1000.

Таблица 2. Объемная активность радионуклидов в воде, поступающей из скважины Ю-9-Б, Бк/дм<sup>3</sup>

Радионуклид	06.04.2009	08.04.2010	13.05.2010	01.06.2010	04.09.2013	29.10.2013
$^{90}\text{Sr}$	$6,6 \cdot 10^6$	$2,4 \cdot 10^7$	$2,5 \cdot 10^7$	$1,9 \cdot 10^7$	$8,3 \cdot 10^6$	$8,7 \cdot 10^6$
$^{137}\text{Cs}$	$2,7 \cdot 10^7$	$3,6 \cdot 10^7$	$4,7 \cdot 10^7$	$3,4 \cdot 10^7$	$4,3 \cdot 10^7$	$2,5 \cdot 10^7$
$^{154}\text{Eu}$	$2,3 \cdot 10^3$	$6,4 \cdot 10^3$	н.о.*	$5,5 \cdot 10^3$	$1,7 \cdot 10^3$	$1,1 \cdot 10^3$
$^{155}\text{Eu}$	< МДА**	$2,1 \cdot 10^3$	н.о.	$1,2 \cdot 10^3$	< МДА	$3,1 \cdot 10^3$
$^{238}\text{Pu}$	$1,2 \cdot 10^3$	$2,2 \cdot 10^3$	$1,2 \cdot 10^3$	$8,2 \cdot 10^2$	$3,4 \cdot 10^2$	$2,2 \cdot 10^2$
$^{239+240}\text{Pu}$	$2,3 \cdot 10^3$	$4,6 \cdot 10^3$	$2,6 \cdot 10^3$	$1,8 \cdot 10^3$	$6,5 \cdot 10^2$	$4,4 \cdot 10^2$
$^{241}\text{Am}$	$1,6 \cdot 10^4$	$5,6 \cdot 10^4$	$3,8 \cdot 10^4$	$2,6 \cdot 10^4$	$7,9 \cdot 10^3$	$6,1 \cdot 10^3$
$^{244}\text{Cm}$	$5,8 \cdot 10^2$	$1,9 \cdot 10^3$	$1,4 \cdot 10^3$	$7,7 \cdot 10^2$	$2,9 \cdot 10^2$	$2,1 \cdot 10^2$
$^{242}\text{Cm}$	$3,7 \cdot 10^1$	$1,3 \cdot 10^2$	$7,4 \cdot 10^1$	$4,2 \cdot 10^1$	$1,5 \cdot 10^1$	$1,1 \cdot 10^1$
Уран мг/дм <sup>3</sup>	27	173	180	144	12	9,6
$^{129}\text{I}$	н.о.	$7,2 \pm 2,6$	$5,6 \pm 0,9$	$8,4 \pm 2,8$	$6,3 \pm 1,6$	$5,8 \pm 1,2$
$^{131}\text{I}$	н.о.	< МДА	$0,65 \pm 0,38$	< МДА	< МДА	< МДА

\* Не определяли.

\*\* Менее минимально детектируемой активности.

Топливосодержащие материалы объекта «Укрытие» содержат делящиеся изотопы  $^{235}\text{U}$  и  $^{239}\text{Pu}$ , которые делятся под действием нейтронов спонтанного деления  $^{244}\text{Cm}$  и других четно-четных ядер урана и плутония и нейтронов, образующихся по реакции ( $\alpha$ , n). Плотность потока нейтронов, регистрируемая СК «Сигнал», находится в пределах  $10 - 30$  нейтрон  $\cdot$  см<sup>-2</sup>  $\cdot$  с<sup>-1</sup> [9]. Скорость этого деления значительно ниже опасных уровней подкритичности ТСМ. Возникновение самоподдерживающейся цепной реакции (СЦР) маловероятно из-за того, что в места локализации ТСМ с водой постоянно поступает раствор нитрата гадолиния, который является поглотителем нейтронов.

Как видно из табл. 2, в пробе воды, отобранной 13.05.2010 г., наибольшее содержание  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  и урана. Вероятно, в этот период происходило интенсивное поступление воды непосредственно через большие скопления ТСМ с высоким содержанием урана, что и обусловило наличие в воде незначительного количества  $^{131}\text{I}$ .

При выполнении работ по определению содержания изотопов йода в воде объекта «Укрытие» авторы учитывали то, что периоды полураспада изотопов йода в основном небольшие - от 6,6 ч ( $^{135}\text{I}$ ) до 8,04 сут ( $^{131}\text{I}$ ). Поэтому организационно время от момента отбора проб воды на объекте «Укрытие» до радиохимического выделения в лаборатории минимизировалось и не превышало одного дня. Время радиохимического выделения фракции йода до начала  $\gamma$ -спектрометрических измерений составляло от 1,5 до 2 ч, что обеспечивалось разработанной экспресс-методикой. Активность короткоживущих изотопов йода в отобранной для анализа воде объекта «Укрытие» определяется рядом факторов: 1) интенсивностью наработки при делении урана и плутония, 2) скоростью диффузии из глубины ТСМ на поверхность контакта с водой, 3) степенью растворимости и выщелачивания изотопов йода «блочной» водой и 4) временем перетока воды от скоплений ТСМ до места отбора проб воды. Для оценки интенсивности деления урана в скоплениях ТСМ по наработке короткоживущих изотопов йода необходимо минимизировать влияние последних трех факторов, т.е. отобрать пробы воды непосредственно из массива ТСМ. В исследованных пробах РЗВ из скважин и помещений на нижних отметках объекта «Укрытие» короткоживущих изотопов  $^{132}\text{I}$ ,  $^{133}\text{I}$ ,  $^{134}\text{I}$ ,  $^{135}\text{I}$  обнаружено не было.

Анализ отношений активности  $^{90}\text{Sr}/^{129}\text{I}$  и  $^{137}\text{Cs}/^{129}\text{I}$  показывает (табл. 3), что для проб РЗВ из скважины Ю-9-Б относительное содержание  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{129}\text{I}$  в период наблюдений 2010 – 2013 гг. изменялось незначительно. Расчетные значения отношений активности для отработавшего топлива реактора РБМК равны  $^{90}\text{Sr}/^{129}\text{I} - 1,2 \cdot 10^6$  и  $^{137}\text{Cs}/^{129}\text{I} - 1,8 \cdot 10^6$  [10]. Экспериментально определенные значения отношений  $^{90}\text{Sr}/^{129}\text{I} - (2,6 \pm 1,3) \cdot 10^6$  и  $^{137}\text{Cs}/^{129}\text{I} - (5,7 \pm 1,8) \cdot 10^6$  по порядку величины совпадают с расчетными значениями, хотя для  $^{90}\text{Sr}$  они в два раза выше, а для  $^{137}\text{Cs}$  в три раза выше. Это свидетельствует об относительном дефиците  $^{129}\text{I}$ . Вероятно, это связано с выбросом радионуклидов йода в момент аварии. Выброс  $^{131}\text{I}$  и  $^{137}\text{Cs}$  на активной стадии аварии оценивается 20 и 13 % (погрешность  $\pm 50$  %) от накопленной активности. Более поздние оценки  $^{131}\text{I}$  40 – 60 % и  $^{137}\text{Cs}$  30 – 50 %. Можно предположить, что выброс  $^{129}\text{I}$  такой же, как и  $^{131}\text{I}$ .

Таблица 3. Отношение активностей радионуклидов в РЗВ объекта «Укрытие»

Радионуклид	08.04.2010	13.05.2010	01.06.2010	04.09.2013	29.10.2013	Среднее
$^{90}\text{Sr}/^{129}\text{I}$	$3,3 \cdot 10^6$	$4,5 \cdot 10^6$	$2,3 \cdot 10^6$	$1,3 \cdot 10^6$	$1,5 \cdot 10^6$	$(2,58 \pm 1,33) \cdot 10^6$
$^{137}\text{Cs}/^{129}\text{I}$	$5,0 \cdot 10^6$	$8,4 \cdot 10^6$	$4,1 \cdot 10^6$	$6,8 \cdot 10^6$	$4,3 \cdot 10^6$	$(5,72 \pm 1,83) \cdot 10^6$

Для оценки ядерной безопасности скоплений ТСМ необходимо знать изотопный состав урана, в частности массовую долю делящегося  $^{235}\text{U}$ . Как отмечалось выше, для получения максимально возможной информации о радиационных характеристиках воды, поступающей из скважины Ю-9-Б, определяли концентрацию урана и объемные активности радионуклидов. Изотопный состав и объемную активность изотопов  $^{234}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{236}\text{U}$  и  $^{238}\text{U}$  в тех же самых пробах воды определяли  $\alpha$ -спектрометрическими измерениями источников урана, приготовленных после радиохимического выделения и очистки фракции урана. В табл. 4 приведены массовые доли (%) изотопов урана, рассчитанные по результатам  $\alpha$ -спектрометрических измерений. Массовая доля делящегося изотопа  $^{235}\text{U}$  составляет порядка  $1,01 \pm 0,11$  %, в исследованных пробах максимальное содержание  $1,13$  %. Доля  $^{236}\text{U}$ , являющегося дополнительным нейтронным поглотителем и уменьшающим реактивность уранового топлива, составляет  $0,182 \pm 0,011$  %.

Таблица 4. Изотопный состав урана в воде, поступающей из скважины Ю-9-Б, % мас.

Дата отбора	$^{234}\text{U}$	$^{235}\text{U}$	$^{236}\text{U}$	$^{238}\text{U}$
06.04.2009	0,0151	1,13	0,167	98,65
05.04.2010	0,0165	0,92	0,178	98,88
08.04.2010	0,0153	1,09	0,189	98,71
04.09.2013	0,0162	0,87	0,186	98,94
29.10.2013	0,0160	1,02	0,192	98,78
Среднее	$0,0158 \pm 0,0006$	$1,01 \pm 0,11$	$0,182 \pm 0,011$	$98,79 \pm 0,12$

Объемная активность  $^{129}\text{I}$  в пробах РЗВ, отобранных из скважины 3-9-Ф и водного скопления, локализованного в южной части помещения 012/16 на отметке +2,2 м в 2013 г., и наибольшего водно-го скопления в помещении 001/3 на отметке – 2,6 м в 2014 г., приведена в табл. 5.

Таблица 5. Объемная активность радионуклидов в водных скоплениях объекта «Укрытие», Бк/дм<sup>3</sup>

Точка отбора проб	Помещение 001/3	Помещение 012/16	Скважина 3-9-Ф
$^{90}\text{Sr}$	$2,7 \cdot 10^6$	$2,5 \cdot 10^6$	$3,7 \cdot 10^6$
$^{137}\text{Cs}$	$8,1 \cdot 10^6$	$3,1 \cdot 10^7$	$2,1 \cdot 10^7$
$^{129}\text{I}$	$3,4 \pm 1,1$	$3,6 \pm 1,2$	$2,6 \pm 1,5$

Объемная активность  $^{129}\text{I}$  в РЗВ из скважины 3-9-Ф и помещений 001/3 и 012/16 несколько меньше, чем в воде из скважины Ю-9-Б (средневзвешенное значение  $5,9 \pm 0,6$  Бк/дм<sup>3</sup>). Среднее значение объемной активности  $^{129}\text{I}$  в исследованных пробах РЗВ объекта «Укрытие» равно  $5,3 \pm \pm 2,1$  Бк/дм<sup>3</sup>. Короткоживущих изотопов йода в исследованных пробах воды из скважины 3-9-Ф и помещений 001/3 и 012/16 также обнаружено не было. Концентрация  $^{129}\text{I}$  в воде объекта «Укрытие» составляет  $(0,4 - 1,3) \cdot 10^{-6}$  г/дм<sup>3</sup>.

Таблица 6. Концентрация (мкг/г) и удельная активность (Бк/г)  $^{129}\text{I}$  в различных материалах объекта «Укрытие» [11]

Номер пробы	Материал	Масса, мкг/г	Активность, Бк/г
ТС-17	Отработавшее ядерное топливо $\text{UO}_2$ с выгоранием 8,7 МВт/(сут кг) U	$34 \pm 2$	$222 \pm 13$
644	Отработавшее ядерное топливо $\text{UO}_2$ с выгоранием 4,9 МВт/(сут кг) U	$16 \pm 1$	$105 \pm 7$
630 (1)	Фрагмент части графитового блока	$0,5 \pm 0,2$	$3,3 \pm 1,3$
630 (3)	Фрагмент части графитового блока	$5,0 \pm 2,5$	$33 \pm 16$
629 (3)	Фрагмент части графитового блока	$2,0 \pm 1,0$	$13 \pm 6$
641	Фрагмент керамики бурого цвета	-	< МДА*
643	Бетон со стеклообразной массой	-	< МДА
319 (2)	ЛТСМ «слоновая нога»	-	< МДА

\* Меньше минимально детектируемой активности.

В работе [11] определено содержание  $^{129}\text{I}$  в различных материалах (отработавшее ядерное топливо, графит, ЛТСМ и бетон с ЛТСМ), отобранных в помещениях разрушенного 4-го блока ЧАЭС. Содержание  $^{129}\text{I}$  в исследованных образцах представлено в табл. 6. Из данных таблицы следует, что содержание  $^{129}\text{I}$  в пробах ЛТСМ (№ 641, 643 и 319) меньше минимально детектируемой активности. Авторы работы [11] объясняют это как малым количеством  $^{129}\text{I}$  в данных образцах, так и недостаточно высокой температурой нагревания ( $1100\text{ }^\circ\text{C}$ ) при выделении йода из этих образцов.

Принимая во внимание выше изложенное, можно предположить, что основными источниками поступления  $^{129}\text{I}$  в радиоактивно загрязненную воду объекта «Укрытие» являются: отработавшее ядерное топливо; фрагменты графитовой кладки; поверхностное загрязнение помещений за счет конденсации и сорбции легко летучих соединений йода на активной стадии аварии. Растворение и выщелачивание ЛТСМ не вносит значительного вклада в содержание в воде  $^{129}\text{I}$ . Можно предположить, что в случае поступления воды из скрытых скоплений ТСМ с относительно высоким содержанием  $^{129}\text{I}$  в этих скоплениях присутствуют фрагменты отработавшего ядерного топлива.

### Выводы

Разработана и апробирована методика определения объемной активности радиоактивных изотопов йода в РЗВ объекта «Укрытие». Радиохимическое выделение  $^{129,131}\text{I}$  производили экстракцией  $\text{CCl}_4$  из подкисленного раствора. Активность  $^{129,131}\text{I}$  с удовлетворительной погрешностью определяется  $\gamma$ -спектрометрическими измерениями.

Впервые определено содержание  $^{129}\text{I}$  в радиоактивно загрязненной воде объекта «Укрытие». Объемная активность  $^{129}\text{I}$  в исследованных пробах воды из скважины Ю-9-Б и помещений на нижних отметках объекта «Укрытие» составляет  $5,3 \pm 2,1$  Бк/дм<sup>3</sup>.

В исследованных пробах РЗВ из скважин и помещений на нижних отметках объекта «Укрытие» короткоживущих изотопов  $^{132}\text{I}$ ,  $^{133}\text{I}$ ,  $^{134}\text{I}$ ,  $^{135}\text{I}$  обнаружено не было.

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Кулюхин С.А., Каменская А.Н., Коновалова Н.А. Химия радиоактивного йода в водных средах: фундаментальные и прикладные аспекты // Радиохимия. – 2011. – Т. 53, № 2. – С. 107 – 123.
2. Берлизов А.Н., Малюк И.А., Рудык О.Ф. и др. Непрерывный контроль состояния барьеров безопасности водородных реакторов методом гамма-спектрометрии высокого разрешения // Ядерная физика та енергетика. – 2009. – Т. 10, № 4. – С. 387 – 394.
3. Высотский Е.Д., Ключников А.А., Лагуненко А.С. и др. Ядерно-опасные скопления топливосодержащих материалов в разрушенном четвертом блоке Чернобыльской АЭС // Радиохимия. – 2011. – Т. 53, № 2. – С. 178–183.
4. Богатов С. А., Корнеев А. А., Криницын А. П. и др. Исследования водотоков внутри объекта «Укрытие» // Радиохимия. – 2000. – Т. 42, № 3. – С. 276 – 280.
5. 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.
6. Одинцов А. А., Хан В. Е., Краснов В. А., Щербин В. Н. Жидкие радиоактивные отходы на нижних отметках объекта «Укрытие» // Проблемы безпеки атомних електростанцій і Чорнобиля. – 2011. – Вип. 16. – С. 110 – 123.
7. Ровинский Ф.Я., Иохнельсон С.Б., Юшкан Е.И. Методы анализа загрязнения окружающей среды. - М.: Атомиздат, 1978. – 263 с.
8. Одинцов А. А., Хан В. Е., Краснов В. А. и др. Радиоактивно загрязненная вода в помещениях объекта «Укрытие» // Проблемы безпеки атомних електростанцій і Чорнобиля. – 2014. – Вип. 23. – С. 89 - 101.
9. Давыдьков А.И., Краснов В.А. Щербин В.Н. Назначение пороговых установок в каналах контроля подкритичности топливосодержащих материалов // Проблемы безпеки атомних електростанцій і Чорнобиля. – 2014. – Вип. 23. – С. 82 - 87.
10. Матвеев Л.В., Рудик А.П. Почти все о ядерном реакторе. – М.: Энергоатомиздат, 1990. – 240 с.
11. Определение содержания изотопа йод-129 в материалах 4-го блока ЧАЭС: (Отчет о НИР) / НПО «Радиовый институт им. В. Г. Хлопина». – Инв. № 1704-И. – Л., 1991. – 13 с.

**О. О. Одинцов, В. Е. Хан, О. К. Калиновский**

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

### ВМІСТ $^{129}\text{I}$ В РАДІОАКТИВНО ЗАБРУДНЕНІЙ ВОДІ ОБ'ЄКТА «УКРИТТЯ»

Визначено вміст  $^{129}\text{I}$  в радіоактивно забрудненій воді (РЗВ), відібраній із приміщень об'єкта «Укриття». Активність ізотопів йоду визначали  $\gamma$ -спектрометричними вимірюваннями фракції йоду, виділеної з РЗВ на носії стабільного йоду. Концентрацію та очищення ізотопів йоду від присутніх в РЗВ  $\gamma$ -випромінюючих радіо-

нуклідів  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{154,155}\text{Eu}$  і  $^{241}\text{Am}$  проводили за екстракційною методикою. Об'ємна активність  $^{129}\text{I}$  в досліджених пробах РЗВ  $5,3 \pm 2,1 \text{ Бк/дм}^3$ . Відношення активностей у РЗВ  $^{90}\text{Sr}/^{129}\text{I} - (2,6 \pm 1,3) \cdot 10^6$  і  $^{137}\text{Cs}/^{129}\text{I} - (5,7 \pm 1,8) \cdot 10^6$ . У пробах води, що безпосередньо протікає через приміщення з паливовмісними матеріалами з високою концентрацією урану, відібраних із свердловини Ю-9-Б, короткоживучих ізотопів йоду  $^{131,132,133,135}\text{I}$  не виявлено.

*Ключові слова:*  $^{129}\text{I}$ , екстракція, рідкі радіоактивні відходи, об'єкт «Укриття».

**O. O. Odintsov, V. E. Khan, O. K. Kalynovsky**

*Institute for Safety Problems of Nuclear Power Plants NAS of Ukraine, Kirova str., 36a, Chornobyl, 07270, Ukraine*

### CONTENTS OF $^{129}\text{I}$ IN RADIOACTIVE WATER OF OBJECT «UKRYTTYA»

A content of  $^{129}\text{I}$  is certain in the radioactive water (RW) selected from the apartments of object «Ukryttya». Activity of isotopes of iodine was determined by  $\gamma$ -spectrometry measuring of the fraction of iodine, selected from RW on the transmitter of stable iodine. Concentration and cleaning of isotopes of iodine from present in RW of  $\gamma$ -emitting radionuclides of  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{154,155}\text{Eu}$  and  $^{241}\text{Am}$  made by an extraction method. A volume activity of  $^{129}\text{I}$  in the investigational tests of RW is  $5.3 \pm 2.1 \text{ Bq/l}$ . Ratio of activity in RW  $^{90}\text{Sr}/^{129}\text{I} - (2.6 \pm 1.3) \cdot 10^6$  and  $^{137}\text{Cs}/^{129}\text{I} - (5.7 \pm 1.8) \cdot 10^6$ . In the tests of water directly flowing through the apartments with fuel-containing materials with the high concentration of uranium, selected from the mining hole of U-9-B, short live isotopes of iodine  $^{131,132,133,135}\text{I}$  not found.

*Keywords:*  $^{129}\text{I}$ , extraction, liquid radioactive waster, object «Ukryttya».

### REFERENCES

1. *Kulychin C.A., Kamenskay A.N., Konovalova N.A.* Chemistry of radioactive iodine in waters: fundamental and applied aspects // Radiokhimiya. – 2011. – Vol. 53, No 2. – P. 107 – 123. (Rus).
2. *Berlizov A.N., Maliuk I.A., Rudyk O.F et al.* Continuous monitoring of the state of safety barriers in water-water nuclear reactors using high-resolution gamma-spectrometry // Ydernay fizika i energetika (Nuclear physics and energy). – 2009. - Vol. 10, No. 4. – P. 387 – 394. (Rus.)
3. *Vysotckiy E.D., Kliuchnykov A.A., Lagunenkov A.C. et al.* The nuclear-dangerous accumulations of fuel-carrying materials are in the blasted fourth block of Chernobyl NPP // Radiokhimiya. – 2011. – Vol. 53, No. 2. – P. 178 – 183. (Rus).
4. *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)
5. *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, No. 4. – P. 337 - 343. (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. *Rovinckii F.Y., Yochnelson S.B., Ushkan E.I.* Methods of analysis of contamination of environment. - M.: Atomizdat, 1978. – 263 p.
8. *Odintsov O. O., Khan V. E., Krasnov V. O. et al.* Radioactive water is in the apartments of object «Ukryttya» // Problemy bezpeky atomnyh elektrostantsiy I Chornobylya (Problems of nuclear power plants and of Chornobyl). – 2014. - Iss. 23. - P. 89 – 101. (Rus)
9. *Davydkov A.I., Krasnov V.O., Shcherbin V.M.* Principles of threshold setting in fuel-containing materials subcriticality control channels // Problemy bezpeky atomnyh elektrostantsiy I Chornobylya (Problems of nuclear power plants and of Chornobyl). – 2014. - Iss. 23. - P. 82 – 87. (Rus)
10. *Matveev L.V., Ryduk A.P.* Almost all about a nuclear reactor. – Moskva: Energoatomizdat, 1990. – 240 p. (Rus)
11. *Determination of contents of isotope iodine-129 in materials of 4-th unit of ChNPP: (Report about SRW) / SPU «Radium institute name of V. G. Xlopina». – No. 1704. – Leningrad, 1991. – 13 p. (Rus).*

Надійшла 25.09.2014

Received 25.09.2014