

А. С. Лагуненко, В. Е. Хан, А. А. Одинцов, В. П. Ковальчук, Т. А. Кравчук, А. К. Калиновский, В. А. Кашпур, А. А. Свирид, А. В. Ткач, С. В. Юрчук

Институт проблем безопасности АЭС НАН Украины, ул. Кирова, 36а, м. Чернобыль, 07270, Украина

Радиоактивные аэрозоли около скопления лавообразных топливосодержащих материалов в помещении 012/7 объекта «Укрытие» в 2017–2018 гг.

Ключевые слова:

объект «Укрытие», лавообразные топливосодержащие материалы, радиоактивные аэрозоли, объемная активность, соотношение радионуклидов.

Представлены радионуклидный состав и объемные активности аэрозолей и их выпадений в помещении 012/7 объекта «Укрытие» в 2017–2018 гг. Пробы отбирали в 0,5 м от южного края лавообразных топливосодержащих материалов (ЛТСМ). Установлено, что суммарная концентрация аэрозолей-носителей $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$ и ^{137}Cs колебалась в диапазоне 0,1–6 Бк/м³. При этом на долю ^{137}Cs приходилось 33 %. Гамма-спектрометрические измерения и радиохимические анализы показали, что усредненные отношения радионуклидов-продуктов аварии 4-го блока ЧАЭС в аэрозольных пробах и образцах ЛТСМ практически идентичны. Это свидетельствует о том, что происходит деструкция ЛТСМ и частичный переход материалов в аэрозольное состояние.

Введение

В первые дни после аварии на Чернобыльской атомной электростанции (ЧАЭС) в 1986 г. произошло формирование лавообразных топливосодержащих материалов (ЛТСМ), в которых находилось большое количество ядерного топлива и радиоактивных продуктов деления. При растекании лава оказалась во многих помещениях, в том числе в подаппаратном помещении (на высотной отметке +9,00), парораспределительном коридоре (на отметке +6,00), бассейне-барботере (на отметке +3,00 и 0,00) и других местах [1].

Хотя с момента аварии и образования ЛТСМ прошло более 30 лет, сведений об их состоянии, а тем более разрушении, крайне мало. В этом плане важные исследования радиоактивного аэрозоля были проведены в 2010–2011 гг. в помещении 012/7 на самой низкой высотной отметке (0 м) объекта «Укрытие», куда протекла лава [2]. Пробы аэрозоля отбирали на трехслойные фильтры Петрянова в 15–20 см от южного края ЛТСМ. Установлено, что в воздухе помещения объемная активность суммы

долгоживущих бета-излучающих нуклидов ($\Sigma\beta$), представленных $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$, ^{137}Cs , колебалась в диапазоне 5–100 Бк/м³. При этом на долю ^{137}Cs приходилось не более 10–20 %. Отношение концентраций $^{137}\text{Cs}/^{241}\text{Am}$ было близко к 15. Носителями радионуклидов были аэрозоли крупнее 1 мкм. Состав и отношения радионуклидов-продуктов аварии 4-го блока ЧАЭС в аэрозольных пробах и образцах ЛТСМ оказались практически идентичными. Авторы публикации [2] считают, что в помещении 012/7 происходила деструкция лавы и ее частичный переход в аэрозольное состояние.

27 ноября 2016 г. «Арка» нового безопасного конфайнмента (НБК) была установлена в проектное положение над объектом «Укрытие». Завершение создания НБК в 2018 г. обуславливает кардинальное изменение ряда факторов внешнего влияния на ЛТСМ: прекращение поступления осадков из окружающей среды в помещения объекта «Укрытие», смещение средней сезонной температуры в объекте в положительную сторону. В результате изменения температурно-влажностного режима происходит постепенное высыхание водных скоплений и

© А. С. Лагуненко, В. Е. Хан, А. А. Одинцов, В. П. Ковальчук, Т. А. Кравчук, А. К. Калиновский, В. А. Кашпур, А. А. Свирид, А. В. Ткач, С. В. Юрчук, 2019

понижение влажности воздуха в помещениях с ЛТСМ. Это, в свою очередь, может привести к значительному повышению концентрации радиоактивного аэрозоля в помещениях объекта «Укрытие» в результате вторичного пылеподъема с поверхностей ЛТСМ. Последнее предопределило необходимость систематических исследований воздушной среды, в частности радиоактивных аэрозолей, непосредственно в местах локализации ЛТСМ при фактических температурных, влажностных, воздухообменных, радиационных и других условиях, существующих в объекте «Укрытие». Этому посвящена данная работа, выполненная в 2017–2018 гг. в помещении 012/7.

Описание помещения 012/7 и находящегося там скопления ЛТСМ

Скопление ЛТСМ в помещении 012/7 расположено на высотной отметке 0,00 в системе бассейна-барботера 4-го блока ЧАЭС. В соответствии с [3] ширина скопления в основании (направление запад-восток) ~ 2 м, длина (направление север-юг) ~ 3 м. Его наибольшая высота над полом ~ 0,8 м. Скопление до уровня 0,2–0,4 м над полом залито бетоном, поступившим сюда в 1986 г. при возведении каскадной стены объекта «Укрытие». В этом скоплении, получившем название «куча ББ-1», содержится $1,0 \pm 0,5$ т урана (рис. 1).

При экспериментах по пылеподавлению и локализации ЛТСМ в марте 2000 г. южная половина скопления была покрыта слоем кремнийорганического



Рис. 1. Скопление ЛТСМ, частично укрытое «ЭКОР-25ММ» (белая пленка), в помещении 012/7

компаунда «ЭКОР-25ММ» толщиной 1–3 см [4]. Эта белая пленка видна на рис. 1. В связи с этим полностью открытая горизонтальная проекция ЛТСМ составляет около 2,5 м². Доступ к скоплению ЛТСМ возможен из коридора 006/2 через помещения 009/4 и 012/8.

Методы и средства отбора проб и измерений

Аэрозоли отбирались с помощью воздухоотборника типа RadeCo Н810 в течение суток со скоростью, обеспечивающей за время экспозиции около 100 м³ прокачиваемого воздуха.

Использовались пакеты, состоящие из фильтров АФА РСР-20 и АФА РМР-20 площадью 20 см². Пакеты устанавливались в специальном фильтродержателе. После окончания сеанса проботбора пакеты демонтировались, фильтры осматривались на наличие внешних повреждений и в полиэтиленовых пакетах отправлялись на анализ. Пробы аэрозоля отбирали в непосредственной близости (на расстоянии примерно 0,5 м) от южного края скопления ЛТСМ. Вся аппаратура размещалась на специальной тележке (рис. 2 и 3), которую затем вкатывали в помещение 012/7 к южному концу скопления ЛТСМ, т. е. условия проботбора были такие же, как и в 2010–2011 гг. [2].

Для оценки плотности выпадения аэрозоля в помещении рядом с воздухоотборником устанавливали кювету, на дне которой размещали фильтровальную бумагу (см. рис. 2 и 3). Отобранные пробы

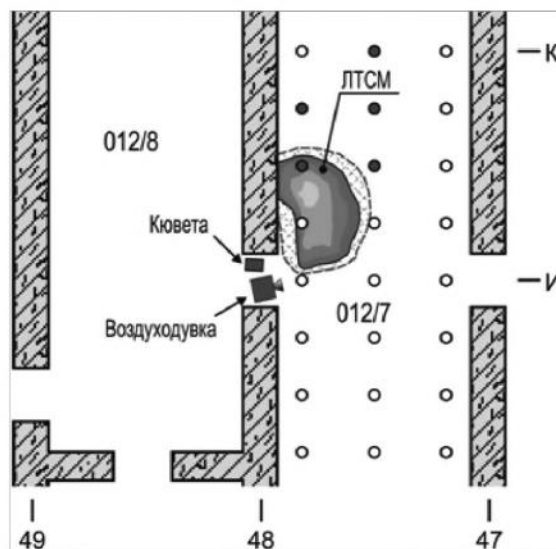


Рис. 2. Отбор проб аэрозоля из помещения 012/7

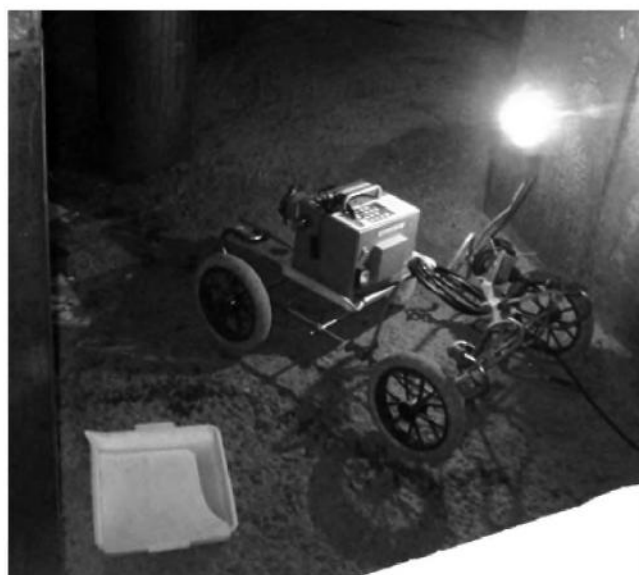


Рис. 3. Пробоотборный комплекс в непосредственной близости к скоплению ЛТСМ в помещении 012/7

в полиэтиленовых пакетах отправляли на анализ для проведения гамма-спектрометрических и радиохимических анализов.

Измерение бета-активности проб выполняли на приборе РКБ4-1ем через 4–5 сут., когда полностью распадались дочерние продукты радона и торона. В результате определяли содержание $\Sigma\beta$.

Последующие измерения радиоактивных веществ выполняли на гамма-спектрометрическом комплексе, состоящем из полупроводникового детектора GL2020R из сверхчистого германия с бериллиевым окном толщиной 500 мкм и 8192-канального амплитудного анализатора импульсов. Измерительный диапазон охватывает энергии от 10 до 1400 кэВ. Детектор имеет разрешение 0,57 и 1,2 кэВ для энергий гамма-квантов 122 кэВ (гамма-линия ^{57}Co) и 661,6 кэВ (гамма-линия ^{137}Cs) соответственно. По результатам измерений рассчитывали содержание в фильтрах ^{137}Cs , ^{154}Eu и ^{241}Am .

Проба аэрозоля (от 15.02.11) и четыре пробы аэрозольного выпадения за 2017–2018 гг. были еще проанализированы радиохимическими методами. После озонления пробы и растворения зольных остатков активность ^{90}Sr определяли бета-радиометрическими измерениями, а ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ и ^{241}Am – с помощью альфа-спектрометрии.

В период проведения отборов проба аэрозоля (май 2017 г. – июль 2018 г.) осуществлялась непрерывная фиксация значений температуры и относительной влажности в помещении 012/8 посредством регистратора Elitech RC-4HA/C, установленного

в координатах И–2000/49–1500 (в 5 м от места пробоотбора). С февраля по май 2017 г. контроль этих параметров выполнялся с помощью гигротермометра ТН-mini с выносным датчиком температуры-влажности.

Результаты исследований

Результаты радиометрических и гамма-спектрометрических измерений проб аэрозолей, отобранных из помещения 012/7, приведены в табл. 1. За период февраль 2017 г. – июль 2018 г. было отобрано 16 проб.

Таблица 1. Характеристики радиоактивных аэрозолей в помещении 012/7 объекта «Укрытие» в 2017–2018 гг.

Дата отбора	Концентрация, Бк/м ³				$^{137}\text{Cs}/\Sigma\beta$
	^{137}Cs	^{154}Eu	^{241}Am	$\Sigma\beta$	
2017 г.					
14–15.02	0,83	$8,3 \cdot 10^{-3}$	$6,4 \cdot 10^{-2}$	4,0	0,21
11–12.04	$6,2 \cdot 10^{-2}$	–	–	0,11	0,56
26–27.04	0,24	–	–	0,82	0,29
07–08.06	0,55	$4,4 \cdot 10^{-3}$	$3,4 \cdot 10^{-2}$	2,4	0,23
10–11.07	0,38	–	–	0,83	0,46
22–23.08	$7,2 \cdot 10^{-2}$	–	–	0,42	0,17
11–12.09	$8,6 \cdot 10^{-2}$	–	–	0,17	0,51
24–25.10	0,14	–	–	0,22	0,64
14–15.11	0,74	–	$3,2 \cdot 10^{-2}$	2,3	0,32
2018 г.					
16–17.01	1,5	$9,7 \cdot 10^{-3}$	$9,1 \cdot 10^{-2}$	5,8	0,26
22–23.02	0,67	–	–	2,6	0,26
12–13.03	0,62	–	–	2,8	0,22
17–18.04	0,20	–	–	1,7	0,12
14–16.05*	0,51	–	$1,6 \cdot 10^{-2}$	4,1	0,12
04–05.06	$4,8 \cdot 10^{-2}$	–	–	0,12	0,40
03–04.07	$4,7 \cdot 10^{-2}$	–	–	$8,8 \cdot 10^{-2}$	0,57

*14–16.05.18 аэрозоли отбирались в течение 2 сут. (200 м³ прокачанного воздуха).

В период с февраля 2017 г. по июль 2018 г. наиболее высокие концентрации ^{137}Cs в воздухе помещения 012/7 зарегистрированы 17 января 2018 г., а наиболее низкие – 4 июля 2018 г. За весь период наблюдения величина $\Sigma\beta$ варьировала в диапазоне 0,088–5,8 Бк/м³, ^{137}Cs – 0,047–1,5 Бк/м³. Таким образом, минимальные и максимальные значения активности

^{137}Cs и $\Sigma\beta$ различались на два порядка величины. Из-за низких концентраций определить ^{241}Am и ^{154}Eu во всех отобранных пробах на полупроводниковом спектрометре не удалось. По результатам отдельных проб активность ^{241}Am не превышала $0,091 \text{ Бк/м}^3$, а ^{154}Eu – $0,0097 \text{ Бк/м}^3$.

Усредненные значения концентраций ^{137}Cs и $\Sigma\beta$ за весь период наблюдения составили $0,42$ и $1,8 \text{ Бк/м}^3$ соответственно, что на порядок величины меньше значения, полученного при наблюдениях в 2010–2011 гг. [2].

В 2017–2018 гг. среднее значение отношений концентраций $^{137}\text{Cs}/\Sigma\beta = 0,33$. Из полученной величины отношения следует, что вклад ^{137}Cs в сумму бета-излучающих нуклидов-продуктов Чернобыльской аварии составлял 33 %. Причем в 2017 г. этот вклад составил 37 %, а в 2018 г. снизился до 27 %. Для сравнения, в период наблюдений в 2010–2011 гг. вклад ^{137}Cs в сумму бета-излучающих нуклидов-продуктов Чернобыльской аварии составлял лишь 13 %.

Динамика объемной активности аэрозолей-носителей ^{137}Cs в воздухе помещения 012/7 и значения относительной влажности, наблюдаемые в периоды пробоотборов, представлены на рис. 4. Относительная влажность воздуха в помещении 012/7 в период наблюдения варьировала от 45 до 97 %.

Для сравнения, в период наблюдений в 2010–2011 гг. относительная влажность воздуха в помещении 012/7 варьировала от 30 до 85 %.

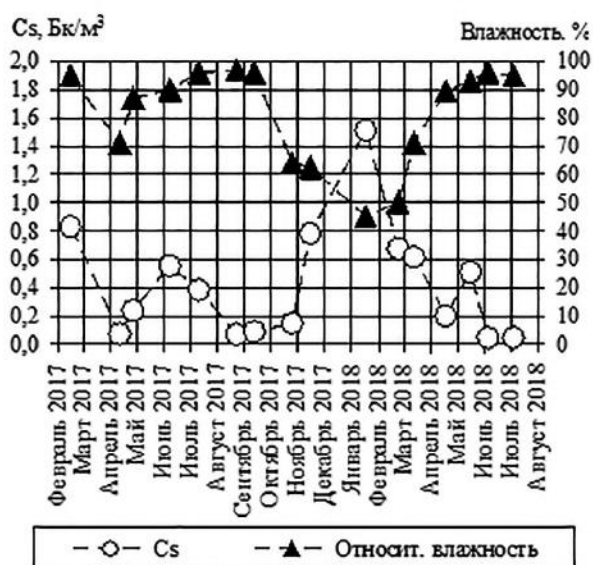


Рис. 4. Объемная активность аэрозолей-носителей ^{137}Cs и относительная влажность в помещении 012/7 в 2017–2018 гг.

Наиболее низкую влажность (45–50 %) наблюдали в январе 2017 г. и феврале 2018 г. Высокая влажность (96–97 %) зафиксирована в июле–сентябре 2017 г. и в июне–июле 2018 г. (95–96 %), когда среднесуточная температура в атмосфере окружающей среды достигала 20–21 °С.

В отличие от влажности среднесуточная температура воздуха в помещении 012/7 была стабильная. В холодный период года она опускалась от 13 до 9 °С, а в теплый период, когда происходил прогрев объекта «Укрытие», возрастала до 12–13 °С. Такой режим обеспечивался огромной массой бетонных и металлических сооружений объекта «Укрытие» и расположением помещения 012/7 на высотной отметке 0 м, т. е. в подвале, где воздухообмен был незначительный.

Как следует из рис. 4, сравнительно малые значения влажности воздуха соответствовали в большинстве случаев высокой концентрации радиоактивного аэрозоля. Высокие значения влажности совпали по времени с низкими значениями концентрации радиоактивного аэрозоля.

Проба аэрозоля, отобранная 15 февраля 2017 г., после гамма-спектрометрических измерений была проанализирована радиохимическим методом. Полученные результаты с неопределенностью измерения $\pm (10\text{--}30) \%$ приведены в табл. 2.

Таблица 2. Радионуклидный состав (Бк, на дату отбора) пробы аэрозоля из помещения 012/7, отобранной 15.02.2017 г.

^{90}Sr	160 ± 40
^{137}Cs	83 ± 10
^{154}Eu	$0,83 \pm 0,18$
^{238}Pu	$0,92 \pm 0,10$
$^{239+240}\text{Pu}$	$2,5 \pm 0,05$
^{241}Am	$6,4 \pm 0,65$
^{244}Cm	$0,097 \pm 0,02$

Для сопоставления радионуклидных составов аэрозоля и скопления лавоподобных топливосодержащих материалов были проанализированы несколько гранул лавовой коры из южного края скопления.

Результаты их гамма-спектрометрии и радиохимического анализа по состоянию на 1 сентября 2018 г. приведены в табл. 3.

Таблица 3. Содержание радионуклидов (МБк/г) в гранулах ЛТСМ из помещения 012/7

^{90}Sr	$31 \pm 9,3$
^{137}Cs	$18 \pm 2,4$
^{154}Eu	$0,22 \pm 0,055$
^{155}Eu	$0,026 \pm 0,008$
^{241}Am	$2,0 \pm 0,29$
^{238}Pu	$0,44 \pm 0,093$
$^{239+240}\text{Pu}$	$0,98 \pm 0,02$

По данным, приведенным в табл. 1 и 3, рассчитаны усредненные за 2017–2018 гг. соотношения радионуклидов в аэрозолях, а также аналогичные соотношения в гранулах ЛТСМ (табл. 4).

Таблица 4. Соотношения радионуклидов по результатам гамма-спектрометрии

Объект	Аэрозоль 2017–2018 гг.	Гранулы ЛТСМ (на 01.09.18)
$^{137}\text{Cs}/^{241}\text{Am}$	20	$9,0 \pm 1,8$
$^{137}\text{Cs}/^{154}\text{Eu}$	127	82 ± 16
$^{241}\text{Am}/^{154}\text{Eu}$	8,3	$9,1 \pm 1,8$

Из табл. 4 видно, что в аэрозолях величины отношений $^{137}\text{Cs}/^{241}\text{Am}$ и $^{137}\text{Cs}/^{154}\text{Eu}$ существенно больше, чем в гранулах лавовой корки. Из этого следует, что аэрозоль в помещении 012/7 в период наблюдения был существенно обогащен радиоцезием, чего в 2010–2011 гг. не наблюдалось. Установленные соотношения $^{137}\text{Cs}/^{154}\text{Eu}$ и $^{137}\text{Cs}/^{241}\text{Am}$ показывают, что в помещении в 2017–2018 гг. периодически поступали аэрозоли-носители радиоцезия от иных источников, находящихся, вероятно, вне помещения. В отличие от цезия отношения концентраций труднолетучих радионуклидов в аэрозолях и гранулах из скопления ЛТСМ имеют близкие значения (см. табл. 4).

По результатам радиохимических анализов были получены соотношения активностей нуклидов в аэрозольной пробе от 15.02.17 и гранулах ЛТСМ (табл. 5). Соотношения радионуклидов в пробе аэрозоля представлены в пересчете на 01.09.18.

Из табл. 5 следует, что соотношения радионуклидов в пробе аэрозоля и в гранулах из скопления ЛТСМ имеют близкие значения. Расхождения результатов связаны как с неопределенностью измерения, так и неоднородностью состава ЛТСМ в помещении 012/7.

Таблица 5. Соотношения радионуклидов по результатам радиохимических анализов (в пересчете на 01.09.18)

Объект	Аэрозоль	Гранулы
$^{241}\text{Am}/^{154}\text{Eu}$	8,9	9,1
$^{241}\text{Am}/^{238}\text{Pu}$	7,1	4,5
$^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$	2,6	2,0
$^{90}\text{Sr}/^{241}\text{Am}$	25	16
$^{137}\text{Cs}/\Sigma\beta$	0,21	0,22

На последний фактор было обращено внимание еще в публикациях [2, 5]. Таким образом, отношения концентраций радионуклидов в аэрозолях позволяют сделать вывод о том, что в помещении 012/7 вследствие эрозии поверхности ЛТСМ происходит генерация радиоактивного аэрозоля, который попадает в воздушную среду помещения. Этот механизм подтверждается результатами определения дисперсности аэрозольных частиц, приведенными в работе [2].

За период март 2017 г. – июль 2018 г. был выполнен отбор 9 проб выпадений радиоактивного аэрозоля в помещении 012/7.

Результаты гамма-спектрометрического анализа проб выпадений радиоактивного аэрозоля в помещении 012/7 представлены в табл. 6.

Как видно из данных табл. 6, за весь период наблюдений величина $\Sigma\beta$ варьировала в диапазоне 240–16000 Бк/(м²·сут.), ^{137}Cs – 66–2500 Бк/(м²·сут.), ^{241}Am – 3,2–260 Бк/(м²·сут.) и ^{154}Eu – 0,35–3,0 Бк/(м²·сут.). Таким образом, минимальные и максимальные значения различались на два порядка величины. При этом максимальная плотность выпадения аэрозоля наблюдалась с 4 октября по 1 ноября 2017 г. Однако большинство результатов экспонирования планшетов в 2017 г. и до февраля 2018 г. находилось в узких диапазонах значений: $\Sigma\beta$ – 1100–2700, ^{137}Cs – 210–410, ^{241}Am – 17–43 и ^{154}Eu – 2–5 Бк/(м²·сут.). Из этого следует, что в этот период в помещении 012/7 сохранялась устойчивая повышенная плотность выпадения аэрозоля по сравнению с предшествующим периодом экспонирования планшета. Необходимо отметить, что экспонирование с 08.10.14 по 22.04.17 пришлось в основном на период до надвигки «Арки» НБК. Из таблицы также видно, что величина плотности выпадения радиоаэрозоля в 2018 г. снизилась по сравнению с 2017 г. до значений, которые наблюдались до надвигки «Арки».

Как видно из представленных данных, за весь период наблюдений среднее значение отношения

Таблица 6. Плотность выпадений аэрозоля в помещении 012/7

Дата установки планшета	Дата замены планшета	Экспозиция, сут.	Плотность выпадений, Бк/(м ² ·сут.)			
			¹³⁷ Cs	¹⁵⁴ Eu	²⁴¹ Am	Σβ
08.10.14	22.03.17	896	68	0,54	4,5	3,1 · 10 ²
22.03.17	06.07.17	106	4,1 · 10 ²	5,0	43	2,1 · 10 ³
06.07.17	03.08.17	28	3,7 · 10 ²	4,8	38	2,4 · 10 ³
03.08.17	06.09.17	34	3,0 · 10 ²	3,2	29	1,9 · 10 ³
06.08.17	04.10.17	28	3,0 · 10 ²	3,3	29	1,8 · 10 ³
04.10.17	01.11.17	28	2,5 · 10 ³	30	2,6 · 10 ²	1,2 · 10 ⁴
01.11.17	06.02.18	97	2,1 · 10 ²	2,0	17	1,0 · 10 ³
06.02.18	15.05.18	98	71	0,35	3,2	2,4 · 10 ²
15.05.18	04.07.18	50	66	0,37	4,3	2,9 · 10 ²

В табл. 7 представлены результаты гамма-спектрометрических измерений и радиохимического анализа проб выпадения аэрозоля в помещении 012/7.

Таблица 7. Радионуклидный состав аэрозольных выпадений в помещении 012/7 объекта «Укрытие»

Даты установки-снятия планшета	Экспозиция, сут.	Плотность выпадения аэрозоля, Бк/(м ² ·сут.)							U, мкг/(м ² ·сут.)
		¹³⁷ Cs	¹⁵⁴ Eu	⁹⁰ Sr	²³⁸ Pu	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Am	²⁴⁴ Cm	
09.10.14–22.03.17	896	68	0,54	1,7 · 10 ²	0,97	2,1	4,5	0,10	0,65
22.03.17–06.07.17	106	4,1 · 10 ²	5,0	8,2 · 10 ²	7,1	17	43	0,79	–
04.10.17–01.11.17	28	2,5 · 10 ³	30	4,8 · 10 ³	56	1,2·10 ²	2,6 · 10 ²	4,3	0,96
01.11.17–06.02.18	97	2,1 · 10 ²	2,0	4,0 · 10 ²	2,8	5,7	17	0,28	0,70

По данным, приведенным в табл. 6 и 7, рассчитаны усредненные за 2017–2018 гг. соотношения радионуклидов в выпадениях аэрозоля в помещении 012/7 (табл. 8).

Таблица 8. Соотношения радионуклидов в выпадениях аэрозоля в помещении 012/7

Дата установки-снятия планшета	¹³⁷ Cs/ ¹⁵⁴ Eu	¹³⁷ Cs/ ²⁴¹ Am	²⁴¹ Am/ ¹⁵⁴ Eu	⁹⁰ Sr/ ²⁴¹ Am	²⁴¹ Am/ ²³⁸ Pu	²⁴¹ Am/ ²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	¹³⁷ Cs/Σβ
08.10.14–22.03.17	130	15	8,3	38	4,6	2,1	0,22
22.03–06.07.17	82	9,4	9,1	19	6,1	2,5	0,20
06.07–03.08.17	77	9,7	7,7	–	–	–	0,15
03.08–06.09.17	93	10	9,1	–	–	–	0,16
06.09–04.10.17	89	10	8,3	–	–	–	0,16
04.10–01.11.17	83	9,6	8,3	18	4,6	2,2	0,21
01.11.17–06.02.18	107	12	8,8	24	6,1	3,0	0,21
06.02–15.05.18	199	22	9,0	–	–	–	0,30
15.05–04.07.18	178	15	12	–	–	–	0,23
Среднее значение за период 22.03.17–06.02.18	89	10	8,6	20	5,6	4,1	0,18
Среднее значение за период 06.02–04.07.18	189	19	10,5	–	–	–	0,27
Среднее значение за 2017–2018 гг.	123	13	9,1	–	–	–	0,20

концентраций $^{137}\text{Cs}/\Sigma\beta = 0,20$ (при минимальном значении 0,15 и максимальном 0,30), $^{137}\text{Cs}/^{241}\text{Am} = 13$ (минимум 9,4, максимум 22), $^{137}\text{Cs}/^{154}\text{Eu} = 123$ (минимум 82, максимум 199) и $^{241}\text{Am}/^{154}\text{Eu} = 9,1$ (минимум 7,7, максимум 12). Из полученной средней величины $^{137}\text{Cs}/\Sigma\beta$ следует, что вклад ^{137}Cs в сумму бета-излучающих нуклидов-продуктов Чернобыльской аварии составлял 20 %.

Из табл. 8 следует, что соотношения радионуклидов в пробах выпадений аэрозоля и в гранулах из скопления ЛТСМ в помещении 012/7 (см. табл. 4 и 5) имеют близкие значения. Расхождения результатов связаны, как уже отмечалось ранее, с неопределенностью измерения и неоднородностью состава ЛТСМ. Кроме того, из сопоставления соотношений $^{137}\text{Cs}/^{154}\text{Eu}$ и $^{137}\text{Cs}/^{241}\text{Am}$ в ЛТСМ с радионуклидным составом выпадений в помещении следует, что на протяжении 2018 г. радиоаэрозольные выпадения обогащены ^{137}Cs относительно состава находящихся здесь ЛТСМ. Поскольку ЛТСМ были обеднены радиоцезием в процессе образования лавы и ее растекания по помещениям объекта «Укрытие», то источниками дополнительного цезия являются аэрозоли-носители ^{137}Cs . Эти аэрозоли, вероятно, образуются в результате деструкции поверхностей, на которые ранее сорбировались частицы-носители конденсационного цезия.

Представленные данные показывают, что источниками радиоаэрозольного выпадения в помещении 012/7 являются в основном аэрозоли, которые генерируются с поверхности ЛТСМ из этого помещения. Некоторую долю выпадений формируют аэрозоли-носители радиоцезия от иных источников, возможно, находящихся вне помещения.

Выводы

1. В 2017–2018 гг. в помещении 012/7 объекта «Укрытие» отобраны и проанализированы 16 проб радиоактивных аэрозолей – продуктов Чернобыльской аварии и 9 проб аэрозольных выпадений, при этом величина $\Sigma\beta$ варьировала в диапазоне 0,088–5,8 Бк/м³, ^{137}Cs – 0,047–1,5 Бк/м³, активность ^{241}Am не превышала 0,091 Бк/м³, а ^{154}Eu – 0,0097 Бк/м³. Таким образом, объемная активность аэрозоля в помещении в 2017–2018 гг. на порядок величины меньше значений, полученных при наблюдениях в 2010–2011 гг., что связано, по-видимому, с повышением влажности в помещении.

2. Соотношения радионуклидов в пробах аэрозоля воздуха и его выпадения, а также в гранулах

из скопления ЛТСМ в помещении 012/7 имеют близкие значения, что свидетельствует о разрушении лавы и спонтанном переходе продуктов деструкции в аэрозольное состояние.

Список использованной литературы

1. Ядерное топливо в объекте «Укрытие» / Р. Э. Арутюнян, Л. А. Большов, А. А. Боровой и др. – Москва : Наука, 2010. – 240 с.
2. Огородников Б. И. Аэрозоли – свидетели разрушения лавообразных топливосодержащих материалов в объекте «Укрытие» / Б. И. Огородников, В. Е. Хан, В. П. Ковальчук // Проблемы безопасности атомных электростанций і Чернобиля. – 2013. – Вип. 20. – С. 94–106.
3. Лавообразные топливосодержащие материалы в бассейне-барботере и парораспределительном коридоре 4-го блока Чернобыльской АЭС / А. А. Боровой, А. А. Ключников, В. А. Краснов и др. // Проблемы Чернобиля. – 2001 – Вип. 7. – С. 181–193.
4. Объект «Укрытие»: 1986–2006 / А. А. Ключников, В. А. Краснов, В. М. Рудько, В. Н. Щербин. – Чернобыль: Ин-т проблем безопасности АЭС НАН Украины, 2006. – 168 с.
5. Пазухин Э. М. Лавообразные топливосодержащие массы 4-го блока Чернобыльской АЭС: топография, физико-химические свойства, сценарий образования / Э. М. Пазухин // Радиохимия. – 1994. – Т. 36. – № 2. – С. 97–142.

**О. С. Лагуненко, В. Е. Хан, О. О. Оди́нцов,
В. П. Ковальчук, Т. А. Кравчук, О. К. Калиновський,
В. О. Кашпур, О. А. Свирид, А. В. Ткач, С. В. Юрчук**

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

Радиоактивні аерозолі біля скупчення лавоподібних паливовмісних матеріалів у приміщенні 012/7 об'єкта «Укриття» у 2017–2018 рр.

Представлено радіонуклідний склад і об'ємні активності аерозолів та їхні випадіння у приміщенні 012/7 об'єкта «Укриття» у 2017–2018 рр. Проби відбирали в 0,5 м від південного краю скупчення лавоподібних паливовмісних матеріалів (ЛПВМ). Установлено, що сумарна концентрація аерозолів-носіїв ^{90}Sr + ^{90}Y і ^{137}Cs коливалася в діапазоні 0,1–6 Бк/м³. При цьому на частку ^{137}Cs припадало 33 %. Гамма-спектрометричні вимірювання та радіохімічні аналізи показали, що середні співвідношення радіонуклідів-продуктів аварії 4-го блока Чорнобильської атомної електро-

станції в аерозольних пробах і зразках ЛПВМ практично ідентичні. Це свідчить про те, що відбувається деструкція ЛПВМ і частковий перехід матеріалів в аерозольний стан.

Ключові слова: об'єкт «Укриття», лавоподібні паливовмісні матеріали, аерозолі, об'ємна активність, співвідношення радіонуклідів.

**A. S. Lagunenکو, V. E. Khan, O. O. Odintsov,
V. P. Kovalchuk, T. A. Kravchuk, A. K. Kalinovskiy,
V. O. Kashpur, O. A. Svirid, A.V. Tkach, S. V. Yurchuk**

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

Radioactive Aerosols in 2017–2018 near Lava-Like Fuel Contained Materials in Premise 012/7 of the Shelter Object

The data on radionuclide composition and volumetric activity of aerosols sampled in 2017–2018 in the room 012/7 of the Shelter object, into which the lava-like fuel-containing materials (LFCMs) flew after the accident, are presented. All the samples were taken from one point at around 50-cm distance from southern edge of LFCM cluster footing. Relative air humidity in the room 012/7, depending on a year season, was varying from 45 to 97 %. During a day, it sometimes was changing at 5–10 %. Differing from the humidity, air temperature in the room 012/7 was very stable. In cold year period, it was at the level of 12–13 °C, and in the warm period, it was fluctuating within the range of around 9 °C. No daily changes were observed. It was stated that concentration of beta-emitting aerosol-carriers ($^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$ and ^{137}Cs) was fluctuating within the range of 0.1–6 Bq/m³. Besides, ^{137}Cs share made 33 %. On top of that, in 2017 year this contribution made 37 %, and in 2018 it dropped to 27 %. As a comparison, during survey period of 2010–2011 years, ^{137}Cs contribution in the sum of beta-emitting nuclides of Chernobyl accident products made 13 % only. When comparing the ratios of $^{137}\text{Cs}/^{154}\text{Eu}$ и $^{137}\text{Cs}/^{241}\text{Am}$ in LFCM with radionuclide content of aerosol releases in the room 012/7 it follows that during the year of 2018 the aerosol

precipitation was enriched by ^{137}Cs relatively to the content of LFCM available in this place. Since the LFCM were depleted by radioactive cesium during lava formation process and their spreading along the rooms of Shelter Object, thus, a source of additional cesium were ^{137}Cs aerosol-carriers. These aerosols were, apparently, produced as result of surfaces degradation, on which condensation cesium's particle-carriers were earlier sorbed. Gamma-spectrometric measurements and radiochemical analyses have demonstrated that the content and ratio of radionuclides-products of ChNPP Unit 4 accident in aerosol samples and LFCM specimens were, practically, identical. It testifies that LFCM destruction and particular transfer of materials in aerosol state occurs.

Keywords: Shelter object, aerosols, volume activity, lava-like fuel-containing materials, radionuclide ratios.

References

1. Arutyunyan R. E., Bolshov L. A., Borovoi A. A., et al. (2010) *Yadernoe toplivo v obekte "Ukrytie"* [Nuclear fuel in the Shelter object]. Moscow: Nauka, 240 p. (in Russ.)
2. Ogorodnikov B. I., Khan V. E., Kovalchuk V. P. (2013) *Aerозоли – svideteli razrusheniya lavoobraznykh toplivo-soderzhashchikh materialov v obekte "Ukrytie"* [Aerosols as evidences of destruction in the Shelter object]. *Problemy bezpeky atomnykh electrostantsiy i Chornobylya* [Problems of nuclear power plants' safety and of Chornobyl], vol. 20, pp. 94–106. (in Russ.)
3. Borovoy A. A., Lagunenکو A. S., Pazukhin E. M. (2000) *Novye otsenki kolichestva yadernogo topliva, nakhodyashchegosya na nizhnikh otmetkakh obekta "Ukrytie"* [The new estimations of the nuclear fuel quantity allocated into the Shelter object low floor levels]. *Problemy Chornobylya* [Problems of Chornobyl], vol. 6, pp. 13–16. (in Russ.)
4. Klyuchnikov A. A., Krasnov V. A., Rudko V. M., Scherbin V. N. (2006) *"Ukryttya" object: 1986 – 2006* [The Shelter object]. Chornobyl: Institute for Safety Problems of NPP, NAS of Ukraine, 168 p. (in Russ.)
5. Pazukhin E. M. (1994) *Lava fuel containing materials of the Chernobyl NPP unit 4: topography, physical-chemical properties, scenario of formation.* *Radiohimiya* [Radiochemistry], vol. 36, no. 2, pp. 97–142. (in Russ.)

Надійшла 17.09.2018

Received 17.09.2018