

А. А. Одинцов, В. Е. Хан

*Институт проблем безопасности АЭС НАН Украины, ул. Кирова, 36а, Чернобыль, 07270, Украина***РАДИОАКТИВНО ЗАГРЯЗНЕННАЯ ВОДА В ОБЪЕКТЕ «УКРЫТИЕ»
ПОСЛЕ НАДВИЖКИ «АРКИ» НОВОГО БЕЗОПАСНОГО КОНФАЙНМЕНТА
В ПРОЕКТНОЕ ПОЛОЖЕНИЕ**

Представлены результаты мониторинга неорганизованных скоплений радиоактивно загрязненной воды (РЗВ) на нижних отметках объекта «Укрытие» после установки «Арки» нового безопасного конфайнмента в проектное положение. Определены объемы РЗВ и динамика их сезонных изменений. Экспериментально определено содержание макрокомпонентов, урана, продуктов деления ^{90}Sr , ^{137}Cs , $^{154,155}\text{Eu}$ и трансурановых элементов (ТУЭ) ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am , ^{244}Cm в РЗВ объекта «Укрытие» в 2017 г. Концентрация урана в РЗВ объекта «Укрытие» составляла 0,5 – 80 г/м³. Объемная активность ^{90}Sr , ^{137}Cs и ^{154}Eu в РЗВ находится в пределах $n \cdot 10^7$ - $n \cdot 10^{11}$ Бк/м³, а ТУЭ в пределах $n \cdot 10^4$ - $n \cdot 10^7$ Бк/м³. Отношения 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 отношений радионуклидов в топливосодержащих материалах объекта «Укрытие».

Ключевые слова: уран, плутоний, америций, радиоактивно загрязненная вода, объект «Укрытие».

Введение

27 ноября 2016 г. «Арка» нового безопасного конфайнмента (НБК) была установлена в проектное положение над объектом «Укрытие». В настоящее время продолжают работы по монтажу и испытаниям систем и оборудования НБК.

Установка НБК в проектное положение привела к изменениям поступления воды в объект «Укрытие» (за счет атмосферных осадков), вентиляции его помещений и температурно-влажностного режима в нем. Это может повлиять на поведение радиоактивных аэрозолей в подкровельном пространстве объекта «Укрытие» и состояние топливосодержащих материалов (ТСМ).

Основными источниками формирования водных потоков и скоплений радиоактивно загрязненной воды (РЗВ) внутри объекта «Укрытие» после установки «Арки» НБК в проектное положение являются конденсат, образующийся в помещениях на нижних отметках объекта «Укрытие» в летние месяцы, и пылеподавляющие растворы, поступавшие в подкровельное пространство во время проведения сеансов пылеподавления. Водные потоки попадают в помещения, где локализованы ТСМ. Взаимодействие воды с конструкционными материалами и ТСМ приводит к образованию РЗВ, содержащей уран, продукты деления и трансурановые элементы (ТУЭ) [1 - 4]. Некоторые механизмы взаимодействия воды с различными модификациями ТСМ рассмотрены в работах [1, 2]. В настоящее время скопления РЗВ и донные отложения объекта «Укрытие» являются ядерно-безопасными. Радиационные характеристики и объемные активности радионуклидов ^{90}Sr , ^{137}Cs , $^{238+239+240}\text{Pu}$ и ^{241}Am в РЗВ объекта «Укрытие» в период 1996 – 2015 гг. представлены в работе [3].

В результате протечек внутри объекта «Укрытие» с верхних отметок на нижние в помещениях, расположенных ниже отметки +12,5 м, наблюдаются постоянные скопления РЗВ. Суммарный объем РЗВ в контролируемых помещениях в зависимости от периода года до надвигки «Арки» НБК в проектное положение составлял 330 – 350 м³ [3]. До надвигки «Арки» НБК в период таянья снега и интенсивных осадков небольшие временные скопления воды образовывались и на более высоких отметках объекта «Укрытие». С мая по сентябрь, когда температура внутри объекта «Укрытие» ниже, чем снаружи, на нижних отметках происходит образование конденсата.

В работе [3] отмечается, что наряду с сезонными колебаниями концентраций урана и объемной активности радионуклидов в наибольших водных скоплениях наблюдался устойчивый рост содержания урана и ТУЭ в воде помещения 001/3, где локализовано порядка 270 м³ РЗВ. Регулярный мониторинг радиационных характеристик РЗВ объекта «Укрытие» является одной из задач обеспечения экологической безопасности объекта «Укрытие», так как нельзя исключать возможность попадания РЗВ в грунтовые воды.

Цель настоящей работы состояла в исследовании динамики изменения объемов воды и основных радиационных характеристик РЗВ в помещениях объекта «Укрытие» после установки «Арки» НБК в проектное положение.

© А. А. Одинцов, В. Е. Хан, 2018

Локализация и объемы водных скоплений объекта «Укрытие»

В настоящее время направление перетока воды в объекте «Укрытие» осуществляется сверху вниз из подкровельного пространства в помещения на отметках 0,0 и +2,2 м и с юга на север от машинного зала к блоку вспомогательных систем реакторного отделения (ВСРО). Суммарный объем РЗВ в контролируемых помещениях в 2015 - 2016 гг. составлял 310 – 350 м³. Большая часть водных протечек с верхних отметок объекта «Укрытие» собирается в помещении 001/3 (отметка -2,60 м) ВСРО. Далее водный поток просачивается через разделительную стену по оси 41 и уходит за пределы объекта «Укрытие» на ВСРО 3-го энергоблока. Количество воды в помещении 001/3 в течение года остается практически постоянным и составляет порядка 270 м³.

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 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. Расположение неорганизованных скоплений РЗВ в помещениях объекта «Укрытие» на планах помещений на отметках 0,0, и +3,0 м после установки НБК в проектное положение в июне – июле 2017 г. представлено на рис. 1.

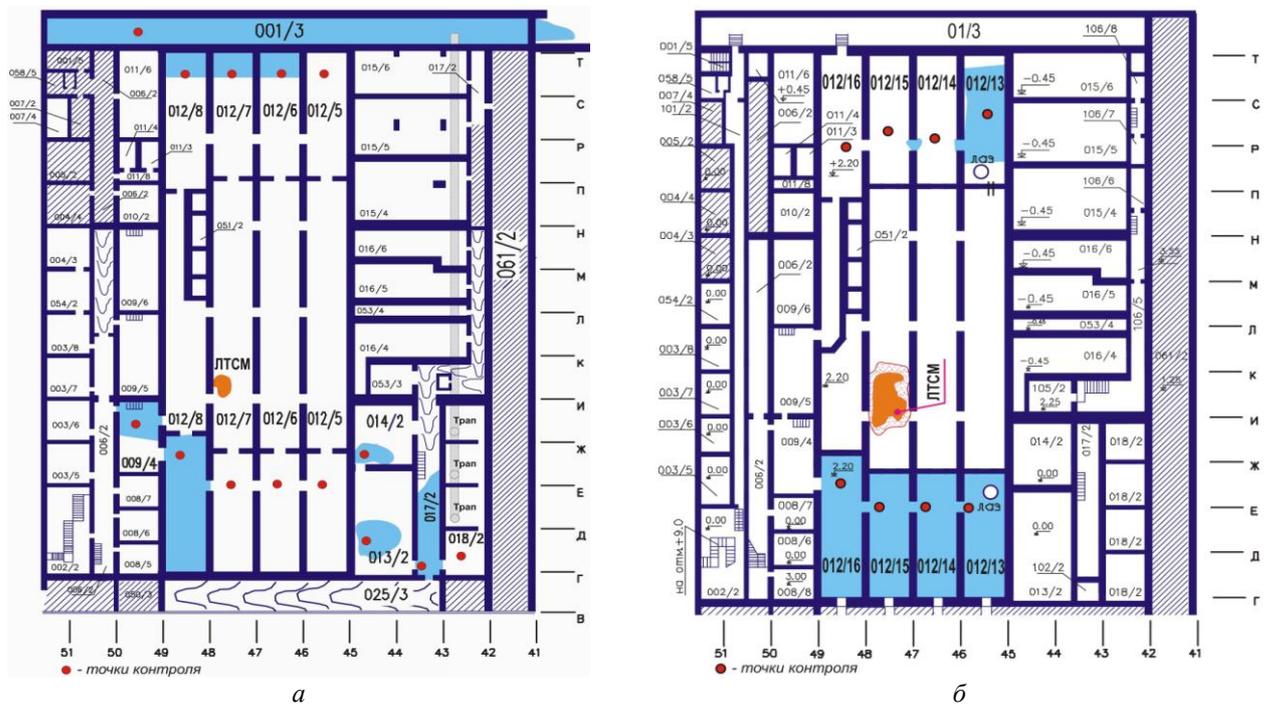


Рис. 1. План расположения скоплений РЗВ и точек замера глубины водных скоплений в помещениях объекта «Укрытие»: а - на отметке +0,00 м; б – на отметке +3,00 м.

Координаты и отметки расположения точек обследований приведены в табл. 1. Там же представлены экспериментальные данные об объемах воды в обследованных помещениях. Как видно на рис. 1, в летний период в результате перетока и испарения воды только в южной части помещений 012/13 – 16 (ряды Г – Ж) на отметке +2,2 м находилось водное скопление, заполняющее всю площадь помещений. На рис. 2 показано поступление воды в помещение 001/3 из контролируемых источников: скважина 2.1-116 со стороны каскадной стены (точка отбора проб (т. о.) 8) и труба из парораспределительного коридора (ПРК) (т. о. 20). Поступление воды в 2017 г. было минимальным за все время наблюдений: стока из скважины 2.1-116 не было, а из трубы из ПРК поступило всего 0,8 м³ РЗВ.

Таблица 1. Объемы РЗВ в помещениях на нижних отметках объекта «Укрытие» в октябре 2017 г.

| Помещение | Отметка, м | Ось | Ряд | Глубина, см | Площадь, м ² | Объем воды, м ³ |
|-----------------------|------------|---------|--------------------|-------------|-------------------------|----------------------------|
| 012/5 | -0,65 | 45 - 46 | П - Т | 0,5 | 1 | 0,005 |
| 012/6, 7, 8 (прямо́к) | -0,95 | 46 - 47 | С - Т | 25 | 9 × 3 | 6,7 |
| 012/6 | -0,65 | 46 - 47 | П - Т | 1,0 | 20 | 0,2 |
| 012/7 | -0,65 | 47 - 48 | П - Т | 1,0 | 35 | 0,35 |
| 012/8 | -0,65 | 48 - 49 | П - Т | 1,0 | 33 | 0,33 |
| 012/5 | -0,65 | 45 - 46 | Г - Ж | 0 | 0 | 0 |
| 012/6 | -0,65 | 46 - 47 | Г - Ж | 1,5 | 18 | 0,27 |
| 012/7 | -0,65 | 47 - 48 | Г - Ж | 1,0 | 25 | 0,25 |
| 012/8 | -0,65 | 48 - 49 | Г - Ж | 4,0 | 90 | 3,6 |
| 012/13 | 2,20 | 45 - 46 | П - Т | 3,5 | 70 | 2,5 |
| 012/14 | 2,20 | 46 - 47 | П - Т | 1,0 | 12 | 0,12 |
| 012/15 | 2,20 | 47 - 48 | П - Т | 0 | 0 | 0 |
| 012/16 | 2,20 | 48 - 49 | П - Т | 0 | 0 | 0 |
| 012/13 | 2,20 | 45 - 46 | Г - Ж | 5,0 | 88 | 4,4 |
| 012/14 | 2,20 | 46 - 47 | Г - Ж | 6,0 | 88 | 5,3 |
| 012/15 | 2,20 | 47 - 48 | Г - Ж | 7,0 | 88 | 6,2 |
| 012/16 | 2,20 | 48 - 49 | Г - Ж | 9,0 | 96 | 8,6 |
| 009/4 | 0,00 | 49 - 50 | Е - И | 9,0 | 15 | 1,4 |
| 013/2 | 0,00 | 44 - 45 | Г - И | 1,5 | 5 | 0,075 |
| 014/2 | 0,00 | 44 - 45 | Е - Ж | 2,0 | 5 | 0,1 |
| 017/2 | 0,00 | 43 - 44 | Г - Е | 21 | 22 | 4,6 |
| 018/2 | 0,00 | 42 - 43 | Г - Д | 0 | 0 | 0 |
| 210/7 | 6,00 | 47 - 48 | Ж - И | 6,0 | 2,2 | 0,13 |
| 001/3 | -2,60 | 41 - 51 | У - У ₁ | 107 | 250 | 268 |

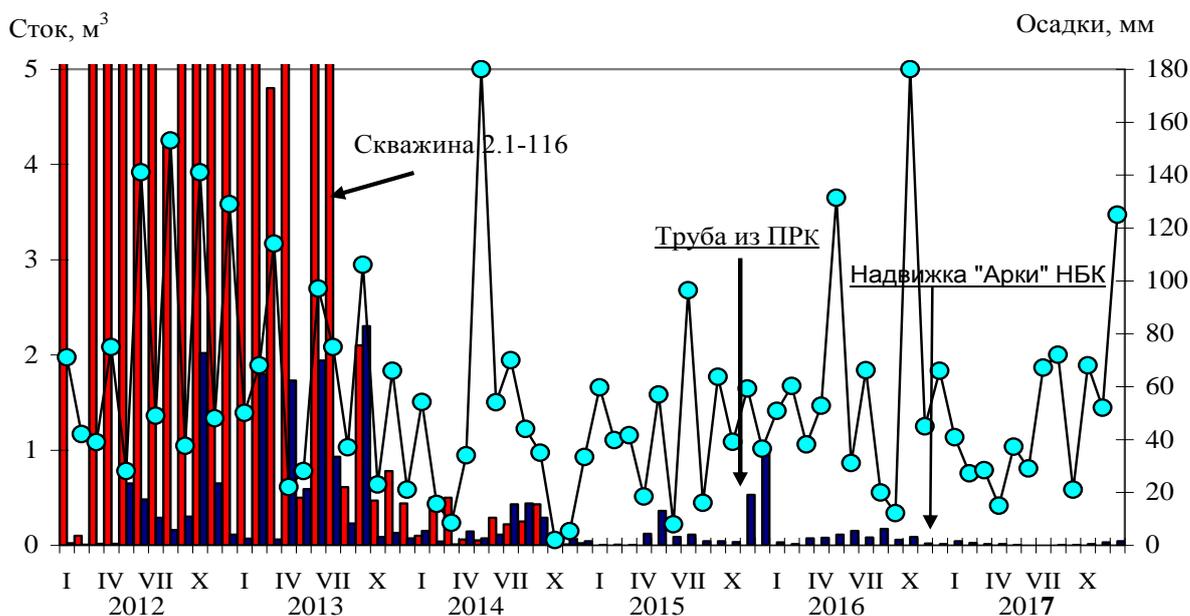


Рис. 2. Динамика поступления воды в помещение 001/3 из скважины 2.1-116 (т. о. 8) и трубы из ПРК (т. о. 20).

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 20 – 25 см и определяется высотой порога дверного проема в помещении 018/2. При повышении уровня избыток воды через дверные пороги перетекает в помещения 018/2 и 025/3. В качестве примера на рис. 3 приведены фотографии скоплений РЗВ в помещениях 017/2 на отметке -0,65 м и 001/3 на отметке -2,60 м. Глубина водного скопления в помещении 001/3 составляет 1,1 м.

В южной части помещения 012/13 - 16 (ряды Г – Ж, отметка +2,20) наблюдается постоянное скопление воды (рис. 4). Уровень воды в этом помещении до 10 см, цвет воды определяется на-

личи́ем протечек пылеподавляющего состава. В воде большое количество взвесей, донные отложения темно-серого цвета. Скопление формируется за счет протечек из помещения 208/9 ПРК, где в период освоения аварийного блока был пробит специальный люк, а также за счет конденсата. Утечка воды из этих помещений происходит через помещение 012/15 в его северную часть и далее через сквозное отверстие в полу (ряд Р, ось 48) переток на первый этаж в помещении 012/7 ББ.



Помещение 017/2



Помещение 001/3

Рис. 3. Неорганизованные водные скопления на нижних отметках объекта «Укрытие», октябрь 2017 г.



Рис. 4. Водное скопление в южной части помещения 012/16 (т. о. 6).

В качестве примера на рис. 5 показаны сезонные изменения объемов водных скоплений в помещениях 012/13 – 16 (ряды Г – Ж). В период весна – осень в помещениях происходит возрастание объемов воды от 15 до 40 м³. С ноября по март объемы уменьшаются. Аналогичные изменения объемов воды наблюдаются и в других контролируемых помещениях. Среднегодовые объемы РЗВ в помещениях 012/13 – 16 (ряды Г – Ж) в период 1998 - 2017 гг. включительно показаны на рис. 6. Как видно на рис. 6, в 2017 г. среднегодовой объем РЗВ в южной части помещений 012/13 – 16 был на уровне предыдущих лет.

Динамика изменения объемов РЗВ в обследованных помещениях объекта «Укрытие» в период с ноября 2016 г. по декабрь 2017 г. показана на рис. 7. Как следует из рисунка, в период с декабря 2016 г. по июль 2017 г. наблюдалось уменьшение объемов РЗВ, вероятно, за счет испарения и перетока на 3-й блок ЧАЭС. Объем РЗВ в обследованных помещениях объекта «Укрытие» уменьшился с

338 до 316 м³, т. е. на 22 м³. В ряде помещений, где до установки «Арки» НБК в проектное положение всегда присутствовали скопления РЗВ, в июле 2017 г. вода отсутствовала. В помещениях 012/6 – 8 (северная часть, ряды С – Т) вода оставалась только в приемках на отметке -0,95 м. Уровень воды в приемках также понизился с 31 до 23 см. Следует отметить, что в помещении 001/3 количество РЗВ оставалось практически постоянным порядка 270 м³. Уменьшение объемов РЗВ произошло за счет перетока и испарения. Площадь поверхности испарения воды в начальный момент (январь 2017 г.) составляла приблизительно 1100 м² (без учета помещения 001/3).

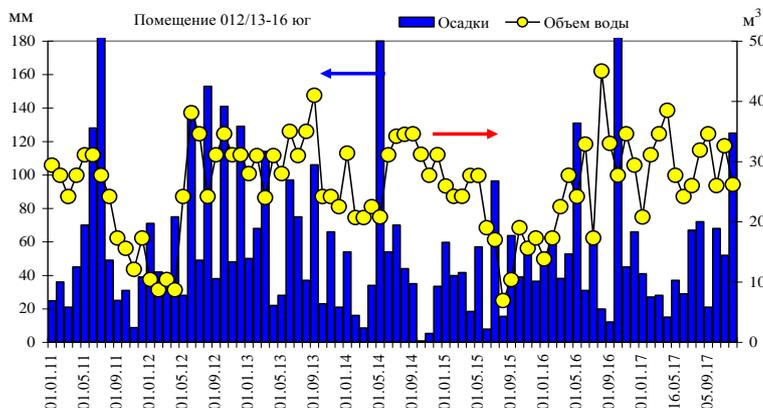


Рис. 5. Динамика объемов водных скоплений в южной части помещений 012/13 – 16 (ряды Г – Ж).

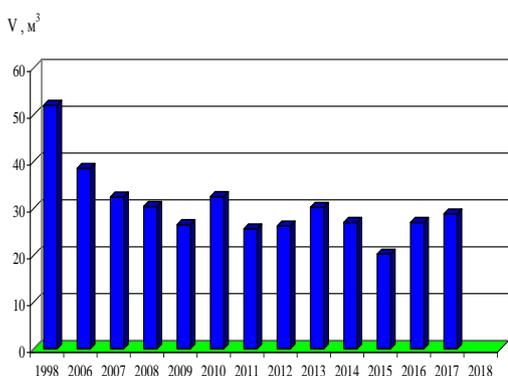


Рис. 6. Среднегодовые объемы воды в помещениях 012/13–16 (ряды Г – Ж).



Рис. 7. Динамика изменения объемов воды в помещениях объекта «Укрытие».

С начала августа по конец сентября 2017 г. объемы РЗВ заметно увеличились. Прирост объемов РЗВ составил порядка 12 м³. Как и до установки «Арки» НБК, над объектом «Укрытие» в помещениях на нижних отметках наблюдалась большая разница температур. Среднемесячные температуры в помещении 012/8 (юг) и 012/15 (север) в июне – августе 2017 г. отличались от температуры окружающего воздуха на 9,5 – 10,3 °С. За счет разницы температур внутри объекта «Укрытие» и за пределами «Арки» НБК в помещениях на нижних отметках объекта «Укрытие» происходила интенсивная конденсация воды на потолках и стенах помещений, а также на технологическом оборудовании (водяные и вентиляционные трубопроводы). На рис. 8 хорошо видно, что на потолке помещения 012/13 (северная часть) за счет поверхностного натяжения находится слой воды примерно 3 – 5 мм. Исходя из площади потолков 1384 м² и стен 950 м² обследованных помещений бассейна-барботера на отметках -0,65 и +2,2 м в осях 45 – 49 и рядах Г – Ж и П – Т, объем конденсата можно оценить как 14 м³, что по порядку величины совпадает с увеличением на 12 м³ объемов РЗВ. Следует отметить, что эти расчеты носят оценочный характер и не учитывают всех параметров процессов конденсации и испарения воды в помещениях объекта «Укрытие». Разница между уменьшением объемов РЗВ за счет испарения и перетока и увеличением за счет конденсации составляет порядка 10 м³. Можно предположить, что если условия испарения, конденсации и перетока воды останутся неизменными, то исходя из объема РЗВ в обследованных помещениях в январе 2017 г. порядка 50 м³ и разницы между испарением и конденсацией около 10 м³, через 4 – 5 лет в обследуемых помещениях объекта

«Укрытие» вода в зимне-весенний период будет отсутствовать. Однако как видно на рис. 7, в результате работ по проведению сеансов пылеподавления 12 – 13 октября в обследуемых помещениях на нижних отметках объекта «Укрытие» в начале ноября 2017 г. зафиксировано увеличение объемов РЗВ примерно на 4 м^3 . Увеличение объемов РЗВ $\sim 4 \text{ м}^3$ составляет примерно 15 % от всего поданного количества технологических растворов.



Рис. 8. Конденсат на потолке помещения 012/13(север, отметка +2,20 м).

Анализ приведенных выше данных показывает, что количество РЗВ в неорганизованных скоплениях на нижних отметках значительно сократится вплоть до полного высыхания. Более точный прогноз можно сделать после дополнительных исследований, когда будет полностью завершена герметизация ограждающего контура. На сегодняшний день остается открытым вопрос изменения объемов РЗВ в наибольшем водном скоплении, локализованном в помещении 001/3. За период с момента надвигки «Арки» НБК в проектное положение (ноябрь 2016 г. - декабрь 2017 г.) глубина воды в помещении 001/3 находилась на одном уровне - около 110 см, что соответствует объему воды приблизительно 270 м^3 . Герметичная кровля НБК полностью исключает попадание атмосферных осадков в подкровельное пространство «Арки» и объект «Укрытие».

Радиационные характеристики РЗВ

Содержание урана, плутония, америция и кюрия определяли из одной пробы воды по ионообменной методике [4]. 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. Погрешность определения концентрации урана и объемной активности радионуклидов не превышала 10 – 15 %. Концентрации макрокомпонентов определяли по общепринятым методикам.

Значения pH и концентрации некоторых анионов и катионов в РЗВ объекта «Укрытие» по состоянию на 2017 г. представлены в табл. 2. Величина pH изменяется от 8,8 до 9,6, что свидетельствует о щелочной среде в водных скоплениях объекта «Укрытие». Химический показатель кислорода (ХПК) находится в пределах $40 - 110 \text{ мгО}_2/\text{дм}^3$. Концентрация фосфатов (HPO_4^{2-}) изменяется от 0,4 до $3,5 \text{ мг}/\text{дм}^3$. Содержание карбонатов (CO_3^{2-}) и гидрокарбонатов (HCO_3^-) составляет $20 - 850$ и $320 - 1650 \text{ мг}/\text{дм}^3$ соответственно. Концентрация хлоридов (Cl^-) во всех водных скоплениях примерно одинаковая и составляет $20 - 40 \text{ мг}/\text{дм}^3$. В РЗВ объекта «Укрытие» содержится от 140 до $460 \text{ мг}/\text{дм}^3$ сульфат-ионов (SO_4^{2-}). 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. Концентрация нитратов (NO_3^-) составляет $15 - 410 \text{ мг}/\text{дм}^3$.

Максимальные концентрации нитратов до 600 мг/дм^3 наблюдались в РЗВ помещения 012/13 после сеансов пылеподавления. Фосфаты и нитраты в водные скопления поступают при проведении сеансов пылеподавления.

Таблица 2. Концентрация макрокомпонентов (мг/дм^3) в РЗВ объекта «Укрытие»

| Номер т. о. | pH | ХПК, $\text{мгO}_2/\text{дм}^3$ | HPO_4^{2-} | CO_3^{2-} | HCO_3^- | Cl ⁻ | SO_4^{2-} |
|-------------|-----------------|------------------------------------|----------------------------|--------------------|------------------|------------------|--------------------|
| 6 | 9,2 | 72 | 0,52 | 75 | 540 | 45 | 260 |
| 7 | 8,8 | 45 | 0,43 | 20 | 320 | 18 | 140 |
| 17 | 9,1 | 112 | 0,65 | 80 | 340 | 48 | 170 |
| 18 | 9,4 | 57 | 0,89 | 210 | 690 | 24 | 460 |
| 20 | 9,5 | 72 | 3,5 | 240 | 870 | 29 | 160 |
| 21 | 9,6 | 43 | 1,1 | 850 | 1650 | 14 | 190 |
| 30 | 9,1 | 75 | 0,78 | 70 | 370 | 16 | 140 |
| 31 | 9,2 | 86 | 1,4 | 120 | 720 | 39 | 290 |
| 32 | 9,1 | 98 | 0,42 | 140 | 380 | 35 | 320 |
| 35 | 9,6 | 76 | 1,7 | 280 | 340 | 42 | 350 |
| Номер т. о. | NO_3^- | SiO_2 | $\text{K}^+ + \text{Na}^+$ | Ca^{2+} | Mg^{2+} | Fe^{3+} | |
| 6 | 31 | 1,7 | 660 | 16 | 4,1 | 5,2 | |
| 7 | 15 | 2,5 | 290 | 38 | 5,5 | 4,1 | |
| 17 | 32 | 2,2 | 470 | 24 | 7,7 | 4,8 | |
| 18 | 27 | 2,1 | 1090 | 9,2 | 3,5 | 5,6 | |
| 20 | 65 | 2,4 | 1080 | 12 | 5,2 | 6,2 | |
| 21 | 410 | 0,45 | 2480 | 2,2 | 0,93 | 3,3 | |
| 30 | 43 | 2,3 | 450 | 21 | 3,5 | 4,9 | |
| 31 | 97 | 1,6 | 930 | 19 | 4,7 | 5,8 | |
| 32 | 45 | 2,8 | 610 | 55 | 9,8 | 4,7 | |
| 35 | 104 | 0,95 | 1550 | 16 | 3,9 | 3,9 | |

Концентрация катионов калия и натрия ($\text{K}^+ + \text{Na}^+$) в РЗВ объекта «Укрытие» изменяется от 290 до 2480 мг/дм^3 , что на один-два порядка величины больше, чем кальция и магния. Содержание железа в пробах воды из различных водных скоплений $3 - 6 \text{ мг/дм}^3$. Концентрация Ca^{2+} в воде помещения 012/13 $2,2 \text{ мг/дм}^3$, что почти в 10 раз меньше, чем в других водных скоплениях. Это можно объяснить тем, что в воде помещения 012/13 самая высокая концентрация CO_3^{2-} , в результате чего образуются труднорастворимые карбонаты кальция, магния и стронция.

В табл. 3 приведены усредненные данные по 12 пробам (ежемесячный отбор в каждой точке) за 2017 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 10 до 90 % и характеризуют сезонные изменения концентраций урана и объемных активностей радионуклидов в РЗВ различных водных скоплений. 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 ^{90}Sr 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.

Концентрация урана в РЗВ объекта «Укрытие» в 2017 г после надвижки «Арки» НБК находилась в пределах $0,6 - 60 \text{ г/м}^3$ при наибольшем значении 80 г/м^3 в июле 2017 г. в т. о. 32.

Объемная активность ^{90}Sr в РЗВ в зависимости от места отбора проб в 2017 г. изменялась от $1,3 \cdot 10^7$ до $1,1 \cdot 10^{10} \text{ Бк/м}^3$.

Изменения объемной активности ^{137}Cs в постоянных скоплениях и быстрых протечках РЗВ наименьшие относительно других радионуклидов. Объемная активность ^{137}Cs в РЗВ изменялась в 2017 г. от $1,2 \cdot 10^9$ (т. о. 18) до $1,0 \cdot 10^{11}$ (т. о. 35) Бк/м^3 . Наибольшие объемные активности ^{137}Cs в РЗВ объекта «Укрытие» наблюдались в южной части помещения 012/7 (т. о. 32) в 2000 г. - $3,2 \cdot 10^{11}$, в 2002 г. - $1,2 \cdot 10^{12}$ и $1,4 \cdot 10^{11} \text{ Бк/м}^3$ в июне 2012 г.

Объемная активность изотопов ^{154}Eu ($T_{1/2} - 8,8$ лет) и ^{155}Eu ($T_{1/2} - 4,9$ лет) в РЗВ находится в пределах $8,7 \cdot 10^3 - 8,1 \cdot 10^6 \text{ Бк/м}^3$.

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

| Номер т. о. | Уран | ^{90}Sr | ^{137}Cs | ^{154}Eu | ^{155}Eu |
|-------------|-----------------|-------------------------------|-------------------------------|----------------------------|----------------------------|
| 6 | 11 ± 2 | $(2,2 \pm 0,3) \cdot 10^9$ | $(2,4 \pm 0,3) \cdot 10^{10}$ | $(1,8 \pm 0,2) \cdot 10^6$ | $(2,7 \pm 0,6) \cdot 10^5$ |
| 7 | 13 ± 2 | $(5,6 \pm 0,7) \cdot 10^9$ | $(7,7 \pm 0,7) \cdot 10^9$ | $(7,4 \pm 1,3) \cdot 10^6$ | $(1,5 \pm 0,7) \cdot 10^6$ |
| 17 | $3,2 \pm 1,1$ | $(2,9 \pm 0,5) \cdot 10^8$ | $(1,3 \pm 0,3) \cdot 10^9$ | $(4,5 \pm 4,2) \cdot 10^5$ | $(7,1 \pm 6,2) \cdot 10^4$ |
| 18 | $0,59 \pm 0,18$ | $(2,9 \pm 0,4) \cdot 10^7$ | $(1,2 \pm 0,3) \cdot 10^9$ | $(6,1 \pm 1,8) \cdot 10^4$ | $(8,7 \pm 4,9) \cdot 10^3$ |
| 20 | 13 ± 3 | $(4,6 \pm 1,2) \cdot 10^9$ | $(5,4 \pm 1,8) \cdot 10^{10}$ | $(1,2 \pm 0,3) \cdot 10^6$ | $(1,5 \pm 0,4) \cdot 10^5$ |
| 21 | $2,1 \pm 0,3$ | $(1,3 \pm 0,3) \cdot 10^7$ | $(4,4 \pm 0,3) \cdot 10^9$ | $(1,1 \pm 0,3) \cdot 10^5$ | $(1,7 \pm 0,4) \cdot 10^4$ |
| 30 | $7,4 \pm 0,9$ | $(2,1 \pm 0,2) \cdot 10^9$ | $(7,4 \pm 0,3) \cdot 10^9$ | $(1,7 \pm 0,2) \cdot 10^6$ | $(2,7 \pm 0,5) \cdot 10^5$ |
| 31 | 32 ± 3 | $(3,3 \pm 0,4) \cdot 10^9$ | $(3,0 \pm 0,3) \cdot 10^{10}$ | $(4,2 \pm 0,7) \cdot 10^6$ | $(6,6 \pm 1,2) \cdot 10^5$ |
| 32 | 56 ± 15 | $(1,4 \pm 0,4) \cdot 10^{10}$ | $(3,7 \pm 0,8) \cdot 10^{10}$ | $(8,1 \pm 2,4) \cdot 10^6$ | $(1,2 \pm 0,4) \cdot 10^6$ |
| 35 | 12 ± 8 | $(1,1 \pm 0,7) \cdot 10^{10}$ | $(1,1 \pm 0,4) \cdot 10^{11}$ | $(3,7 \pm 3,4) \cdot 10^6$ | $(4,9 \pm 4,8) \cdot 10^5$ |

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

Суммарная α -активность ТУЭ ($^{238}\text{Pu} + ^{239+240}\text{Pu} + ^{241}\text{Am} + ^{244}\text{Cm} + ^{242}\text{Cm}$) изменяется от $1 \cdot 10^5$ до $1 \cdot 10^8$ Бк/м³. Следует отметить, что объемная активность ^{244}Cm в РЗВ объекта «Укрытие» практически равна объемной активности ^{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 - до 80 %.

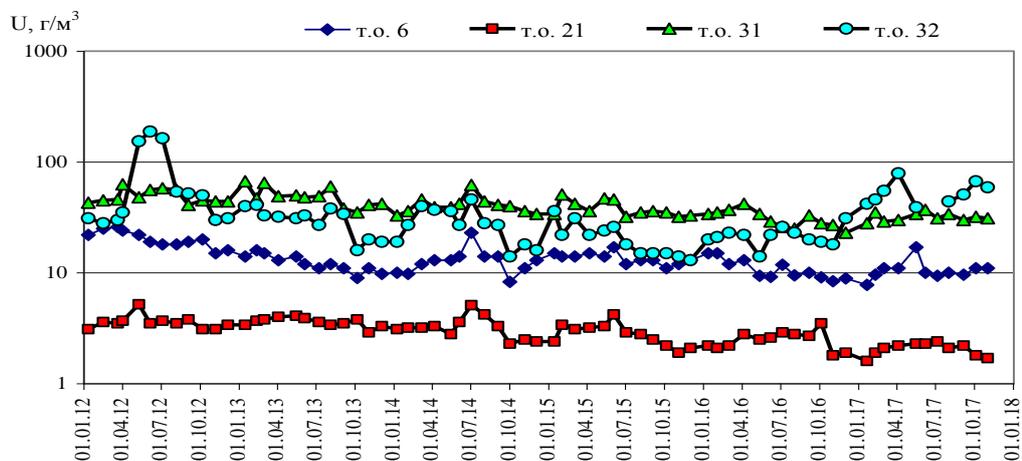


Рис. 9. Динамика концентрации урана в воде помещений 012/16 (т. о. 6), 012/13 (т. о. 21), 012/6 (т. о. 31) и 012/7 (т. о. 32).

Динамика изменений концентраций урана и объемных активностей ^{90}Sr , ^{137}Cs , $^{239+240}\text{Pu}$ и ^{241}Am в водных скоплениях, локализованных в помещениях 012/5 – 12 и 012/13 – 16 показана на рис. 9 – 11 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, а), где вода отсутствует. В настоящее время гидравлическая связь между этими помещениями отсутствует. Возможен переток РЗВ в эти помещения из водных скоплений, локализованных выше на отметках $+2,20$ м и $+6,0$, однако экспериментальные данные 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. 2, б), 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. 8 и 9). В 2017 г. после установки «Арки» НБК в проектное положение поступления РЗВ из центральной части помещений 012/13 – 16 не наблюдалось.

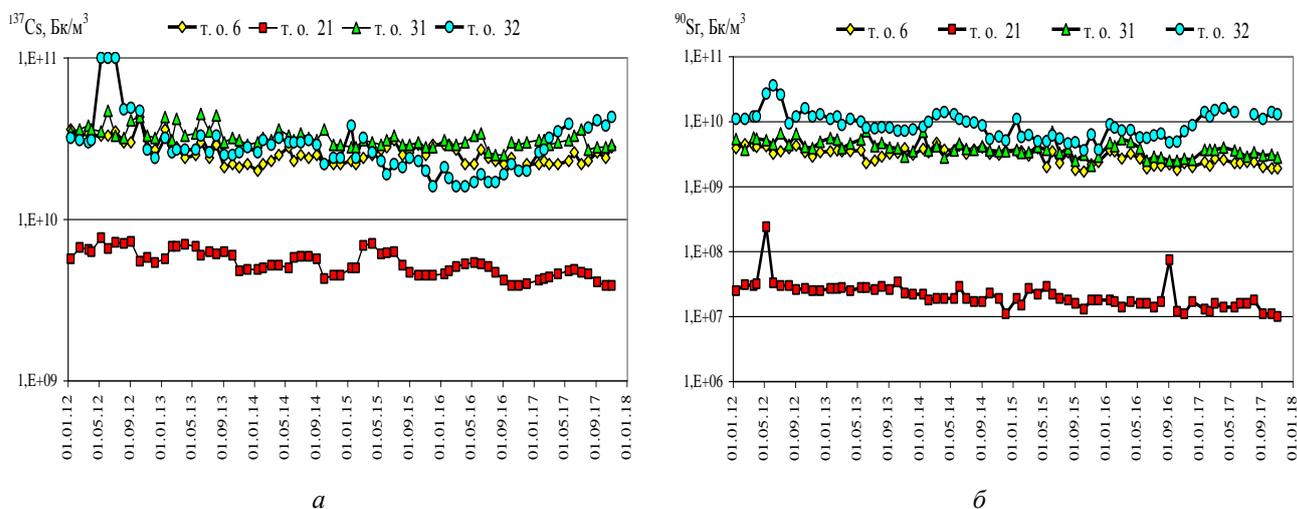


Рис. 10. Динамика объемной активности ^{137}Cs (а) и ^{90}Sr (б) в скоплениях РЗВ в помещениях 012/16 (юг, т. о. 6), 012/13 (север, т. о. 21), 012/6 (север, т. о. 31) и 012/7 (юг, т. о. 32).

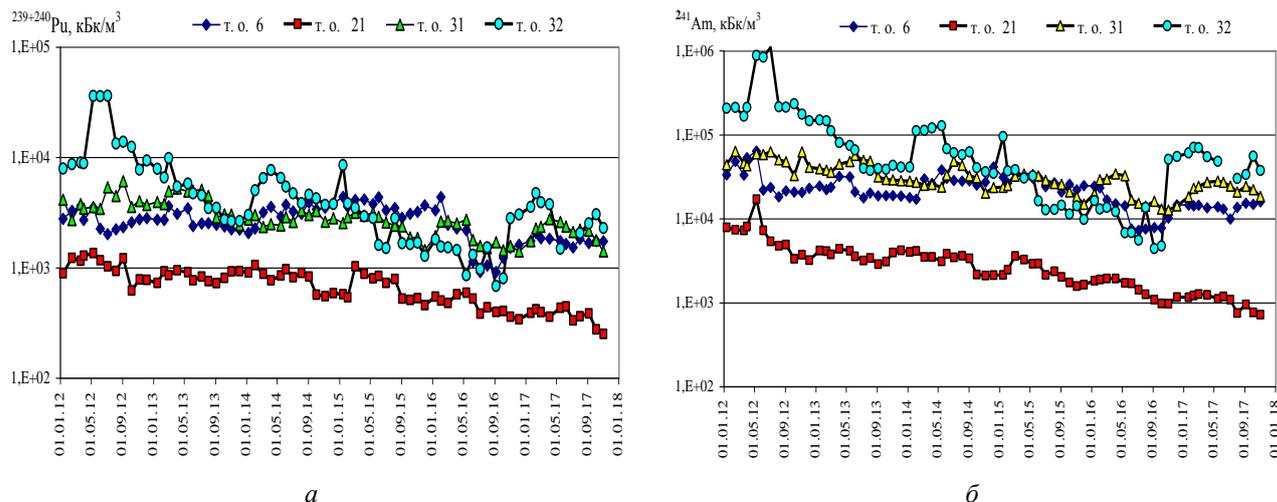


Рис. 11. Объемная активность ТУЭ в РЗВ помещений 012/5 – 8 и 012/13 – 16: а – $^{239+240}\text{Pu}$; б – ^{241}Am .

Наряду с абсолютными значениями объемной активности радионуклидов в РЗВ объекта «Укрытие» для выявления механизмов взаимодействия воды с ТСМ и особенностями миграции радионуклидов с водными потоками большое 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.

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 пробах РЗВ, отобранных в разных помещениях, значительно отличаются. Эти отношения также отличаются от аналогичных отношений в лавообразных топливосодержащих материалах (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 1,4 до 38 за исключением северной части помещения 012/13, где это отношение составляет 326. 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/дм³ и соответственно высокого рН 9,8 в данном скоплении РЗВ происходит осаждение стронция совместно с карбонатом кальция в виде SrCO₃. Это подтверждается тем, что в воде данного скопления наименьшая концентрация кальция 3 мг/дм³ при средней концентрации кальция для остальных водных скоплений 19 мг/дм³ (см. табл. 3).

Таблица 4. Соотношения между активностями радионуклидов в РЗВ объекта «Укрытие» (2017 г.)

| Номер т. о. | ¹³⁷ Cs/ ⁹⁰ Sr | ⁹⁰ Sr/ ²³⁹⁺²⁴⁰ Pu | ²³⁸ Pu/ ²³⁹⁺²⁴⁰ Pu | ²⁴¹ Am/ ²³⁹⁺²⁴⁰ Pu | ²⁴⁴ Cm/ ²³⁹⁺²⁴⁰ Pu |
|-------------|-------------------------------------|-----------------------------------------|------------------------------------------|------------------------------------------|------------------------------------------|
| 6 | 10,8 | 1250 | 0,491 | 7,91 | 0,268 |
| 7 | 1,36 | 2380 | 0,506 | 15,9 | 0,587 |
| 17 | 4,44 | 546 | 0,433 | 4,61 | 0,097 |
| 18 | 38,3 | 298 | 0,384 | 4,49 | 0,076 |
| 20 | 11,8 | 2010 | 0,462 | 3,55 | 0,138 |
| 21 | 326 | 37 | 0,483 | 2,84 | 0,088 |
| 30 | 3,67 | 2390 | 0,477 | 12,7 | 0,329 |
| 31 | 9,13 | 1570 | 0,479 | 10,9 | 0,349 |
| 32 | 2,71 | 4450 | 0,485 | 16,7 | 0,584 |
| 35 | 9,43 | 5400 | 0,471 | 9,7 | 0,262 |
| Среднее | 10,2 ± 9,8* | 2250 ± 1690* | 0,467 ± 0,035 | 8,93 ± 5,08 | 0,278 ± 0,190 |
| ** | 1,21 | 42,6 | 0,461 | 1,89 | 0,051 |

* Без т. о. 21.

** Расчет для топлива на 1 июля 2017 г. [5].

Отношения активностей ²⁴⁴Cm/²³⁹⁺²⁴⁰Pu и ²⁴¹Am/²³⁹⁺²⁴⁰Pu изменяются от 0,076 до 0,58 и от 2,8 до 17 соответственно. Среднее значения ²⁴⁴Cm/²³⁹⁺²⁴⁰Pu и ²⁴¹Am/²³⁹⁺²⁴⁰Pu в РЗВ объекта «Укрытие» почти в пять раз выше аналогичных значений для ТСМ. При высыхании скоплений РЗВ образуются донные отложения с повышенным относительным содержанием ²⁴⁴Cm, который является основным источником нейтронов спонтанного деления.

Выводы

После установки «Арки» НБК в проектное положение в помещениях на нижних отметках объекта «Укрытие» уменьшилось количество РЗВ.

Основными источниками поступления воды на нижние отметки объекта «Укрытие» были конденсационная влага в августе – октябре 2017 г. и технологические растворы при проведении сеансов пылеподавления.

Если условия испарения, конденсации и перетока воды останутся неизменными, то исходя из объема РЗВ в обследованных помещениях и разницы между испарением и конденсацией порядка 10 м³, через несколько лет в обследуемых помещениях объекта «Укрытие» вода в зимне-весенний период будет отсутствовать.

На сегодняшний день остается открытым вопрос изменения объемов РЗВ в наибольшем водном скоплении, локализованном в помещении 001/3.

Отношения активностей ¹³⁷Cs/⁹⁰Sr, ⁹⁰Sr/²³⁹⁺²⁴⁰Pu, ²⁴⁴Cm/²³⁹⁺²⁴⁰Pu и ²⁴¹Am/²³⁹⁺²⁴⁰Pu 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 ИСПОЛЬЗОВАННОЙ ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Исследования водопотоков внутри объекта «Укрытие»* / С. А. Богатов, А. А. Корнеев, А. П. Криницын, О. Л. Стрихарь, В. Н. Щербин // Радиохимия. – 2000. – Т. 42, № 3. – С. 276 – 280.
2. *Криницын А. П.* Проблема обращения с жидкими радиоактивными отходами объекта «Укрытие» / А. П. Криницын, О. Л. Стрихарь, В. Н. Щербин // Там же. – 2003. – Т. 45, № 5. – С. 461 – 465.
3. *Многолетний мониторинг неорганизованных скоплений жидких радиоактивных отходов объекта «Укрытие»* / А. А. Одинцов, В. Е. Хан, В. А. Краснов, В. Н. Щербин // Проблемы безопасности атомных электростанций і Чернобиля. – 2016. – Вип. 27. – С. 43 – 57.

4. *Одинцов А. А.* Методика одновременного определения содержания урана и трансураниевых элементов в грунтовой воде и жидких радиоактивных отходах объекта «Укрытие» / А. А. Одинцов, Э. М. Пазухин, В. Е. Хан // *Радиохимия*. – 2005. – Т. 47, № 5. – С. 467 – 471.
5. *Определение ядерно-физических характеристик топлива 4-го энергоблока ЧАЭС* / А. А. Боровой, А. А. Довбенко, М. В. Смолянкина, А. А. Строганов // *Отчет ИБРАЭ АН СССР*. - Инв. № 52/11-20. - М., 1991.

О. О. Одинцов, В. Е. Хан

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

РАДИОАКТИВНО ЗАБРУДНЕНА ВОДА В ОБ'ЄКТІ «УКРИТТЯ» ПІСЛЯ НАСУВАННЯ «АРКІ» НОВОГО БЕЗПЕЧНОГО КОНФАЙНМЕНТА У ПРОЕКТНЕ ПОЛОЖЕННЯ

Представлено результати багаторічного моніторингу неорганізованих скупчень радіоактивно забрудненої води (РЗВ) на нижніх відмітках об'єкта «Укриття». Визначено об'єми РЗВ і динаміка їхніх сезонних змін. Експериментально визначено зміст макрокомпонентів, урану, продуктів поділу ^{90}Sr , ^{137}Cs , $^{154,155}\text{Eu}$ і трансураниевих елементів (ТУЕ) ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am , ^{244}Cm в РЗВ об'єкта «Укриття» в період 2017 р. Концентрація урану в РЗВ об'єкта «Укриття» становила 0,5 – 80 г/м³. Об'ємна активність ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{154}Eu в РЗВ знаходиться в межах $n \cdot 10^7$ - $n \cdot 10^{11}$ Бк/м³, а ТУЕ в межах $n \cdot 10^4$ - $n \cdot 10^8$ Бк/м³. Показано, що сезонні коливання концентрації урану та об'ємних активностей радіонуклідів у РЗВ можуть бути до одного порядку величини. Співвідношення між активностями $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$, $^{90}\text{Sr}/^{239+240}\text{Pu}$, $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ і $^{244}\text{Cm}/^{239+240}\text{Pu}$ в РЗВ значно відрізняються від аналогічних співвідношень радіонуклідів у паливовмісних матеріалах об'єкта «Укриття».

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

O. O. Odintsov, V. E. Khan

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

RADIOACTIVE WATER IN OBJECT «UKRYTTYA» AFTER PULLING DOWN OF «ARCH» OF NEV SAFE CONFINEMENT IN PROJECT STATUTE

The results of the long-term monitoring of the unorganized accumulations of liquid radioactive wasters (LRW) are presented on the lower marks of object «Ukryttya». The volumes of LRW and dynamics of their seasonal changes are certain. Maintenance of activity is experimentally certain, uranium, fission products of ^{90}Sr , ^{137}Cs , $^{154,155}\text{Eu}$ and transuranium elements (TUE) ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am and ^{244}Cm in LRW of object «Ukryttya» in the period of 2017. Concentration of uranium in LRW of object «Ukryttya» was made by 0.5 – 80 g/m³. Volume activity of ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{154}Eu in LRW is within the limits of $n \cdot 10^7$ - $n \cdot 10^{11}$ Bq/m³, and TUE within the limits of $n \cdot 10^4$ - $n \cdot 10^8$ Bq/m³. It is showed that the seasonal variation of concentration of uranium and by volumes activity of radionuclides in LRW can make sizes to one order. Correlations between activity $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$, $^{90}\text{Sr}/^{239+240}\text{Pu}$, $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ and $^{244}\text{Cm}/^{239+240}\text{Pu}$ in LRW considerably differ from similar correlations of radionuclides in fuel-carrying materials of object «Ukryttya». In the period of supervisions of 1996 – 2015 there was steady line of multiplying the concentration of uranium and by volumes activity radionuclides in most accumulation of LRW in the apartment 001/3.

Keywords: uranium, plutonium, americium, liquid radioactive waster, object «Ukryttya».

REFERENCES

1. *Researches of water streams into object «Ukryttya»* / S. A. Bogatov, A. A. Korneev, A. P. Krynytsyn et al. // *Radiokhimiya*. - 2000. – Vol. 42, № 3. – P. 276 – 280. (Rus)
2. *Krinityn A. P.* The problem of handling the liquid radioactive wasters of object «Ukryttya» / A. P. Krinityn, O. L. Strikhar', V. N. Shcherbin // *Radiokhimiya*. – 2003. – Vol. 45, № 5. – P. 461 – 465. (Rus)
3. *Long-term monitoring of the unorganized accumulations liquid radioactive wasters of object «Ukryttya»* / O. O. Odintsov, V. E. Khan, V. A. Krasnov, V. N. Shcherbin // *Problemy bezpeky atomnykh electrostantsiy i Chornobylia (Problems of Nuclear Power Plants' Safety and of Chornobyl)*. – 2016. - Iss. 27. - P.43 - 57. (Rus)
4. *Odintsov A. A.* Procedure for Simultaneous Determination of Uranium and Transuranium Elements in Groundwater and Liquid Radioactive Wastes from the Shelter / A. A. Odintsov, E. M. Pazukchin, V. E. Khan // *Radiokhimiya*. – 2005. – Vol. 47, № 5. – P. 467 – 471. (Rus)
5. *Determination of nuclear-physical descriptions of fuel of 4th power unit of ChNPP* / A. A. Borovoy, A. A. Dovenko, M. V. Smolyankina, A. A. Stroganov // *Report ISRNPP AS USSR*. - № 52/11-20. - Moskva, 1991. (Rus)

Надійшла 10.04.2018

Received 10.04.2018