

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

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

Радиоактивные аэрозоли около скопления лавообразных топливосодержащих материалов в помещении 210/7 объекта «Укрытие» Чернобыльской АЭС в 2017–2018 гг.

Ключевые слова:
объект «Укрытие»,
лавообразные
топливосодержащие материалы,
радиоактивный аэрозоль,
объемная активность,
соотношение радионуклидов,
активностный медианный
аэродинамический диаметр.

Представлены радионуклидный состав и объемные активности аэрозоля в 2017–2018 гг. в воздухе помещения 210/7 объекта «Укрытие» Чернобыльской АЭС. Пробы отбирали в непосредственной близости от южного края скопления лавообразных топливосодержащих материалов (ЛТСМ). Установлено, что суммарная объемная активность долгоживущих бета-излучающих нуклидов-продуктов Чернобыльской аварии в пробах воздуха колебалась в диапазоне 0,044–16 Бк/м³. При этом на долю ¹³⁷Cs приходилось 62 %. Гамма-спектрометрические измерения и радиохимические анализы показали, что отношения радионуклидов в пробах воздуха и выпадениях соответствуют составу ЛТСМ в помещении. Это свидетельствует о процессе деструкции ЛТСМ и частичном переходе материалов в аэрозольное состояние. Их носителями были аэрозоли с активностным медианным аэродинамическим диаметром около 6 мкм.

Введение

В первые дни после аварии на Чернобыльской АЭС в 1986 г. произошло формирование лавообразных топливосодержащих материалов (ЛТСМ), в которых находилось большое количество ядерного топлива и радиоактивных продуктов деления. Лава растекалась несколькими горизонтальными и вертикальными потоками и проникла, в частности, в нижние помещения разрушенного здания 4-го энергоблока. В составе «большого вертикального потока» она оказалась в подаппаратных помещениях (высотная отметка +9,00), в помещении 210/7 парораспределительного коридора (ПРК) (отметка +6,00), в помещениях 012/15 и 012/7 бассейна-барботера (+3,00 и 0,00 соответственно) и других местах [1].

Хотя с момента аварии прошло более 30 лет, сведений о состоянии ЛТСМ, а тем более их разрушении, крайне мало. Первые исследования относятся к марта 1990 г. [2, 3], когда с «языка» лавы у юго-западного входа в помещение 210/7 были взяты спиртовой мазок, мазок на беззольный фильтр и проба аэрозолей. В 1995 г. пробы аэрозоля отобрали на фильтр в помещении 305/2, откуда лава поступала в помещение 210/7, а затем в 012/15 [4]. Установлено, что около 70 % частиц были сферическими с диаметрами 1–3 мкм.

В 2008–2009 гг. проведены отборы проб аэрозолей в помещениях 304/3 и 305/2, где находятся крупные скопления ЛТСМ [5]. Затем внимание было сосредоточено на аэрозолях в помещении 304/3 [6]. В публикации [7] отмечено, что «за период 2009–2011 гг. максимум радиоактивности в распределении альфа-

© А. С. Лагуненко, В. Е. Хан, А. А. Одинцов, А. К. Калиновский, Т. А. Кравчук, В. П. Ковальчук, П. В. Сабенин, В. А. Карапур, А. А. Свирид, С. В. Юрчук, 2020

активных аэрозолей по аэродинамическим диаметрам (АД) сместился с интервала 2,0–10 мкм до 0,6–2 мкм». С осени 2011 г. исследования в помещении 304/3 были продолжены с использованием для подъема пыли с поверхности ЛТСМ воздушного потока, вырывавшегося из сопел со скоростью 41 м/с. Авторы резюмировали, что «относительная концентрация мелких (АД менее 0,8 мкм) частиц с альфа-активными радионуклидами росла с увеличением времени накопления пыли, а крупных частиц падала» [8].

К сожалению, в публикациях [5–9] не приведены удельные активности основных радионуклидов (^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{154}Eu , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am) как в ЛТСМ, вблизи которых производился отбор проб, так и в самих пробах аэрозолей. Если бы соотношения радионуклидов в аэрозолях оказались такими же, как в ЛТСМ, то это бы свидетельствовало о деструкции последних.

Исследования, проведенные в 2010–2014 гг. в подреакторных помещениях объекта «Укрытие» [10–12], где локализованы скопления ЛТСМ, показали, что в помещениях 012/15 и 210/7 объемная активность, радионуклидный состав и дисперсность аэрозолей иные, чем в помещении 012/7. При этом выявленная идентичность радионуклидных составов аэрозоля и ЛТСМ в 012/7 свидетельствует о разрушении лавы и спонтанном переходе продуктов деструкции в аэрозольное состояние. В то же время лавы в помещениях 012/15 и 210/7 если и разрушаются, то переходят в аэрозольное состояние в меньшем количестве, чем в помещении 012/7.

Таким образом, имеющиеся сведения о состоянии поверхностей ЛТСМ скучные и неоднозначные. Требуются систематические исследования воздушной среды, в частности радиоактивных аэрозолей, непосредственно в местах размещения ЛТСМ при фактических температурных, влажностных, воздухообменных, радиационных и других условиях, существующих в объекте «Укрытие».

29 ноября 2016 г. «Арка» нового безопасного конфайнмента (НБК) была установлена в проектное положение над объектом «Укрытие». Создание НБК привело к изменению температурно-влажностного режима внутри объекта, в результате чего происходит постепенное высыхание водных скоплений и понижение влажности воздуха в его помещениях. Это способствует вторичному пылеподъему, в том числе с поверхностей ЛТСМ. Вместе с тем отсутствует однозначное мнение о том, как изменение температурно-влажностного режима влияет на скорость деграда-

ции ЛТСМ. Поэтому систематические исследования воздушной среды в помещениях, где локализованы ЛТСМ, при фактических температурных, влажностных, воздухообменных, радиационных и других условиях, существующих в объекте «Укрытие», позволяют получить информацию о возможных негативных тенденциях поведения поверхностей лав.

Целью настоящей работы стало наблюдение динамики радиоаэрозольной ситуации в помещении 210/7 объекта «Укрытие» в условиях под «Аркой» НБК в 2017–2018 гг.

Описание помещения 210/7 и находящегося там скопления ЛТСМ

Помещение 210/7 расположено на высотной отметке +6,00 и входит в систему ПРК. ЛТСМ попали в помещение через 4-й паросбросной клапан из юго-западной части помещения 305/2 (рис. 1). Через остальные три клапана в помещение поступил «свежий» бетон, залитый при строительстве объекта «Укрытие» в 1986 г.



Рис. 1. Лавообразные топливосодержащие массы в помещении 210/7

Открыто лежащие ЛТСМ расположены в южной части помещения между рядами И₋₂₅₀₀ — К. Толщина их слоя от ряда К до ряда И⁺¹⁹⁰⁰ (северные торцы конденсаторных батарей) достигает 0,5 м и южнее (И₋₂₅₀₀) между боковыми стенками конденсаторных батарей понижается примерно до уровня пола.

Общая площадь горизонтальной проекции (открытые и закрытые поверхности) скопления ЛТСМ

в помещении 210/7, по экспертной оценке, составляет $82 \pm 17 \text{ м}^2$. При этом на открыто лежащие ЛТСМ приходится около 20 %.

Считаем необходимым отметить, что в южной части помещения до 2018 г. присутствовало скопление воды глубиной 10–15 см, которое частично омывало подошву южного склона лавы.

Методы и средства отбора проб и измерений

Пробы аэрозоля отбирались с помощью воздухоотборника RadeCo H810 в течение суток со скоростью около 100 $\text{дм}^3/\text{мин}$. В качестве фильтрующего материала использовали пакеты, состоящие из фильтров АФА РСП-20 и АФА РМП-20 площадью 20 см^2 . Пакет устанавливали в фильтровальную воронку, которую закрепляли на конце трубы с внутренним диаметром 2 см и длиной около 2,5 м. Трубу с воронкой вводили через дверной проем между помещениями 208/12 и 210/7 в зону южной части скопления ЛТСМ (рис. 2), т. е. условия пробоотбора были такие же, как и в 2013 г. [12].

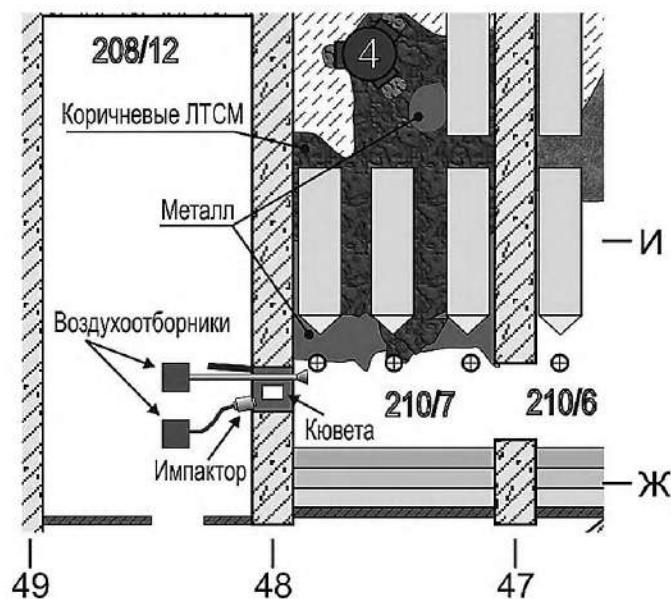


Рис. 2. Размещение средств отбора проб аэрозоля из помещения 210/7

Для определения дисперсного состава радиоактивного аэрозоля использовался 5-каскадный импактор ИБФ-5К (см. рис. 2). Это устройство осуществляет сортировку аэрозольных частиц по пяти диапазонам АД, $\mu\text{мкм}$: <0,5; 0,5–1,2; 1,2–3,7; 3,7–8,5; 8,5–17,0. В качестве пятой ступени (<0,5 $\mu\text{мкм}$) используется тонкодисперсный фильтр, что позволяет более полно улавливать аэрозоли субмикронного размера. Импактор

размещали на входе в помещение 210/7 на высоте 1 м от пола в координатах Ж⁺³⁰⁰⁰/45⁺¹⁰⁰⁰.

Для определения плотности выпадения радионуклидов на подстилающую поверхность использовали пластиковую кювету, на дно которой укладывали фильтровальную бумагу. Кювету устанавливали в дверном проеме между помещениями 208/12 и 210/7 (см. рис. 2).

Измерение бета-активности проб выполняли на приборе РКБ4-1ем через 4–5 сут, когда полностью распадались дочерние продукты радона и торона. В результате определяли суммарную активность долгоживущих бета-излучающих нуклидов ($\Sigma\beta$)-продуктов Чернобыльской аварии в отобранных пробах.

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 энергию 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.

В пробах аэрозоля с наибольшей гамма-активностью после радиохимического выделения определяли активность ^{90}Sr бета-радиометрическими измерениями, а также активности ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am , изотопов урана — альфа-спектрометрическими измерениями.

Непрерывная фиксация значений температуры и относительной влажности в помещении 210/7 осуществлялась с помощью регистратора Elitech RC-4HA/C и гигротермометра TH-mini с выносным датчиком температуры-влажности. Кроме того, скорость и направления воздушных потоков периодически измеряли в дверном проеме между помещениями 210/7 и 208/12. Использовали термоанемометр ТАМ-1 с диапазоном измерения 0,1–2 м/с.

Результаты и обсуждение

Состояние воздушной среды. На рис. 3 показаны графики температуры и относительной влажности воздуха в помещении 210/7, построенные по среднесуточным значениям в период отбора проб аэрозолей. Как видно на рисунке, в марте и апреле 2017 г. температура в помещении была 10–11 °С. Затем воздух стал постепенно прогреваться. Максимальная температура 16–16,5 °С была зарегистрирована в сентябре. В конце сентября — начале октября температу-

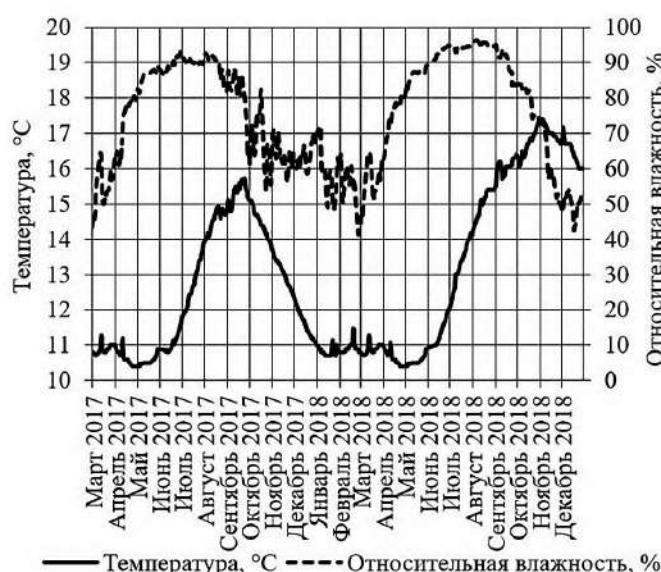


Рис. 3. Температура и относительная влажность в помещении 210/7 при отборе проб аэрозолей в 2017–2018 гг.

ра стала понижаться. Различие между температурами в теплый и холодный периоды составило около 6 °С.

В 2018 г. наиболее низкая температура 10,5 °С наблюдалась в апреле. Затем воздух стал постепенно прогреваться. Максимальная температура 17–17,5 °С была зарегистрирована в октябре. На этом уровне она держалась почти месяц. В конце октября — начале ноября температура стала понижаться. Различие между температурами в теплый и холодный периоды составило около 7 °С. Наблюдаемая динамика температуры в помещении сдвинута примерно на два месяца относительно динамики температуры внешней среды, что вызвано инерционным влиянием огромной массы бетонных и металлических сооружений объекта «Укрытие» и расположением помещения 210/7 на высотной отметке +6,00, т. е. практически в центре реакторного блока, где воздухообмен с внешней средой незначительный.

Относительная влажность воздуха в помещении 210/7 в периоды пробоотборов варьировалась от 40 до 95 %. Для сравнения, в период наблюдений в 2013 г. относительная влажность воздуха в помещении 210/7 варьировалась от 40 до 85 % [12]. Наиболее низкое значение относительной влажности зафиксировано в феврале и декабре 2018 г. — 40 %. Высокая влажность (свыше 90 %) зафиксирована в июне — сентябре 2017 г. и в июне — сентябре 2018 г.

Следует отметить, что воздухообмен между помещениями 210/7 и 208/12 был незначительным.

Об этом свидетельствуют измерения скоростей (термоанемометром) и направлений потоков (с помощью «колдунчиков»). В большинстве случаев движения воздуха не было, а максимальные скорости не превышали 0,3 м/с.

Объемная активность аэрозоля

За период апрель 2017 г. — декабрь 2018 г. в помещении 210/7 было отобрано 19 проб аэрозоля. В табл. 1 представлены результаты бета-радиометрических и гамма-спектрометрических измерений проб. За весь период наблюдения величина $\Sigma\beta$ варьировала в диапазоне 0,044–16 Бк/м³, ¹³⁷Cs — 0,033–9,5 Бк/м³. Таким образом, минимальные и максимальные значения объемной активности как ¹³⁷Cs, так и $\Sigma\beta$ различались на три порядка величины, что уже наблюдалось ранее [12]. Объемная активность ²⁴¹Am не превышала 0,13 Бк/м³, а ¹⁵⁴Eu — 0,014 Бк/м³.

Таблица 1. Объемная активность нуклидов аэрозоля из помещения 210/7 объекта «Укрытие» в 2017–2018 гг. (на дату отбора)

Дата отбора	Объемная активность, Бк/м ³				¹³⁷ Cs/ $\Sigma\beta$
	¹³⁷ Cs	¹⁵⁴ Eu	²⁴¹ Am	$\Sigma\beta$	
2017 г.					
04–05.04	8,8	$1,4 \cdot 10^{-2}$	0,13	16	0,56
17–18.05	4,6	—	$3,3 \cdot 10^{-2}$	6,4	0,72
19–20.06	0,29	—	—	0,73	0,40
25–26.07	1,7	—	$2,5 \cdot 10^{-2}$	3,0	0,56
29–30.08	7,9	$4,8 \cdot 10^{-2}$	$7,1 \cdot 10^{-2}$	12	0,66
13–14.09	1,0	—	$9,0 \cdot 10^{-3}$	1,5	0,68
26–27.09	0,69	—	—	1,0	0,69
26–27.10	9,5	—	$4,3 \cdot 10^{-2}$	12	0,80
16–17.11	2,5	—	$2,8 \cdot 10^{-2}$	4,0	0,63
2018 г.					
22–23.01	$4,4 \cdot 10^{-2}$	—	—	$8,4 \cdot 10^{-2}$	0,52
20–21.02	0,23	—	—	0,68	0,63
14–15.03	3,1	$1,5 \cdot 10^{-2}$	0,10	6,0	0,52
12–13.04	0,39	—	$2,8 \cdot 10^{-2}$	0,82	0,48
22–24.05	$7,9 \cdot 10^{-2}$	—	—	0,13	0,61
11–12.06	$4,0 \cdot 10^{-2}$	—	—	$9,0 \cdot 10^{-2}$	0,44
10–11.07	$4,4 \cdot 10^{-2}$	—	—	$6,5 \cdot 10^{-2}$	0,68
15–16.08	$3,3 \cdot 10^{-2}$	—	—	$4,4 \cdot 10^{-2}$	0,75
04–05.09	0,27	—	—	0,32	0,84
04–09.10	0,11	—	—	—	—
03–05.12	0,94	—	$1,5 \cdot 10^{-2}$	1,6	0,59

Усредненные значения объемных активностей ^{137}Cs и $\Sigma\beta$ за весь период наблюдения составили 2,1 и 3,6 Бк/м³ соответственно, что в три раза ниже по сравнению с результатами наблюдений в 2013 г.

В 2017–2018 гг. вклад ^{137}Cs в $\Sigma\beta$ составлял 62%. Для сравнения, в 2013 г. усредненное значение вклада ^{137}Cs в $\Sigma\beta$ составило 46% [12].

Четыре пробы аэрозоля, отобранные в 2017–2018 гг., после гамма-спектрометрических измерений были проанализированы радиохимическим методом. Полученные при этом данные (с привлечением данных, приведенных в табл. 1), позволили рассчитать отношения наиболее значимых по активности радионуклидов в четырех отобранных пробах (табл. 2). Погрешность расчетных значений не превышает $\pm 35\%$.

Для сопоставления радионуклидных составов аэрозоля и скопления ЛТСМ в помещении 210/7 в табл. 3 приведены отношения активностей радионуклидов в ЛТСМ по состоянию на середину 2017 г. и середину 2018 г. Отношения получены на основании результатов анализов 24 проб лавы, полученных из базы данных отделения ядерной и радиационной безопасности Института проблем безопасности АЭС НАН Украины. Погрешность приведенных расчетных значений не превышает $\pm 37\%$.

Анализ данных, приведенных в табл. 1–3, показывает, что величины отношений активностей труднолетучих радионуклидов в аэрозоле соответствуют аналогичным отношениям в ЛТСМ. Это позволяет сделать вывод о том, что вследствие эрозии поверхности ЛТСМ в помещении 210/7 происходит генерация радиоактивной пыли, которая попадает в воздушную среду помещения. Этот механизм подтверждается полученными ранее результатами определения дисперсности радиоаэрозольных частиц [4]. Некоторые

расхождения величин связаны как с неопределенностью измерения, так и неоднородностью состава ЛТСМ в помещении 210/7, на что уже обращалось внимание в публикациях [10, 13].

Вместе с тем анализ отношений $^{137}\text{Cs}/^{154}\text{Eu}$, $^{137}\text{Cs}/\Sigma\beta$ и $^{137}\text{Cs}/^{241}\text{Am}$ в ЛТСМ и в аэрозоле помещения 210/7 показывает, что аэрозоль на протяжении 2017–2018 гг. был обогащен ^{137}Cs относительно состава находящихся здесь ЛТСМ, что наблюдалось и ранее [12]. Так как ЛТСМ в процессе образования лавы и ее растекания по помещениям объекта «Укрытие» были обеднены радиоцезием, то его дополнительными источниками в воздухе помещения являются аэрозольные частицы-носители ^{137}Cs . Такие частицы, вероятно, образуются в результате деструкции поверхностей, на которые ранее сорбировались частицы-носители цезия конденсационного происхождения [14].

Дисперсность радиоактивных аэрозолей

В табл. 4 приведен результат определения дисперсного состава аэрозоля из помещения 210/7 измерений, выполненного с помощью импактора ИБФ-5К. Как следует из таблицы, распределение частиц радиоактивного аэрозоля по размерам частиц характеризуется бимодальностью. Так, носителями ^{137}Cs были более крупные частицы по сравнению с носителями ^{241}Am . Частицы, содержащие ^{241}Am , на основании представленных выше результатов радиохимических исследований следует рассматривать как продукты деструкции ЛТСМ, находящихся в помещении 210/7.

Наличие избыточного, относительно его содержания в лаве, ^{137}Cs на всех каскадах импактора (см. табл. 3) объясняется присутствием его индивидуальных аэрозольных носителей в воздухе помещения.

Таблица 2. Соотношения активностей радионуклидов в пробах аэрозоля из помещения 210/7 (на дату отбора)

Дата отбора	$^{137}\text{Cs}/^{241}\text{Am}$	$^{137}\text{Cs}/^{154}\text{Eu}$	$^{241}\text{Am}/^{238}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}/^{154}\text{Eu}$	$^{90}\text{Sr}/^{241}\text{Am}$	$^{90}\text{Sr}/^{154}\text{Eu}$	$^{137}\text{Cs}/\Sigma$
04–05.04.17	68	630	3,9	1,7	9,3	25	230	0,56
14–15.03.18	31	2070	5,2	2,4	7,3	26	170	0,52
12–13.04.18	14	-	5,4	2,1	-	18	-	0,48
03–05.12.18	64	-	4,7	1,8	-	19	-	0,59

Таблица 3. Соотношения активностей радионуклидов в ЛТСМ из помещения 210/7

Дата отбора	$^{137}\text{Cs}/^{241}\text{Am}$	$^{137}\text{Cs}/^{154}\text{Eu}$	$^{241}\text{Am}/^{238}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}/^{154}\text{Eu}$	$^{90}\text{Sr}/^{241}\text{Am}$	$^{90}\text{Sr}/^{154}\text{Eu}$	$^{137}\text{Cs}/\Sigma$
01.07.2017	9,3	82	3,5	1,5	8,6	18	180	0,21
01.07.2018	9,1	87	3,5	1,5	9,0	16	180	0,20

Как уже было сказано выше, такой аэрозоль, вероятно, образуется в результате деструкции поверхностей, на которые ранее сорбировались частицы-носители конденсационного цезия.

Сопоставление представленных результатов исследований с данными, полученными в 2013 г. [12], показывает, что дисперсный состав носителей радионуклидов-продуктов Чернобыльской аварии не претерпел существенных изменений.

Плотность выпадения радионуклидов в помещении 210/7

За период март 2017 г. — декабрь 2018 г. был выполнен отбор 12 проб выпадений радионуклидов в помещении 210/7. В табл. 5 представлены результаты бета-радиометрических и гамма-спектрометрических измерений проб.

Как видно из данных табл. 5, за весь период наблюдений величина плотности выпадения $\Sigma\beta$ в-

арьорала в диапазоне 200–880 Бк/(м² · сут), ¹³⁷Cs — 60–380 Бк/(м² · сут), ²⁴¹Am — 2,6–9,4 Бк/(м² · сут) и ¹⁵⁴Eu — 0,24–0,93 Бк/(м² · сут). Таким образом, минимальные и максимальные значения различались менее чем на порядок величины. При этом максимальная плотность выпадения радионуклидов наблюдалась с 4 октября по 1 ноября 2017 г. Необходимо отметить, что экспонирование планшета с 09.10.14 по 22.03.17 пришлось в основном на период до надвижки «Арки» НБК.

Шесть наиболее гамма-активных проб выпадений, отобранных в 2017–2018 гг., были проанализированы радиохимическим методом. По данным радиохимического анализа, а также данным, приведенным в табл. 5, рассчитаны отношения наиболее значимых по активности радионуклидов (табл. 6). Погрешность расчетных значений не превышает $\pm 35\%$.

Сопоставление данных, приведенных в табл. 6 и 3, показывает, что до середины 2018 г. отношения труднолетучих радионуклидов в выпадениях соот-

Таблица 4. Дисперсный состав радиоактивного аэрозоля-носителя ¹³⁷Cs и ²⁴¹Am в помещении 210/7

Период отбора	Нуклид	Объемная активность в диапазонах АД, Бк/м ³					Суммарная объемная активность, Бк/м ³	АМАД*, мкм	$\Sigma\beta$, Бк/м ³
		17–8,5 мкм	8,5–3,7 мкм	3,7–1,2 мкм	1,2–0,5 мкм	<0,5 мкм			
26.09–03.10. 2018	¹³⁷ Cs	0,19	$8,5 \cdot 10^{-2}$	$6,2 \cdot 10^{-2}$	$4,1 \cdot 10^{-2}$	$3,3 \cdot 10^{-2}$	0,41	7,3	0,65
	²⁴¹ Am	$2,2 \cdot 10^{-3}$	$1,3 \cdot 10^{-3}$	$7,7 \cdot 10^{-4}$	$7,5 \cdot 10^{-4}$	$6,1 \cdot 10^{-4}$	$5,6 \cdot 10^{-3}$	5,7	

* Активностный медианный аэродинамический диаметр.

Таблица 5. Динамика плотности выпадения радионуклидов в помещении 210/7
(на дату снятия планшета)

Дата установки-снятия планшета	Экспозиция, сут	Плотность выпадения радионуклидов, Бк/(м ² · сут)				¹³⁷ Cs/Σ
		¹³⁷ Cs	¹⁵⁴ Eu	²⁴¹ Am	$\Sigma\beta$	
09.10.14–22.03.17	895	210	0,29	2,8	360	0,58
22.03–17.05.17	56	130	—	2,8	280	0,46
17.05–06.07.17	50	320	—	7,0	700	0,46
06.07–03.08.17	28	220	—	7,0	590	0,37
03.08–06.09.17	34	210	—	2,9	370	0,57
06.09–04.10.17	28	280	—	6,1	610	0,46
04.10–01.11.17	28	380	0,85	9,4	880	0,43
01.11.17–06.02.18	97	350	0,93	7,9	770	0,45
06.02–15.05.18	98	230	0,71	7,6	630	0,37
15.05–04.07.18	50	60	0,24	2,6	200	0,30
04.07–26.09.18	84	150	0,28	2,6	280	0,54
26.09–12.12.18	77	300	0,58	6,2	830	0,36

**Таблица 6. Соотношения активностей радионуклидов выпадений в помещении 210/7
(на дату снятия планшета)**

Дата установки снятия планшета	$^{137}\text{Cs}/^{241}\text{Am}$	$^{137}\text{Cs}/^{154}\text{Eu}$	$^{241}\text{Am}/^{238}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}/^{154}\text{Eu}$	$^{90}\text{Sr}/^{241}\text{Am}$	$^{90}\text{Sr}/^{154}\text{Eu}$	$^{137}\text{Cs}/\Sigma\beta$
09.10.14–22.03.17	77	730	4,4	1,7	9,5	23	220	0,59
17.05–06.07.17	46	–	5,8	2,4	–	20		0,46
06.02–15.05.18	31	330	5,2	2,1	11	16	170	0,37
15.05–04.07.18	23	250	6,4	2,5	11	24	260	0,31
04.07–26.09.18	56	510	2,9	1,2	9,2	35	370	0,54
26.09–12.12.18	49	530	8,5	2,1	11	42	450	0,37

ветствовали составу лавы в помещении 210/7. При этом также, как и аэрозоль в помещении, выпадения были обогащены радиоцезием относительно состава ЛТСМ, что наблюдалось и ранее [12].

Начиная с середины 2018 г. обращает на себя внимание повышение активности ^{90}Sr по отношению к активностям таких нуклидов, как ^{241}Am и ^{154}Eu . Интерпретация такого повышения затруднительна ввиду малого количества данных. В качестве рабочей гипотезы предполагается, что повышение вызвано генерацией пыли поверхностями донных отложений, образовавшихся в результате высыхания радиоактивно загрязненных водных скоплений в помещении 210/7. Исследования [15] показали, что величина отношения активностей $^{90}\text{Sr}/^{241}\text{Am}$ в радиоактивно загрязненных водах из помещений ПРК в 2017 г. составляла около 570, что более чем на порядок величины больше аналогичного отношения в ЛТСМ помещения 210/7 (см. табл. 3).

Заключение

Исследования, проведенные в 2017–2018 гг. в подреакторном помещении 210/7 объекта «Укрытие», показали, что отношения активностей труднолетучих радионуклидов в пробах воздуха и в скоплении ЛТСМ в помещении имеют совпадающие значения, что свидетельствует о продолжающемся разрушении лавы и спонтанном переходе продуктов деструкции в аэрозольное состояние. Аэрозоль в помещении, как наблюдалось и ранее, обогащен ^{137}Cs относительно состава находящихся здесь ЛТСМ. Усредненные за весь период наблюдения значения объемных активностей ^{137}Cs и $\Sigma\beta$ почти в три раза ниже по сравнению с результатами наблюдений в 2013 г, при этом вклад ^{137}Cs в $\Sigma\beta$ возрос более чем на 30 % по сравнению с результатами предыдущих наблюдений.

Начиная со второй половины 2018 г. в радионуклидных выпадениях в помещении 210/7 отмечено повышение активности ^{90}Sr по отношению к активностям нуклидов ^{241}Am и ^{154}Eu .

Подводя итог наблюдениям 2017–2018 гг. за загрязнением воздуха в подреакторном помещении 210/7, можно констатировать следующее. После установки «Арки» в проектное положение и герметизации НБК объемная активность нуклидов и отношения их активностей в воздухе помещения изменились по сравнению с результатами наблюдений в 2013 г. больше, чем на величины, вызванные естественным распадом радионуклидов. Следует продолжить работы по исследованию поведения радиоактивного аэрозоля в указанном помещении в дальнейшем.

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. Оценка скорости эрозии топливосодержащих масс внутри «Саркофага» и характеристики образующихся частиц / С. А. Богатов, А. А. Боровой, А. Н. Киселев и др. — Москва, 1991. — 21 с. — (Препринт / Ин-т атомной энергии им. И. В. Курчатова; 5434/3).
3. Динамика поведения топливных масс в объекте «Укрытие» / С. А. Богатов, А. А. Боровой, А. С. Евстратенко, А. Н. Херувимов. — Киев, 1992. — 20 с. — (Препринт / АН УССР. Ин-т кибернетики им. В. М. Глушкова; 92–29).
4. Кузьмина И. Е. Частицы дисперсной фазы аэрозолей объекта «Укрытие» / И. Е. Кузьмина, В. В. Токаревский // Проблеми Чорнобильської зони відчуження. — 1996. — Вип. 4. — С. 141–150.
5. Исследование характеристик аэрозолей в содержащих топливо помещениях объекта «Укрытие» / В. П. Ба-

- довский, А. А. Ключников, Т. А. Кравчук и др. // Проблеми безпеки атомних електростанцій і Чорнобиля. — 2009. — Вип. 12. — С. 103–112.
6. Оценка состояния поверхности ЛТСМ в реальных условиях объекта «Укрытие» / В. П. Бадовский, А. А. Ключников, А. Э. Меленевский и др. // Междунар. конф. «Двадцать пять лет Чернобыльской катастрофы. Безопасность будущего» (Киев, 20–22 апреля 2011 г.). Сб. докл. Выводы и рекомендации. Ч. 2. — Киев, 2011. — С. 46–50.
7. Меленевський О. Е. Дослідження пилогенеруючої здатності ПВМ об'єкта «Укриття» / О. Е. Меленевський, І. О. Ушаков, В. П. Бадовський // Проблеми безпеки атомних електростанцій і Чорнобиля. — 2012. — Вип. 18. — С. 119–120.
8. Генерация топливосодержащей пыли лавообразными материалами объекта «Укрытие» / В. П. Бадовский, А. А. Ключников, А. Э. Меленевский и др. // Там же. — 2013. — Вип. 20. — С. 68–76.
9. Генерация радиоактивной пыли лавообразными топливосодержащими материалами объекта «Укрытие» Чернобыльской АЭС / В. П. Бадовский, А. Э. Меленевский, Ю. В. Морозов и др. // Радиохимия. — 2014. — Т. 56, вып. 3. — С. 264–270.
10. Огородников Б. И. Аэрозоли — свидетели разрушения лавообразных топливосодержащих материалов в объекте «Укрытие» / Б. И. Огородников, В. Е. Хан, В. П. Ковальчук // Проблеми безпеки атомних електростанцій і Чорнобиля. — 2013. — Вип. 20. — С. 94–106.
11. Огородников Б. И. Характеристики радиоактивных аэрозолей близ скопления ЛТСМ в помещении 012/15 объекта «Укрытие» / Б. И. Огородников, В. Е. Хан, В. П. Ковальчук // Там же. — Вип. 25. — С. 125–138.
12. Состав и концентрации радиоактивных аэрозолей в 2013 г. около скопления ЛТСМ в помещении 210/7 объекта «Укрытие» / Б. И. Огородников, В. Е. Хан, Ковальчук В. П. и др. // Там же. — 2015. — Вип. 24. — С. 70–84.
13. 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.
14. Огородников Б. И. Радиоактивные аэрозоли объекта «Укрытие»: 1986–2006 гг. / Б. И. Огородников, Э. М. Пазухин, А. А. Ключников. — Чернобыль : ИПБ АЭС НАН Украины. — 2008. — 456 с.
15. Одинцов А. А. Радиоактивно загрязненная вода в объекте «Укрытие» после надвижки «Арки» нового безопасного конфайнмента в проектное положение / А. А. Одінцов, В. Е. Хан // Проблеми безпеки атомних електростанцій і Чорнобиля. — 2018 — Вип. 30. — С. 67–77.
-
- О. С. Лагуненко, В. Є. Хан, О. О. Одінцов, О. К. Калиновський, Т. А. Кравчук, В. П. Ковальчук, П. В. Сабенін, В. О. Кащур, О. А. Свирид, С. В. Юрчук**
- Інститут проблем безпеки АЕС НАН України, вул. Кірова, 36а, Чорнобиль, 07270, Україна*
- Радіоактивні аерозолі біля скупчення лавоподібних паливовмісних матеріалів у приміщенні 210/7 об'єкта «Укриття» у 2017–2018 рр.**
- Представлено радіонуклідний склад і об'ємні активності аерозолю в повітрі приміщення 210/7 об'єкта «Укриття» Чорнобильської АЕС у 2017–2018 рр. Проби відбирали в безпосередній близькості від південного краю скупчення лавоподібних паливовмісних матеріалів (ЛПВМ). Установлено, що сумарна об'ємна активність довгоживучих бета-випромінюючих нуклідів-продуктів Чорнобильської аварії у пробах повітря змінювалася в діапазоні 0,044–16 Бк/м³. При цьому на частку ¹³⁷Cs припадало 62 %. Гамма-спектрометричні вимірювання і радіохімічні аналізи показали, що середні співвідношення важкоізотопних радіонуклідів в аерозольних пробах і випаданнях радіонуклідів відповідають складу ЛПВМ у приміщенні. Це свідчить про те, що відбувається деструкція ЛПВМ і частковий перехід матеріалів в аерозольний стан. Їхніми носіями були частинки з медіанним за активністю аеродинамічним діаметром близько 6 мкм.
- Ключові слова:** об'єкт «Укриття», лавоподібні паливовмісні матеріали, радіоактивні аерозолі, об'ємна активність, співвідношення радіонуклідів, медіанний за активністю аеродинамічний діаметр.
-
- O. S. Lagunenko, V. E. Khan, O. O. Odintsov, O. K. Kalinovskiy, T. A. Kravchuk, V. P. Kovalchuk, P. V. Sabenin, V. O. Kashpur, O. A. Svirid, S. V. Yurchuk**
- Institute for Safety Problems of Nuclear Power Plants, NAS of Ukraine, 36a, Kirova st., Chornobyl, 07270, Ukraine*

Radioactive Aerosols near Lava-Like Fuel Containing Materials in Room 210/7 of the Chornobyl NPP Shelter in 2017–2018

Data on the radionuclide composition, volume activity and dispersity of radioactive aerosols taken in 2017–2018 in room 210/7 of the Chornobyl NPP Shelter, into which the lava-like fuel containing materials (LFCMs) flew after the accident, are presented. Relative air humidity in the room 210/7, depending on a year season, was varying from 40 to 95 %. High humidity (about 90–95 °C) was registered in summer period, when mean daily temperature in the environmental air reached 24–27 °C. In majority of cases, relatively small value of air humidity corresponded to high concentration of radioactive aerosols. High humidity values coincided in time with low values of radioactive aerosol concentrations. Mean daily temperature of room 210/7 air was relatively stable during all survey period. After cold period of year came, it dropped from 17 to 10 °C, and in warm period, when the Shelter was heated, it grew up to 16–17 °C. Such a mode was provided by a huge mass of concrete and metal structures of the Shelter object, and due to the fact that the room 210/7 is located at height elevation +6.00, where air exchange is negligible. It was stated that concentration of beta-radiating aerosol-carriers ($^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$ and ^{137}Cs) was fluctuating with the range 0.044–16 Bq/m³. Besides, ^{137}Cs share made 62 %. Gamma-spectrometry measurements and radiochemical analyses have demonstrated that average ratios of semi-volatile radionuclide-products of Chornobyl NPP Unit 4 accident in aerosol samples comply with LFCM content in rooms 210/7 of the Shelter. It testifies that LFCM destruction and particular transfer of materials in aerosol state occurs. Their carriers were the aerosols with activity median aerodynamic diameter (AMAD) larger than 5 μm . During 2017–2018, aerosols in room 210/7 were enriched by ^{137}Cs relatively to LFCM located in this place, as it was observed earlier. The sources of additional cesium are ^{137}Cs aerosol-carriers producible, apparently, as result of destruction of surfaces, on which, particles-carriers of condensation cesium were sorbed earlier. Their carriers were the aerosols with AMAD 7 μm .

Keywords: Chornobyl accident, Shelter, radioactive aerosols, volume activity, lava-like fuel-containing materials, radionuclide ratios, aerosol dispersity.

References

1. Arutyunyan R. E., Bolshov L. A., Borovoi A. A., Velikhov Ye. P., Klyuchnikov A. A. (2010). *Yadernoye toplivo v obyekte "Ukrytiye"* [Nuclear fuel in the Shelter object]. Moscow: Nauka, 240 p. (in Russ.)
2. Bogatov S. A., Borovoy A. A., Kiselev A. N., Obukhova L. A., Checherov K. P. (1991). *Otsenka skorosti erozii toplivosoderzhashchikh mass vntri "Sarkofaga" i kharakteristiki obrazuyushchikhsya chastits* [Estimation of the erosion rate of fuel-containing masses inside the Shelter object and the characteristics of the particles formed]. Moscow: I. V. Kurchatov Institute of Atomic Energy, 21 p. (in Russ.)
3. Bogatov S. A., Borovoy A. A., Yevstratenko A. S., Kheruvimov A. N. (1992). *Dinamika povedeniya toplivnykh mass v obyekte "Ukrytiye"* [Dynamics of fuel mass behavior in the Shelter object]. Kyiv: V. M. Glushkov Institute of cybernetics, NAS of Ukraine, 20 p. (in Russ.)
4. Kuzmina I. Ye., Tokarevskiy V. V. (1996). *Chastitsy dispersnoy fazy aerozoley obyekta "Ukrytiye"* [Particles of the dispersed phase of aerosols of the Shelter object] *Problemy Chornobyl'skoi zony vidchuzhennya* [Problems of Chernobyl exclusion zone], vol. 4, pp. 141–150. (in Russ.)
5. Badovskiy V. P., Klyuchnikov A. A., Kravchuk T. A., Melenevskiy A. E., Shcherbin V. N. (2009). *Issledovaniye kharakteristik aerozoley v soderzhashchikh toplivo pomeshcheniyakh obyekta "Ukrytya"* [Aerosol characteristic researching in basic fuel-containing premises at object "Ukrytya"] *Problemy bezpeky atomnykh elektrostantsiy i Chornobylia* [Problems of Nuclear Power Plants' Safety and of Chornobyl], vol. 12, pp. 103–112. (in Russ.)
6. Melenevskiy A. E., Badovskiy V. P., Klyuchnikov A. A., Morozov Yu. V., Ushakov I. A., Shcherbin V. N. (2011). *Otsenka sostoyaniya poverhnosti LTSM v realnykh usloviyakh obyekta "Ukrytiye"* [Assessment of the surface condition of the LFCM in the real conditions of the Shelter]. Proceedings of the *Int. scient. conf. "Twenty-five Years after Chernobyl Accident. Safety for the Future"* (April 20–22, 2011, Kyiv, Ukraine), pp. 46–50. (in Russ.)
7. Melenevskiy A. E., Ushakov Y. A., Badovskyy V. P. (2012). *Doslidzhennya pyloheneruyuchoi zdatnosti PVM obyekta "Ukrytya"* [Investigation of the dust-generating capacity of the Shelter Object FCM]. *Problemy bezpeky atomnykh elektrostantsiy i Chornobylia*. [Problems of Nuclear Power Plants' Safety and of Chornobyl], vol. 18, pp. 119–120. (in Ukr.)
8. Badovskiy V. P., Klyuchnikov A. A., Melenevskiy, A. E. Morozov YU. V., Ushakov I. A., Shcherbin V. N. (2013). *Generatsiya toplivosoderzhashchey pyli lavoobraznymi materialami obyekta "Ukrytiye"* [Fuel containing dust generation by Shelter object lava materials]. *Problemy bezpeky atomnykh elektrostantsiy i Chornobylia*. [Problems of nuclear power plants and of Chornobyl], vol. 20, pp. 68–76. (in Russ.)

9. Badovskiy V. P., Melenevskiy A. E., Morozov Yu. V., Ushakov I. A., Shcherbin V. N. (2014). Generatsiya radioaktivnoy pyli lavoobraznymi toplivosoderzhashchimi materialami obyekta "Ukrytiye" Chernobyl'skoy AES [Generation of radioactive dust by lava-like fuel-containing materials at the Shelter Object of Chernobyl NPP]. *Radiokhimiya* [Radiochemistry], vol. 56, no. 3, pp. 264–270. (in Russ.)
10. Ogorodnikov B. I., Khan V. Ye., Kovalchuk V. P. (2013). Aerozoli — svideteli razrusheniya lavoobraznykh toplivosoderzhashchikh materialov v obyekte "Ukrytiye" [Aerosols as evidences of destruction in the Shelter object] *Problemy bezpeky atomnykh elektrostantsiy i Chornobyl'ya* [Problems of Nuclear Power Plants' Safety and of Chernobyl], vol. 20, pp. 94–106. (in Russ.)
11. Ogorodnikov B. I., Khan V. Ye., Kovalchuk V. P. (2015). Kharakteristiki radioaktivnykh aerozoley bliz skopleniya LTSM v pomeshchenii 012/15 obyekta "Ukrytiye" [Characteristics of radioactive aerosols in 2014 near lavaliked fuel contained materials in premise 012/15 of the Shelter object]. *Problemy bezpeky atomnykh elektrostantsiy i Chornobyl'ya* [Problems of Nuclear Power Plants' Safety and of Chernobyl], vol. 25, pp. 125–138. (in Russ.)
12. Ogorodnikov B. I., Khan V. Ye., Kovalchuk V. P., Laganenko A. S., Dovydkov S. A. (2015). Sostav i kontsentratsii radioaktivnykh aerozoley v 2013 g. okolo skopleniya LTSM v pomeshchenii 210/7 obyekta "Ukrytiye" [Composition and concentration of radioactive aerosols near lava-like fuel containing materials in premise 210/7 of the Shelter object]. *Problemy bezpeky atomnykh elektrostantsiy i Chornobyl'ya* [Problems of Nuclear Power Plants' Safety and of Chernobyl], vol. 24, pp. 70–84. (in Russ.)
13. Pazukhin E. M. (1994). Lavoobraznyye toplivosoderzhashchiye massy 4-go bloka Chernobyl'skoy AES: topografiya, fiziko-khimicheskiye svoystva, stsenariy obrazovaniya [Lava-like fuel-containing masses of the 4th unit of the Chernobyl nuclear power plant: topography, physicochemical properties, formation scenario]. *Radiokhimiya* [Radiochemistry], vol. 36, no. 2, pp. 97–142. (in Russ.)
14. Ogorodnikov B. I., Pazukhin E. M., Klyuchnikov A. A. (2008). *Radioaktivnyye aerozoli obyekta "Ukrytiye": 1986–2006 gg.* [Radioactive aerosols of the Shelter object: 1986–2006]. Chornobyl: ISP NPP, NAS of Ukraine, 456 p. (in Russ.)
15. Odintsov A. A., Khan V. Ye. (2018). Radioaktivno zagryaznennaya voda v obyekte «Ukrytiye» posle nadvizhki "Arki" novogo bezopasnogo konfaymenta v proyektnoye polozheniye [Radioactive water in the Shelter object after pulling down of "Arka" of New safe confinement in design position] *Problemy bezpeky elektrostantsiy i Chornobyl'ya* [Problems of Nuclear Power Plants' Safety and of Chernobyl], vol. 30, pp. 67–77. (in Russ.)

Надійшла 12.12.2019
Received 12.12.2019