



ІНСТИТУТ  
ФІЗИКИ  
КОНДЕНСОВАНИХ  
СИСТЕМ

ICMP-00-02U

С.Б.Кумшаєв\*, К.П.Чечеров\*\*, М.В.Токарчук, О.Є.Кобрин

ДО ПРОБЛЕМ МОНІТОРИНГУ ВОДНИХ РОЗЧИНІВ  
РАДІОАКТИВНИХ ЕЛЕМЕНТІВ В ЗОНІ ВІДЧУЖЕННЯ. I.  
ОБ'ЄКТ "УКРИТТЯ"

\* Аналітичний центр "Якість", м. Київ  
\*\* Російський науковий центр "Курчатовський інститут", м. Москва, просп.  
Курчатова, 1

УДК: 5.39.1, 66.085:66.093, 621.039.526

PACS: 28.41.Kw, 82.50.Gw

До проблем моніторингу водних розчинів радіоактивних елементів в зоні Відчуження. I. Об'єкт "Укриття"

С.Б.Кумшаєв, К.П.Чечеров, М.В.Токарчук, О.Є.Кобрин

**Анотація.** Обговорюється проблема моніторингу водних розчинів радіоактивних елементів в об'єкті "Укриття". Представлена схема створення бази даних по моніторингу водних розчинів радіоактивних елементів. Проведений аналіз параметрів, за якими необхідно проводити моніторинг водних розчинів радіоактивних елементів.

**On the problems of monitoring of aqueous solutions of radioactive elements in the Alienation Area. I. The object "Shelter"**

S.B.Kumshaev, K.P.Checherov, M.V.Tokarchuk, A.E.Kobryn

**Abstract.** The problems of monitoring of aqueous solutions of radioactive elements in the Alienation Area is discussed. A schema for creation of data base on the monitoring of aqueous solutions of radioactive elements is presented. Analysis of parameters on which such a monitoring should be conducted is carried out as well.

Об'єкт “Укриття” ЧАЕС як радіаційно, так і екологічно небезпечний, промислова площадка навколо нього [1-8], пункти тимчасової локалізації радіоактивних відходів (ПТЛРВ) біля станції “Янів”, поблизу “Нафтобази” [9,10], “Рудий ліс” [11,12] і пункти захоронення радіоактивних відходів [13,14] залишаються реальними джерелами забруднення радіонуклідами ґрунтових та підземних вод системи “водозабір ближньої зони ЧАЕС — ріка Прип'ять — каскад дніпровських водосховищ”. Стратегію локалізації, ліквідації цих екологічно небезпечних об'єктів необхідно розробляти на основі правильного вибору сучасних технологічних засобів. А це вимагає детального вивчення й прогнозування процесів міграції радіонуклідів у різних середовищах як у самому об'єкті “Укриття”, так і в пунктах тимчасової локалізації радіоактивних відходів та на території зони Відчуження.

Одною із головних у вирішенні цих проблем є Динамічна фізична (інформаційно - аналітична) модель (ДФМ) об'єкта “Укриття” [15-18] як сукупності окремих підсистем, призначених для:

- збору, систематизації та аналізу даних про об'єкт “Укриття” необхідної для його поточної експлуатації і на всіх етапах перетворення в екологічно безпечний стан - демонтаж та захоронення;
- моделювання різних подій і процесів: зміни радіаційної ситуації в результаті виконання дезактиваційних робіт; взаємодії паливомісних мас з водою і атмосферою; зміни пружно-деформованого стану будівельних конструкцій, руйнування їх і виходу радіоактивних речовин в атмосферу; прогнозування процесів демонтажу об'єкта “Укриття” та ін.;
- моделювання процесів вилучення паливомісних мас і водних розчинів радіоактивних елементів та планування зв'язаних з цим робіт;
- навчання персоналу для роботи на об'єкті “Укриття”;
- планування науково-дослідних робіт на об'єкті;
- оперативного інформування населення про реальний стан об'єкта “Укриття”, а також інших задач, які можуть виникати в процесі проведення робіт на об'єкті.

Важливим елементом ДФМ об'єкта “Укриття” є моніторинг водних розчинів радіоактивних елементів у ньому, що однозначно пов'язаний із моніторингом радіоактивних елементів у ґрунтових, підземних водах промплощадки та ПТЛРВ.

Однією з основних форм існування радіонуклідів всередині об'єкта “Укриття” та в ПТЛРВ є високоактивні водні розчини, оскільки містять ізомери урану  $^{234-236,238}\text{U}$ , непуторію  $^{237}\text{Np}$ , плутонію

$^{238-242}\text{Pu}$ , америцію  $^{241}\text{Am}$ , кюрію  $^{242,244}\text{Cm}$ , стронцію, цезію та інших радіоактивних елементів. Вони утворилися внаслідок взаємодії паливомісних мас, фрагментів активної зони реактора, різних радіоактивних відходів, утворених в процесі ліквідації аварії з природною та техногенною водою. Середня концентрація за ураном цих водних розчинів змінюється в межах  $10\div 100$  мг/л [3-7]. Вода потрапляє в “Укриття” через численні отвори, щілини у покрівлі та стінах, конденсуючись з повітря на внутрішніх стінах об'єкта і в процесі зрошування ядерного пилу.

В паливомісних масах і фрагментах активної зони уран, непуторій, плутоній, америцій, кюрій перебувають в оксидній формі  $\text{UO}_2$  (початкова форма ядерного палива),  $\text{NpO}_2$ ,  $\text{PuO}_2$ ,  $\text{AmO}_2$ ,  $\text{CmO}_2$  та їх модифікаціях, які утворилися під час аварії, зокрема  $\text{U}_3\text{O}_8$ . Накопичення непуторію та трансуранових  $\text{Pu}$ ,  $\text{Am}$ ,  $\text{Cm}$  (перетворення  $^{238}\text{U}$  в  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$ ,  $^{242}\text{Pu}$ ) відбувалося при нормальній роботі реактора до аварії, під час аварії та після неї в паливомісних масах та фрагментах активної зони реактора за відомими ядерними процесами [19-23], включаючи  $\beta$ -розпад  $^{241}\text{Pu}$  (період піврозпаду 14.3 років) з утворенням америцію  $^{241}\text{Am}$ . Вода, потрапивши в щілини й пори паливомісних мас активно руйнує їх шляхом складних процесів свелінгу [4].

Спостереження ще 1989 року показали, що паливомісні маси втрачають свою міцність. Очевидно, це є результат незворотніх ядерно-фізико-хімічних процесів, які практично неможливо стабілізувати і які ще більше поглибилися внаслідок активної взаємодії паливомісних мас із водою. Важливим фактором значної зміни стану паливомісних мас була поява жовтих та жовто-коричневих утворень на чорній кераміці [24]. Їх зразки було обстежено методами растрової електронної спектроскопії, рентгенофазовим і рентгено-спектральним аналізом. У результаті вдалося в'ясувати, що жовті плями є голчасті кристали уранових мінералів з основними фазами [24,25]:  $\text{UO}_3 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{UO}_4 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{UO}_2\text{CO}_3$ ,  $\text{Na}_4\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3$ . Усі вони добре розчиняються у воді.

Експериментальні дослідження [7,8] водних розчинів радіоактивних елементів в об'єкті “Укриття” вказують на те, що вихід урану та інших радіоактивних елементів з паливомісних мас у “блочні” води з плином часу зростає. Шляхом складних фізико-хімічних процесів вилучування разом з ураном (в іонній формі уранілу  $\text{UO}_2^{2+}$ ) з паливомісних мас та фрагментів активної зони у водні розчини виходять плутоній, непуторій, америцій, кюрій в іонних формах  $\text{NpO}_2^{2+}$ ,  $\text{PuO}_2^{2+}$ ,  $\text{Am}_2\text{O}^{2+}$ ,  $\text{CmO}_2^{2+}$ . Ізотопи  $^{238-240}\text{Pu}$ ,  $^{241,242}\text{Am}$ ,  $^{242,244}\text{Cm}$  забезпечу-

ють 99% і 96%  $\alpha$ -радіоактивності та виходу нейтронів після аварії. Взаємодія випромінених  $\alpha$ -частинок (середня енергія 5-7 МеВ) з атомами В, О, Na, Mg, Al та Si, котрі знаходяться як в паливомісних масах, так і у водних розчинах, супроводжується реакцією  $(\alpha, n)$  і додатково генерує потік нейтронів. У роботах [26,27] було проведено оцінки виходів реакцій  $(\alpha, n)$  для окремих зразків паливомісних мас із підреакторних приміщень 305/2 і 304/2. Вони показали, що вклад реакцій у швидкість генерації нейтронів досягає  $\sim 50\%$ . Швидкість генерації нейтронів за рахунок  $(\alpha, n)$  реакцій на легких хімічних елементах з часом буде зростати. Це збільшення зумовлене насамперед накопиченням  $^{241}\text{Am}$  (в результаті  $\beta$ -розпаду  $^{241}\text{Pu}$ ) як інтенсивного джерела  $\alpha$ -частинок.

Як показують хімічні аналізи, водні розчини об'єкта "Укриття" є в більшості карбонатними. Про це свідчать також мінеральні утворення  $\text{UO}_2\text{CO}_3$ ,  $\text{Na}_4\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3$  на поверхні паливомісних мас. Отож, в об'єкті "Укриття" ми маємо високоактивні водні розчини урану, плутонію, америцію, кюрію, цезію, стронцію та інших елементів, які утворились протягом 8-9 років ( $\sim 3000\text{ м}^3$  — за даними ЧАЕС знаходиться в приміщеннях об'єкта [5]) внаслідок взаємодії природної, техногенної та конденсатної води з фрагментами активної зони, паливомісними масами та ядерним пилом. На рис. 1 представлено максимальні значення активностей водних розчинів ізоотопів  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  і плутонієвих у Бк/л, а на рис. 2 — максимальні значення концентрації урану в мг/л у період з 1991 по 1997 в "блочних" водах. Важливо зазначити, що середня концентрація урану після 1995 року у них зростає. Недавні експериментальні дослідження, результати яких наведено в [7], показують, що "блочні" води є лужно-хлоридно-карбонатними. У них уран, утворюючи розчинні карбонатні комплекси, переноситься водопотоками на нижні відмітки блоку і там концентрується у вигляді високоактивних донних відкладень (максимальна концентрація урану — 550 мг/кг [7]). Цей процес триває і зараз. Найявність у водних розчинах урану, плутонію, америцію, кюрію, цезію, стронцію, а також взаємодія їх з паливомісними масами призводить до процесів радіолізу, авторадіолізу молекул води внаслідок  $\alpha$ -,  $\beta$ -розпадів та  $\gamma$ -випромінювання. В процесі радіолізу у водних розчинах утворюються хімічно активні гідратовані електрони, радикали Н, ОН,  $\text{HO}_2$  молекулярні продукти  $\text{H}_2$ ,  $\text{H}_2\text{O}_2$ , що в значній мірі визначають характер взаємодії водних розчинів з різними матеріалами всередині об'єкта "Укриття" [4]. Продукти радіолізу впливають на окислювально-відновлювальні реакції, гідроліз, комплексоутворення, полімеризацію для іонів  $\text{UO}_2^{2+}$ ,

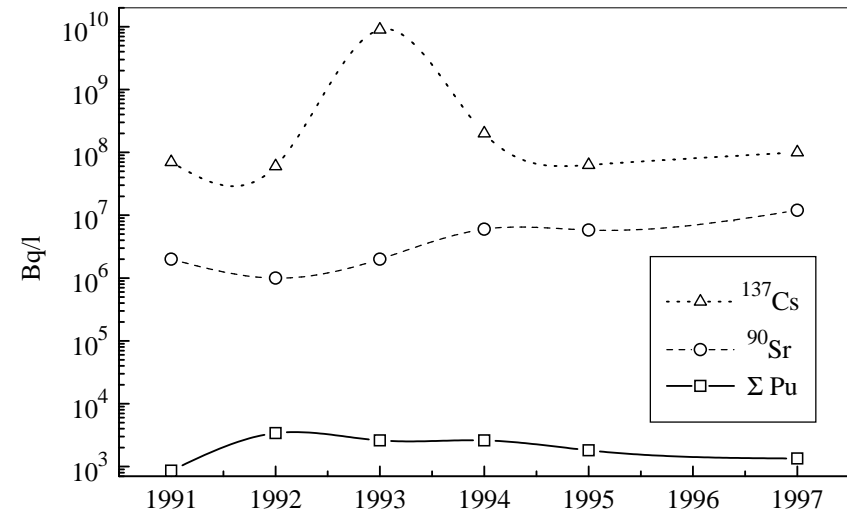
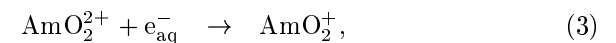
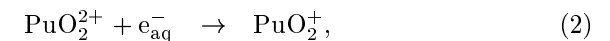
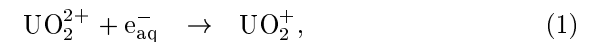


Рис. 1. Максимальні значення активності водних розчинів ізоотопів у блочних водах об'єкта "Укриття".

$\text{PuO}_2^{2+}$ ,  $\text{NpO}_2^{2+}$ ,  $\text{AmO}_2^{2+}$ ,  $\text{CmO}_2^{2+}$ , які містяться у "блочних" водах [28]. На окислювально-відновні реакції та комплексоутворення цих іонів впливають також наявні у водних розчинах аніони  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{Br}^-$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{PO}_4^{3-}$ ,  $\text{CO}_3^{2-}$ , катіони  $\text{Na}^+$ ,  $\text{Li}^+$ ,  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{Fe}^{3+}$ ,  $\text{Zn}^{4+}$ ,  $\text{Al}^{3+}$ ,  $\text{Cs}^+$ ,  $\text{Sr}^{2+}$  та ацетилацетонати  $\text{C}_x\text{H}_y\text{O}_z$ . З іншої сторони, присутні у водних розчинах іони  $\text{UO}_2^{2+}$ ,  $\text{PuO}_2^{2+}$ ,  $\text{AmO}_2^{2+}$ ,  $\text{CmO}_2^{2+}$  в свою чергу дуже впливають на вихід продуктів радіолізу. Насамперед, завдяки реакціям відновлення шестивалентних урану U(VI), плутонію Pu(VI), америцію Am(VI) до п'ятивалентних U(V), Pu(V), Am(V) зменшується час життя гідратованих електронів:



де в іонах  $\text{UO}_2^+$ ,  $\text{PuO}_2^+$ ,  $\text{AmO}_2^+$  уран, плутоній та америцій є п'ятивалентними. Атоми водню Н, перекис водню  $\text{H}_2\text{O}_2$  та радикали  $\text{HO}_2$

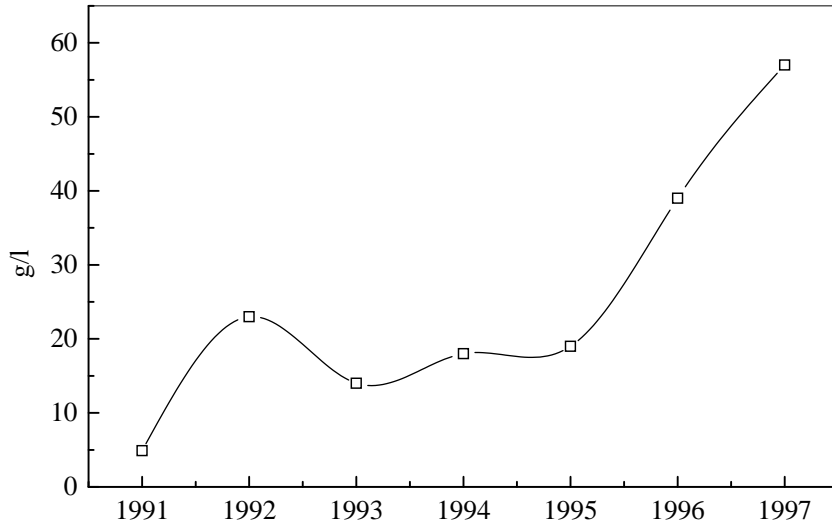
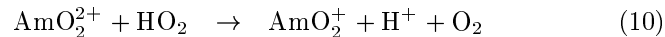
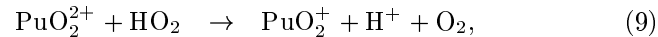
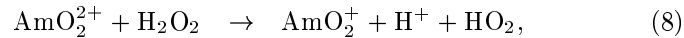
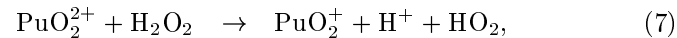
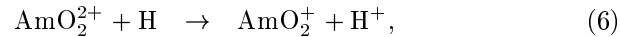
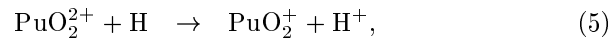
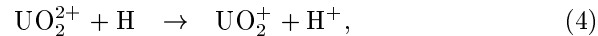


Рис. 2. Максимальні значення концентрації урану в блочних водах об'єкта "Укриття".

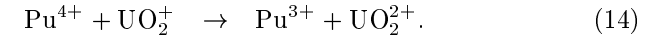
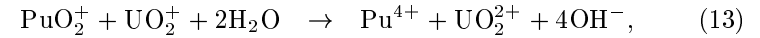
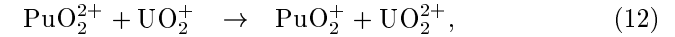
також беруть участь в реакціях відновлення [29-31]:



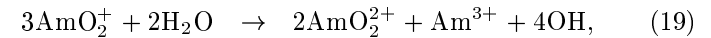
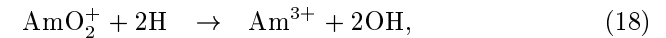
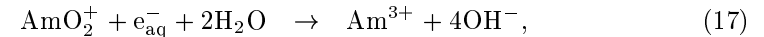
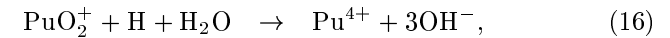
з утворенням іонів водню  $\text{H}^+$ , гідроперекисних радикалів  $\text{HO}_2$  та молекулярного кисню  $\text{O}_2$ . У лужних розчинах перекис водню в реакції з іонами уранілу утворює пероксид урану:



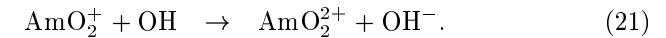
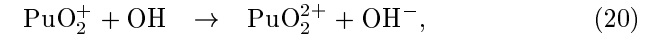
Це є джерелом уранових мінералів  $\text{UO}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$ , які спостерігаються на паливомісних масах в об'єкті "Укриття". Іони  $\text{UO}_2^+$ ,  $\text{PuO}_2^+$ ,  $\text{AmO}_2^+$  зі ступенем окислення (V) елементів беруть участь у відновлювальних реакціях між собою та з продуктами радіолізу [29-32], зокрема, утворений  $\text{U(V)}$  є відновником для  $\text{Pu(VI)}$ ,  $\text{Pu(V)}$ ,  $\text{Pu(IV)}$ :



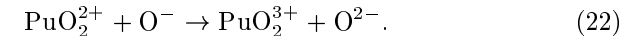
Крім цього, іони  $\text{PuO}_2^+$ ,  $\text{AmO}_2^+$  можуть як відновлюватися до  $\text{Pu}^{4+}$ ,  $\text{Am}^{4+}$  продуктами радіолізу за реакціями:



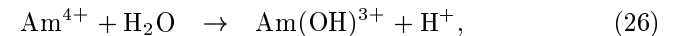
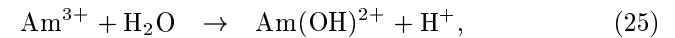
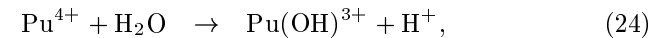
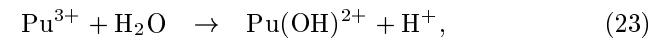
так і окислюватись радикалами  $\text{OH}$  до  $\text{PuO}_2^{2+}$ ,  $\text{AmO}_2^{2+}$ :



У лужних розчинах при наявності  $\text{NaOH}$  плутоній  $\text{Pu(VI)}$  може окислюватися до  $\text{Pu(VII)}$  за реакцією з  $\text{O}^-$ :

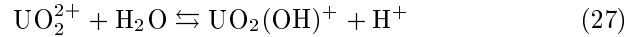


Тривалентні, чотиривалентні плутоній та америцій  $\text{Pu}^{3+}$ ,  $\text{Am}^{3+}$ ,  $\text{Pu}^{4+}$ ,  $\text{Am}^{4+}$ , які утворюються за реакціями (14)-(19) в лужних розчинах гідролізуються:

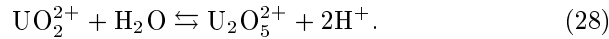


Процес гідролізу продовжується з утворенням іонів  $\text{Pu}(\text{OH})_n^{(4-n)+}$ ,  $\text{Am}(\text{OH})_n^{(4-n)+}$  і при великих значеннях  $\text{pH} > 7$  відбувається осад гідроокисів  $\text{Pu}(\text{OH})_3$ ,  $\text{Pu}(\text{OH})_4$ ,  $\text{Am}(\text{OH})_3$ ,  $\text{Am}(\text{OH})_4$ .

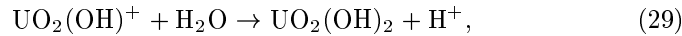
При виході іонів  $\text{UO}_2^{2+}$ ,  $\text{PuO}_2^+$ ,  $\text{AmO}_2^+$  із паливомісних мас і фрагментів активної зони у водні розчини відбувається їх гідроліз [4,28], якщо вони не вступили в реакції з продуктами радіолізу та в окислювально-відновні реакції (4)-(26). Гідроліз іонів уранілу  $\text{UO}_2^{2+}$  проходить вже при  $\text{pH} > 1.5$ . При  $\text{pH} > 4$  відбувається випадання в осад нерозчинних продуктів гідролізу. Початкові стадії гідролізу іонів уранілу проходять з утворенням мономеру:



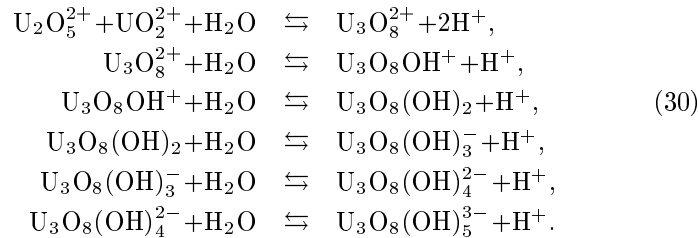
і димеру  $\text{UO}_3\text{UO}_2^{2+}$  ( $\text{U}_2\text{O}_5^{2+}$ ):



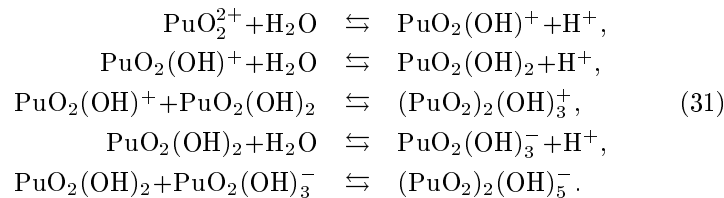
При великих значеннях  $\text{pH}$ , що характерно для водних розчинів об'єкта "Укриття", процес гідролізу проходить швидко. У першому випадку — з утворенням осаду гідроокису уранілу  $\text{UO}_2(\text{OH})_2$ :



у другому — з утворенням складних полімерних структур.

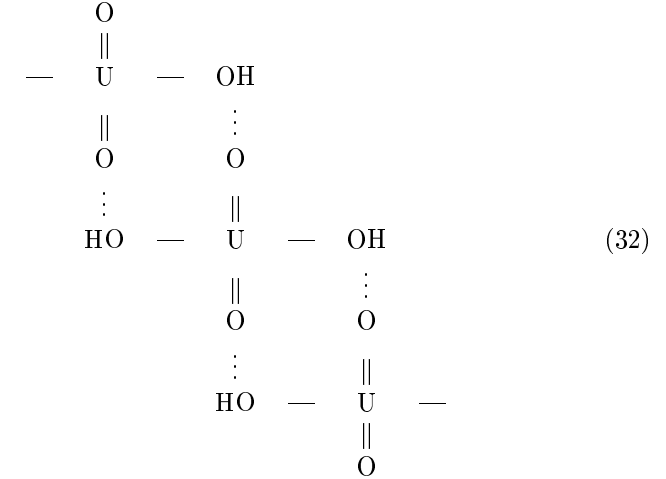


і складних високозарядних аніонів з виділенням іонів водню  $\text{H}^+$ . Плутоніл  $\text{PuO}_2^{2+}$  як і  $\text{UO}_2^{2+}$  активно гідролізується у водних розчинах за реакціями:

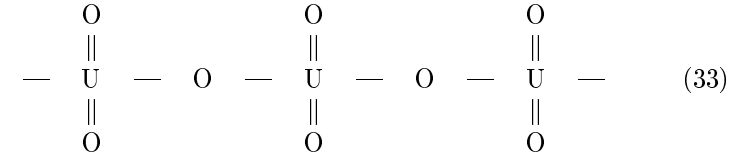


Це веде при великих значеннях  $\text{pH}$  до утворення колоїдних комплексів та полімерних структур.

Процеси утворення поліуранатів і уранатів у лужних карбонатних розчинах взаємопов'язані з утворенням гідролізованих полімерних форм уранілу.



і



При значеннях  $\text{pH} = 10 \div 13$  в залежності від співвідношення  $\text{Na}:\text{U}$  у водних розчинах можуть утворюватись поліуранати [30,32]  $\text{Na}_2\text{U}_2\text{O}_7$ ,  $\text{Na}_2\text{U}_2\text{O}_9$ ,  $\text{Na}_6\text{U}_{17}\text{O}_{24}$ ,  $\text{Na}_2\text{U}_6\text{O}_{19}$ . Необхідно відзначити можливість існування надуранатових сполук типу  $\text{M}_2\text{U}_2\text{O}_9 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{M}_2\text{U}_4\text{O}_5 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{M}_2\text{UO}_6 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{M}_6\text{U}_2\text{O}_{13} \cdot 13\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{M}_8\text{U}_4\text{O}_{22} \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{M} = \text{Li}, \text{Na}, \text{K}, \text{Rb}, \text{Cs}$ . При  $\text{pH} = 6 \div 11$  у розчинах можливі утворення плутонатів  $\text{Na}_2\text{Pu}_2\text{O}_6 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{K}_2\text{Pu}_2\text{O}_6 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$  в залежності від співвідношення  $\text{Na}:\text{Pu}$ ,  $\text{K}:\text{Pu}$ .

Наявність у водних розчинах аніонів  $\text{CO}_3^{2-}$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{PO}_4^{3-}$  та ацетилацетонатів  $\text{C}_x\text{H}_y\text{O}_z$  може спричинити утворення з іонами уранілу  $\text{UO}_2^{2+}$ , плутонілу  $\text{PuO}_2^{2+}$  як негідролізованих, так і гідролізованих комплексів аніонів, катіонів типу:  $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_2^{2-}$ ,  $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3^{4-}$ ,  $\text{UO}_2(\text{SO}_4)_3^{4-}$ ,  $\text{U}_2\text{O}_5(\text{SO}_4)_3^{4-}$ ,  $\text{UO}_2\text{NO}_3^+$ ,  $\text{UO}_2\text{H}_2\text{PO}_4^+$ ,  $\text{UO}_2\text{H}_2\text{C}_2\text{O}_4^{2+}$ ,  $\text{PuO}_2\text{NO}_3^+$ ,  $\text{PuO}_2(\text{CO}_3)_2^{2-}$ , і нейтральних сполук

$\text{UO}_2\text{CO}_3$ ,  $\text{Na}_4\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3$ ,  $\text{UO}_2\text{SO}_4$ ,  $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$ ,  $(\text{UO}_2)_3(\text{PO}_4)_2$ ,  $\text{UO}_2(\text{H}_2\text{PO}_4)_2$ ,  $\text{PuO}_2(\text{NO}_3)_2$ , які при певних рН та відповідних концентраціях можуть утворювати уранові, плутонієві осаді. Серед характерних осадів треба відзначити карбонати, нітрати, фосфати уранілу, плутонілу [31,33], які займають важливе місце в технології переробки відпрацьованого ядерного палива атомних реакторів [34,32]. Зокрема, характерними є утворення осадів, іонних комплексів у карбонатних розчинах для іонів уранілу в залежності від процентного вмісту  $\text{UO}_2^{2+}$  та рН і наявності іонів кальцію [35]. З аналізу рисунків 3, 4 бачимо, що іони уранілу в межах рН=6÷10 в основному знаходяться у формі аніонів  $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3^{4-}$  і при наявності іонів  $\text{Ca}^{2+}$  утворюють осад  $\text{Ca}_2\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3$ .

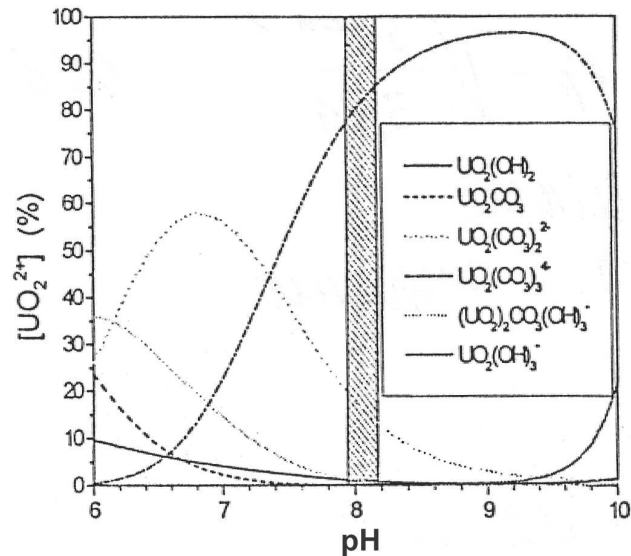


Рис. 3.

Сучасні досягнення радіохімії на базі теоретичних та експериментальних досліджень процесів радіолізу, окислювально-відновлювальних реакцій, гідролізу, комплексоутворень [29-33] дають можливість класифікувати радіоактивні водні розчини в об'єкті. Така класифікація вод є важливою для їх хімічної переробки з метою ви-

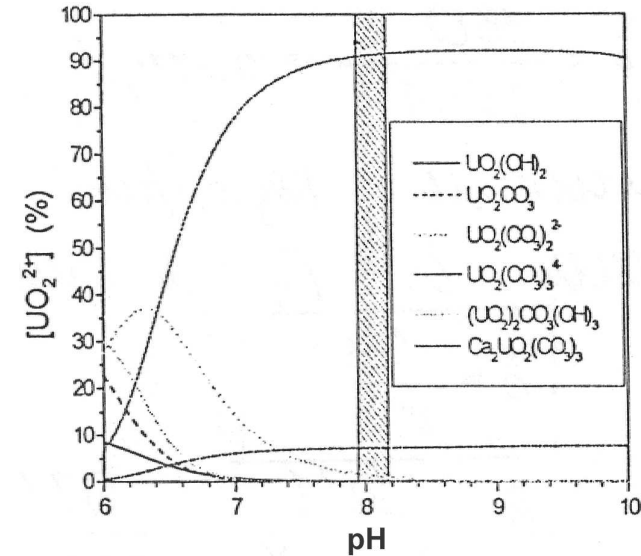


Рис. 4.

лучення урану, плутонію, америцію, кюрію та інших радіоактивних елементів. Це абсолютно відповідає хімічній технології переробки опроміненого ядерного палива  $\text{UO}_2$  ядерних реакторів [34,32].

У зв'язку з цим на проблему води в "Укритті" необхідно звернути увагу з точки зору використання її для вилучення ядерного палива з об'єкта. Оскільки вода є одним із найважливіших факторів руйнування паливомісних мас і виходу радіоактивних елементів у водойми об'єкта, то контролювано відкачуючи її у спеціально споруджені ємності, можна поступово забирати ядерне паливо, що знаходиться у пиловому стані (зрошення ядерного пилу) та у шклянному стані (відбувається інтенсивне руйнування лав). Відкачана радіоактивна вода може контролюватися у спеціальних ємностях і готуватися до поступової переробки на радіохімкомбінаті, який необхідно побудувати у зоні Відчуження.

Отже моніторинг водних розчинів радіоактивних елементів необхідно проводити у зв'язку з тим, що:

- водні розчини є одним із середовищ фізико-хімічного стану ядерного палива, сповільнювачами, поглиначами нейтронів (з утво-

ренням окисів дейтерію та тритію);

- водні розчини є чинниками міграції радіонуклідів в межах об'єкта “Укриття” та із нього; водні розчини є реальними чинниками вилучення ядерного палива із об'єкта “Укриття” шляхом відкачування та наступної переробки.

Моніторинг води, водних розчинів радіоактивних елементів необхідно проводити постійно та узгоджено із моніторингом стану ядерного палива: фрагментів активної зони, паливомісних мас, ядерного пилу. Його можна здійснювати за наступною схемою:

#### А Встановлення місць знаходження води

- Приміщення в об'єкті “Укриття”: 012/15, 012/14, 012/16, 013/2, 101/2, 009/4, 405/2, 402/3, 304/3, 305/2, тобто приміщення машзалу, блока Б, блока 4-БФ, з покрівлі машзалу та каскадної стіни.
- Постійний аналіз радіонуклідного складу проб води із кожного приміщення по:
  - місяцях, кварталах, роках;
  - за концентрацією  $\gamma$ -активних  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ;
  - за концентрацією  $\beta$ -активних  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ , окису тритію  $\text{T}_2\text{O}_3$ ;
  - за концентрацією  $\alpha$ -активних (U, Pu, Am, Cm).
- Постійний хімічний аналіз проб води за вмістом нейтронопоглинаючих матеріалів.
- Постійний хімічний аналіз проб води за значенням рН.

#### Б Шляхи міграції води і водних розчинів всередині об'єкта “Укриття”:

- просочування через завали, конструкції, щілини та ін.;
- трубопроводи;
- постійнодіючі шляхи поступання води;
- контроль їх за:
  - оцінками витрати води;
  - зміною рівня при відкачуванні чи поступанні води.

#### В Джерела води в об'єкті “Укриття”:

- дані про опади (дощові, снігові, сезонні, річні);

- технологічні води;
- зрошування ядерного пилу;
- бурові роботи;
- конденсація із атмосфери;
- ґрунтові води.

#### Г Стік води:

- відкачування водних розчинів радіоактивних елементів і їх класифікація;
- стік в ґрунтові води.

На рисунках 5-12 представлені дані по радіонуклідному складу водних розчинів у конкретних приміщеннях об'єкта “Укриття” в період з 1992 по 1995 років, отримані в МНТЦ “Укриття”. Проби водних розчинів не досліджувались за встановленою періодичністю, що не дає можливості чітко прогнозувати водопотоки в об'єкті. Хоча аналіз даних зміни активності  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  та концентрації урану вказує на певну кореляцію між ними.

Надзвичайно важливими і необхідними характеристиками водних розчинів радіоактивних елементів є дані про:

- кислотність, нейтральність, лужність, тобто рН, від чого надзвичайно сильно залежить фізико-хімічний стан радіонуклідів, зокрема знаходження їх у розчинній чи нерозчинній формах;
- концентрацію окису тритію у водних розчинах, що може бути індикатором нейтронних потоків. Тритій утворюється за такими реакціями:

- в результаті потрійного поділу  $^{235}\text{U}$  на 10 актів поділу утворюється один атом тритію;
- в реакціях захоплення нейтронів у звичайній і важкій воді  $2\text{D}$  ( $n,\gamma$ )  $^3\text{T}$ ;
- в реакціях з хімічними елементами конструкцій  $^{10}\text{B}$  ( $n,2\alpha$ )  $^3\text{T}$ ,  $^6\text{Li}$  ( $n,\alpha$ )  $^3\text{T}$ ;

- концентрацію нейтронопоглинаючих матеріалів, фізико-хімічний стан яких теж залежить від рН розчинів. Зокрема, гадоліній утворює нерозчинні форми і випадає в осад, коли водні розчини є лужно-хлоридно-карбонатними, що характерно для об'єкта “Укриття”.

Такі дані необхідно представляти на певному комплексі графіків раз у місяць з аналізу проб води у визначених місцях приміщень об'єкту. Систематичний аналіз даних про радіонуклідний склад, рН та концентрацію нейтронопоглиначів дасть можливість достовірно оцінювати ядерно-фізико-хімічний стан водних розчинів радіоактивних елементів у тому чи іншому приміщенні. Такий аналіз може дати якісну картину як відбувається міграція радіонуклідів в об'єкті "Укриття" і чи "блочні води" проникають в ґрунтові та їх шляхи. Індикатором такої міграції може служити окис тритію (в блочних водах його активність складає від 1 000 до 23 000 Бк/л).

На основі моніторингу водних розчинів радіоактивних елементів в об'єкті необхідно створити математичну модель міграції радіонуклідів, яка повинна враховувати:

- процеси  $\alpha$  -  $\beta$  -  $\gamma$  - випромінювання трансуранових елементів, нейтронні процеси;
- процеси радіолізу, гідролізу, комплексоутворень, утворення уранових, плутонієвих осадів при зміні рН розчинів;
- процеси взаємодії водних розчинів радіоактивних елементів із паливомісними масами при наявності і без нейтронопоглинаючих матеріалів. У цьому напрямку здійснюються дослідження [4,28,36]. Вони є надзвичайно актуальними як з точки зору екологічної безпеки, так і радіаційної, оскільки в об'єкті існують найбільш ядерно небезпечні частини системи, що взаємодіють між собою: фрагменти активної зони реактора, паливомісні маси та водні розчини з твердими осадами урану і плутонію. Тому вивчення структурних перетворень, гідролізу, комплексоутворень, полімеризації, процесів радіолізу, авторадіолізу, окислювально-відновних реакцій з участю іонів  $UO_2^{2+}$ ,  $PuO_2^{2+}$ ,  $AmO_2^{2+}$ ,  $CmO_2^{2+}$ , їх дифузії, а також випромінювання, поглинання та розсіяння нейтронів із врахуванням ядерних  $\alpha$ ,  $\beta$  та  $\gamma$ -перетворень для трансуранових елементів у водних розчинах становить комплекс проблем фізико-хімічного моделювання процесів на основі сучасних досягнень статистичної теорії водних розчинів і радіохімії.

Надзвичайно актуальним це питання постає в системах "фрагменти активної зони – паливомісні маси – високорадіоактивні водні розчини", де ядерно-небезпечними матеріалами є  $UO_2$ ,  $UO_2 + UO_3$ ,  $(ZrU)O_8$ ,  $(ZrU)SiO_4$ ,  $UO_2CO_3$ ,  $UO_3 \cdot 2H_2O$ ,  $Na_4(UO_2) \cdot (CO_3)_3$ ,  $PuO_2$ ,  $UO_4 \cdot 4H_2O$  з великою кількістю сповільнювачів типу  $SiO_2$ ,  $Al_2(SiO_3) \cdot (OH)_4$ ,  $Na_3PO_4$ ,  $Al_2(Si_4O_{10}) \cdot (OH)_2$ ,  $(C_5H_8)_n$ ,  $CaMg(CO_3)_2$ ,  $C_xH_yO_z$ ,  $CaCO_3$ ,  $K_2O$ ,  $CaO$ ,  $MgO$ ,  $Fe_2O_3$ ,  $ZnO$ ,  $T_2O_3$ ,  $H_2O$ ,  $C$  та відбивачів нейтронів, якими є елементи конструкцій, бетонні й мета-

лічні стіни приміщень, трубопроводи об'єкта. При цьому необхідно враховувати також велику кількість поглиначів нейтронів, зокрема, гадоліній та інші матеріали.

Важливо зазначити, що моніторинг водних розчинів радіоактивних елементів необхідно проводити із моніторингом паливомісних мас, фрагментів активної зони та ядерного пилу. З цим пов'язана одна із серйозних та важливих проблем: Скільки ядерного палива знаходиться в об'єкті "Укриття"? Дана проблема неодноразово активно обговорювалась авторами роботи та й іншими науковцями [25,3,23,37-42]. Вона й на далі залишається відкритою. Однак, аналіз фізичної природи, потужності вибуху, вивчення характерних співвідношень радіонуклідів  $^{234}U$  і  $^{235}U$ ,  $^{235}U$  і  $^{238}U$ ,  $^{133}Xe$  і  $^{133m}Xe$ , які виявились не реакторними, вказує на теплово-ядерний [42,43] характер аварії на 4-му реакторі ЧАЕС. І оскільки в об'єкті може знаходитись в середньому 40-60% початкового значення ядерного палива (реально відшукано 10-15% ядерного палива!), то основні проблеми радіоактивного забруднення в зоні Відчуження пов'язані із пунктами захоронення радіоактивних відходів, пунктами тимчасової локалізації радіоактивних відходів, територіями, де не проводились дезактиваційні роботи і, де міграція радіонуклідів відбувається ґрунтовими, підземними водами та іншими шляхами. Особливу проблему становить америцій  $^{241}Am$ , який зафіксований в ґрунтових водах ближньої зони ЧАЕС в колоїдному та істино-розчинному станах [12], а також постійно поступає в атмосферу із об'єкту "Укриття" [7,8]. Оскільки америцій  $Am^{3+}$  біологічно небезпечніший ніж плутоній і стійкіший до окислювально-відновних процесів, тому буде зазнавати значної міграції в зоні. Це змушує в майбутньому поставити питання про розширення зони відселення за межі 50 км.



Рис. 5. Номер приміщення 009/4, відмітка 0, вісь 50, зміщення –3000, ряд Ж, зміщення 3000.

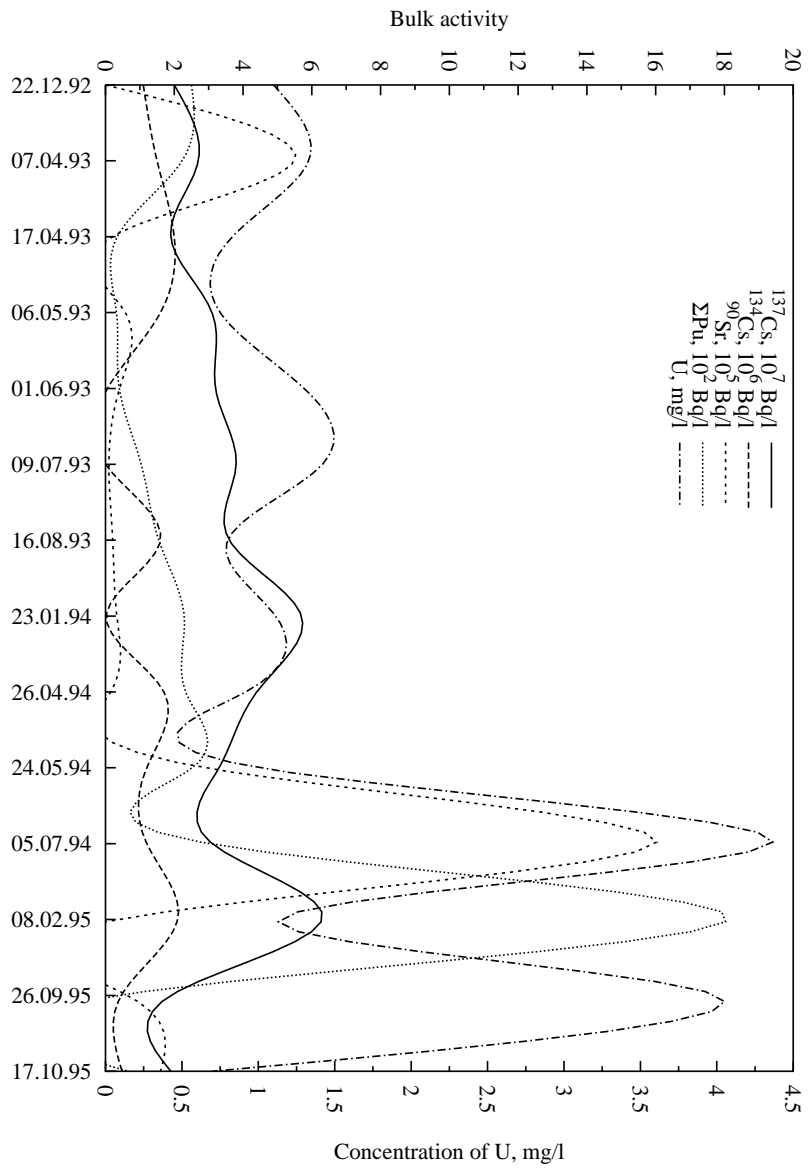
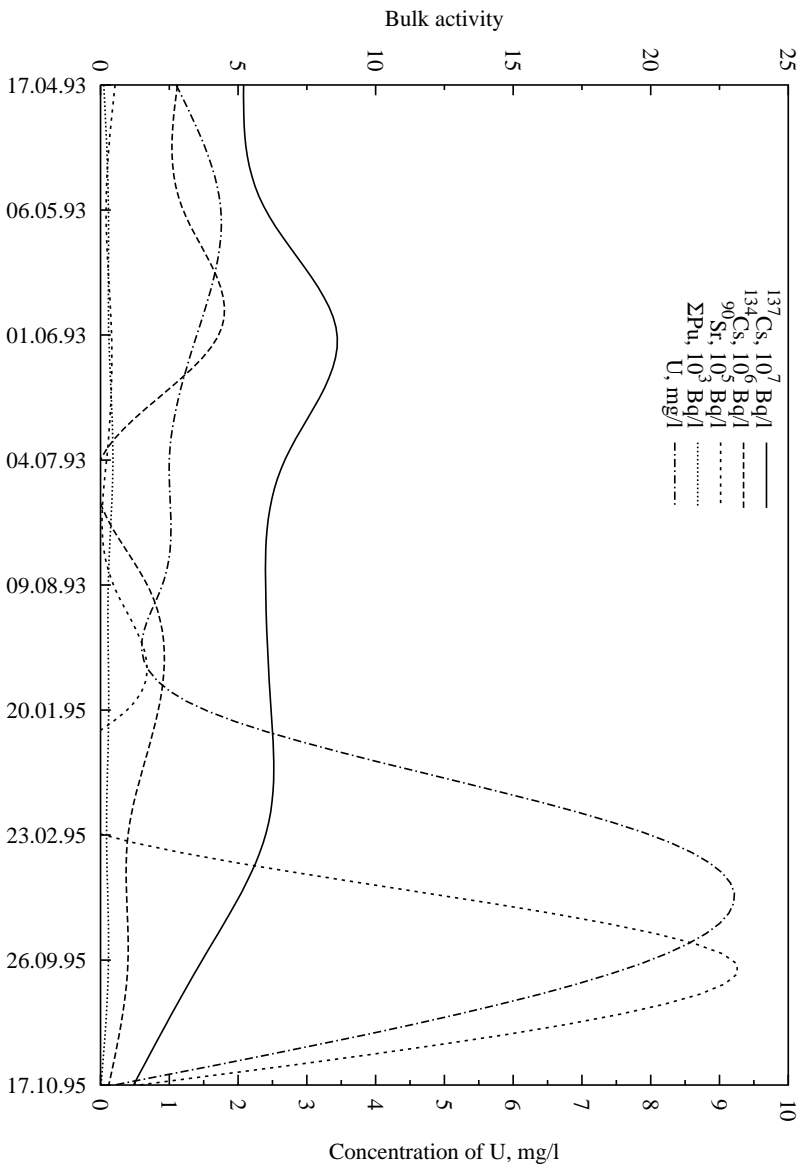


Рис. 6. Номер приміщення 009/4, відмітка 3, вісь 50, зміщення –3000, ряд Ж, зміщення 3000.



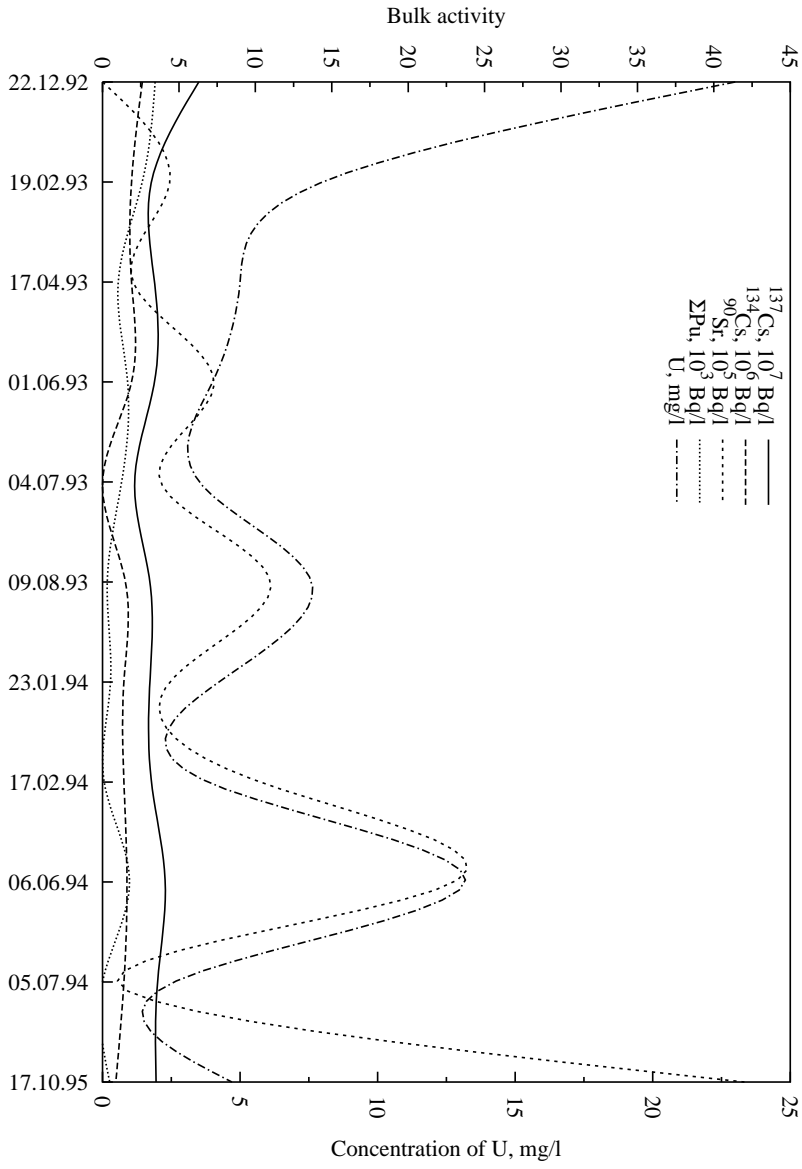


Рис. 8. Номер приміщення 012/15, відмітка 3, вісь 48, зміщення -3000, ряд Н, зміщення 0.

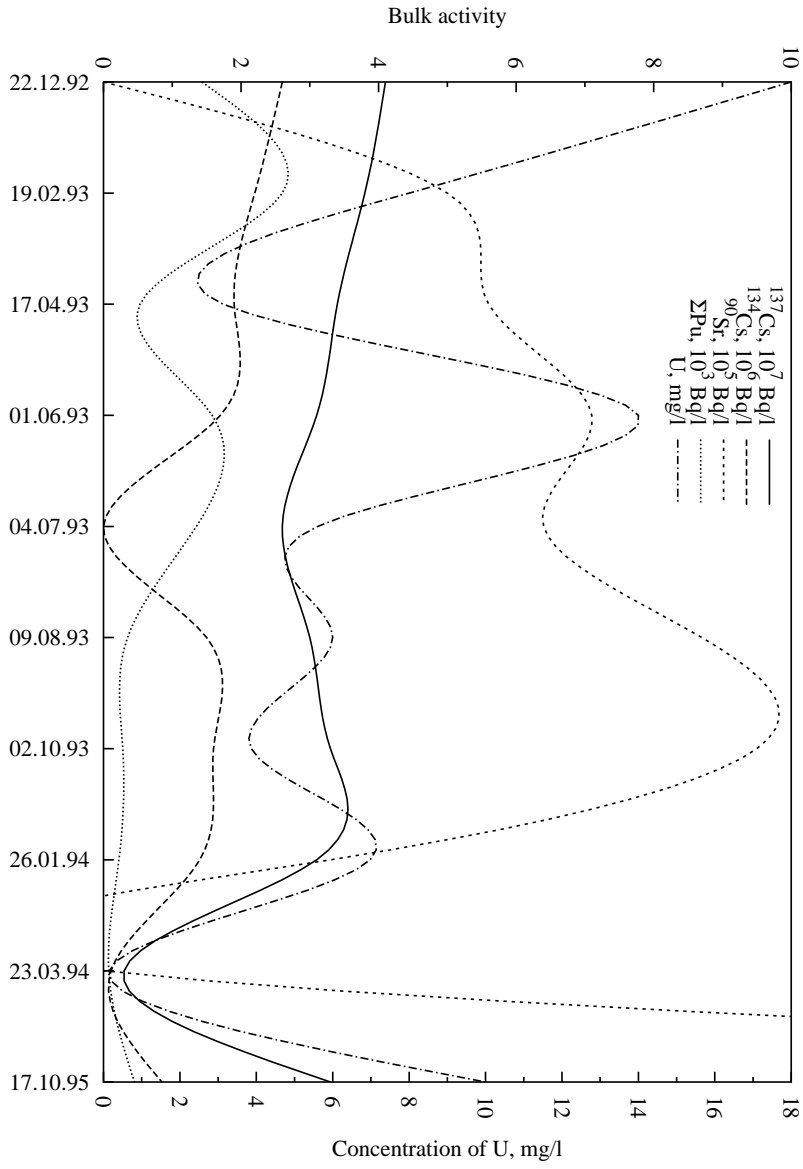


Рис. 7. Номер приміщення 012/15, відмітка 3, вісь 48, зміщення -3000, ряд М, зміщення 3000.

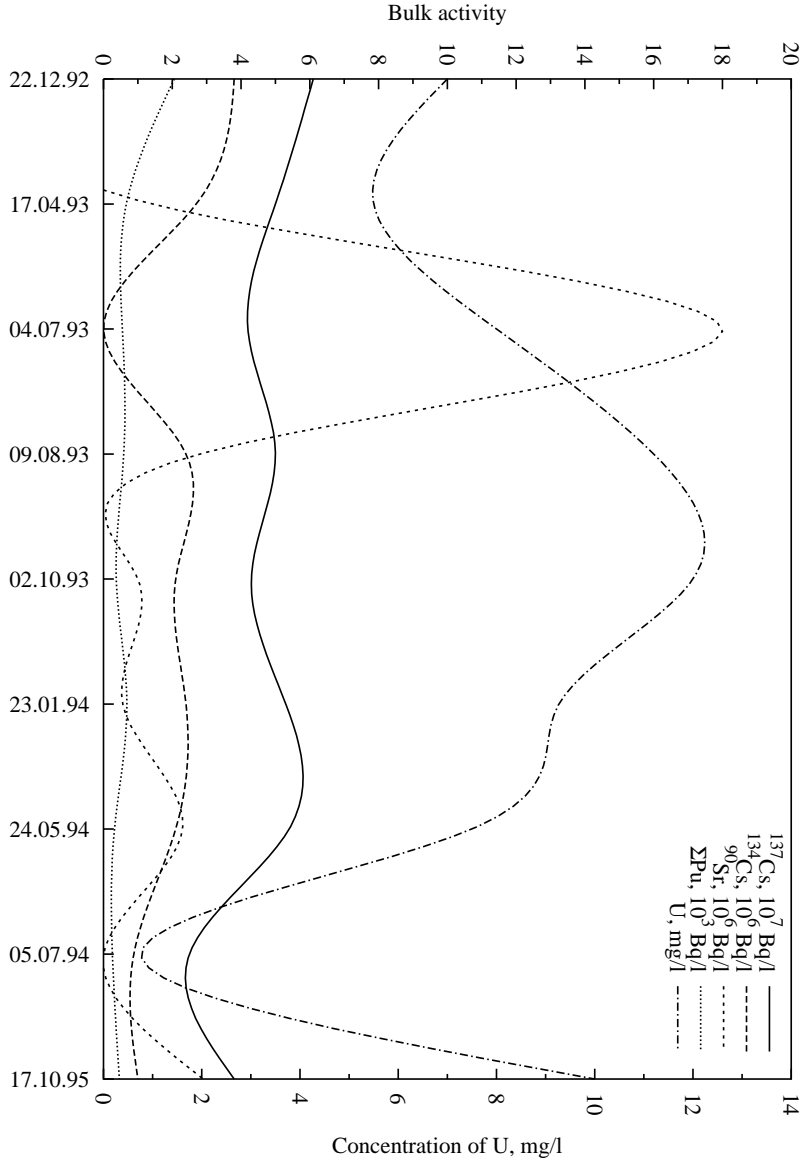


Рис. 9. Номер приміщення 012/16, відмітка 3, вісь 49, зміщення -3000, ряд Е, зміщення 3000.

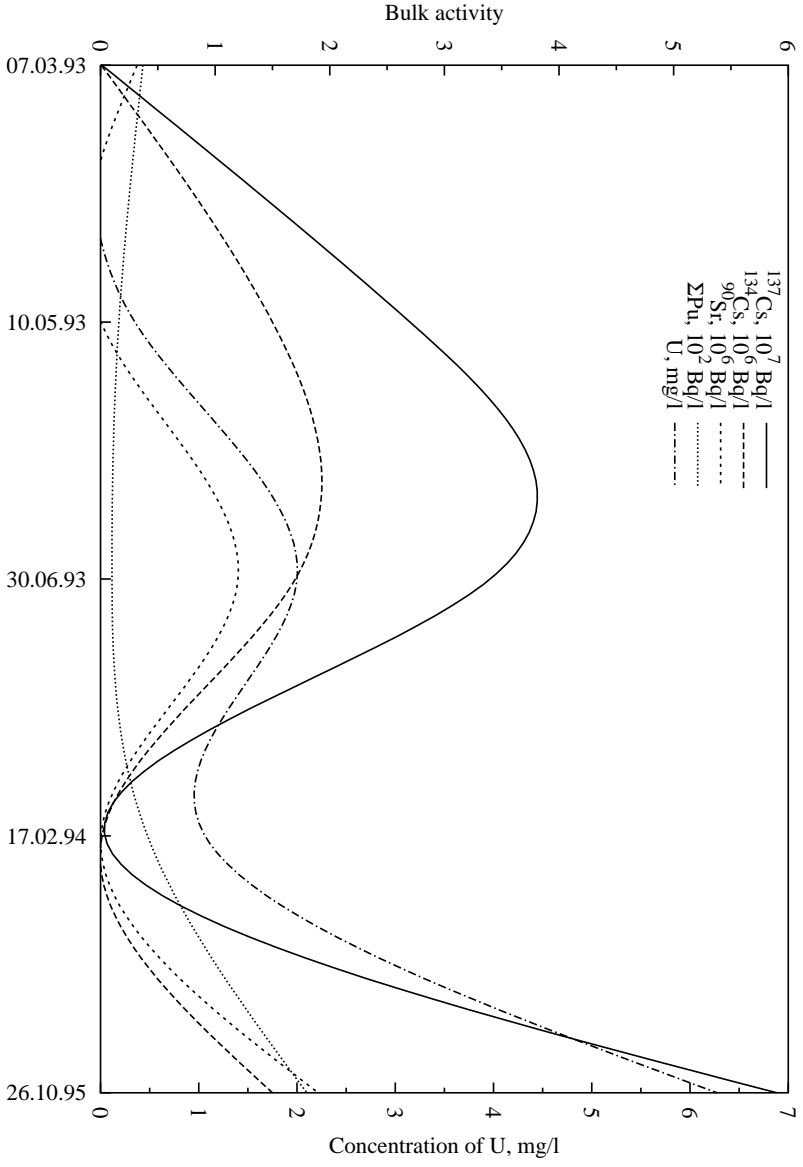


Рис. 10. Номер приміщення 061/2, відмітка 9, вісь 42, зміщення -3000, ряд Л, зміщення 3000.

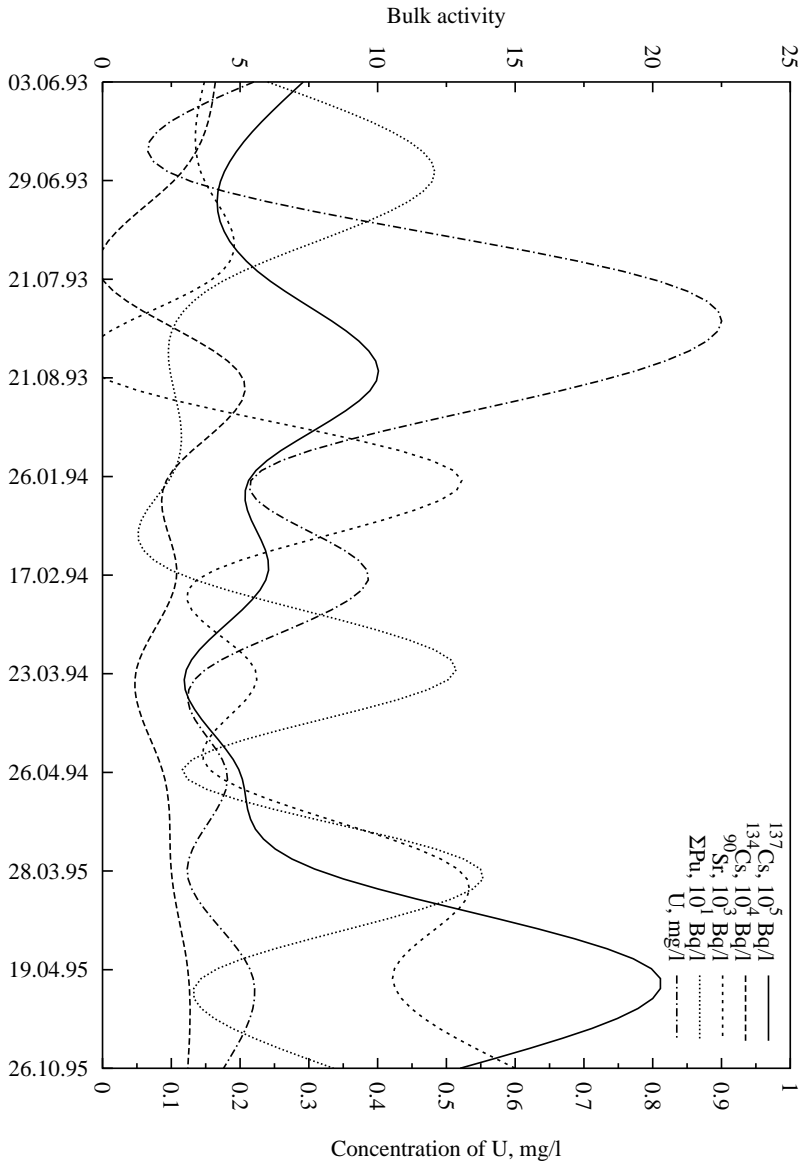


Рис. 12. Номер приміщення 406/2, відмітка 12.5, вісь 44, зміщення -3000, ряд Ж, зміщення 3000.

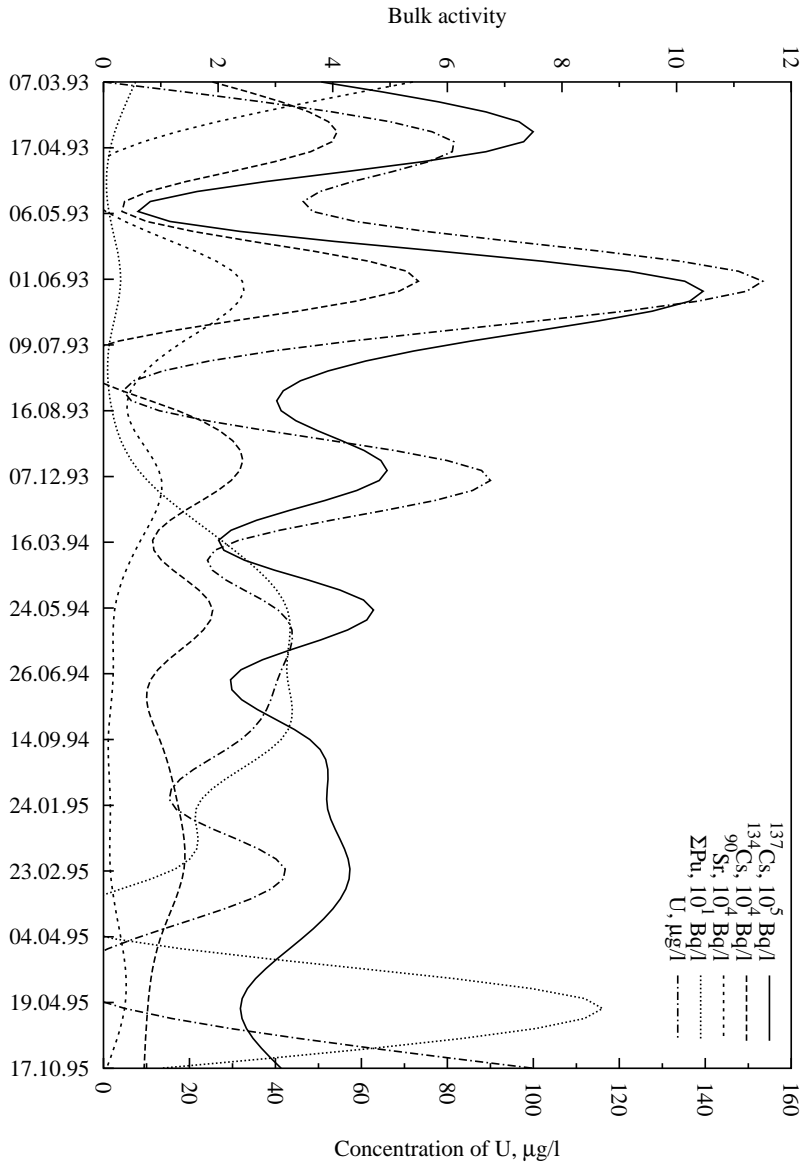


Рис. 11. Номер приміщення 101/2, відмітка 3, вісь 51, зміщення -1713, ряд М, зміщення 30.

## Література

1. Kupnyi V.I., Belousov E.L., Tovstogan A.S. Main results of nuclear danger examination of the "Shelter" object. // *Cond.Matt.Phys.*, 1997, No 12, p.111-120.
2. Kostenko Yu., Rudia K. Rationale for the longterm strategy of the destroyed Chernobyl unit IV conversion into ecologically safe system. // *Cond.Matt.Phys.*, 1997, No 12, p.7-12.
3. Yukhnovskii I.R., Kobryn A.E., Tokarevskii V.V., Tokarchuk M.V. Problems on interaction between water and fuel containing masses inside the object "Shelter" of Chernobyl Nuclear Power Plant. // *J. Phys. Studies*, 1997, vol. 1, No 2, p. 169-180 (in Ukrainian).
4. Yukhnovskii I.R., Tokarchuk M.V., Ignatyuk V.V., et al. Studies on nonequilibrium physico-chemical processes in a system "fuel containing masses-aqueous solutions of radioactive elements". // *Cond. Matt. Phys.*, 1997, No 12, p. 63-96.
5. Kluchnikov A.A. The results of scientific-research and experimental-construction measures, which were held on the object "Shelter" to reach its stabilization. Report on Second International scientific and technical conference, devoted to 10th anniversary of completion of the building of the object "Shelter". Chernobyl, 1996, 21 p. (in Russian).
6. Chernobyl accident (edited by V.G.Baryakhtar).- Kiev., Nauk. dumka, 1995, (in Russian).
7. Отчет о состоянии безопасности объекта "Укрытие" за 1997 год, ВО ЧАЭС, 1998.
8. Отчет о состоянии безопасности объекта "Укрытие" за 1998 год, ВО ЧАЭС, 1999.
9. Ledenev A.I., Ovcharov P.A., Mishunina I.B., Antropov V.M. Results of complex studies in radiation state of temporary areas for radioactive waste localization in the Chernobyl estrangement zone. // *Problems of Chernobyl exclusion zone*, 1995, No 2, p. 46-51 (in Russian).
10. Mishunina I.B., Ledenev A.I., Khvesik O.V. Estimation of safety of radionuclide localization in temporary areas for radioactive waste localization in the Chernobyl estrangement zone. // *Problems of Chernobyl exclusion zone*, 1995, No 2, p. 54-57 (in Russian).
11. Dzhepo S.P., Skalsky A.S., Bugai D.A., Gudzenko V.V., Mogilny S.A., Proskura N.I. Testing-ground investigations of radionuclide migration in temporary area for radioactive waste localization "Ryzhy les" // *Problems of Chernobyl exclusion zone*, 1995, No 2, p. 77-84 (in Russian).
12. Kopeikin V.A. Geochemical consequences of the Chernobyl accident. // *Problems of Chernobyl exclusion zone*, 1995, No 2, p. 128-137 (in Russian).
13. Listing of long-lived radionuclides.// Zhylynskii V.V., Antropov V.M., Khabryna A.I.// *Bulletin of ecological state of the exclusion zone* 4(9) February, 1997, p.29-35. (in Ukrainian)
14. Кумшаев С.Б., Васильев Ю.О., Майборода С.В., Колодка С.В., Жи-

- линский В.В., Антропов В.М. Кадастр радиоактивных отходов зоны отчуждения ЧАЭС. // *Cond. Matt. Phys.*, 1997, No 12, с.184-205.
15. Кумшаев С.Б., Чечеров К.П. Динамическая физическая (информационная) модель объекта "Укрытие". // *Cond. Matt. Phys.*, 1997, No 12, с.133-145.
  16. Кумшаев С.Б., Спектровский А.Р., Чечеров К.П. Паспортизация высотных отметок объекта "Укрытие" (структура банка данных). // *Cond. Matt. Phys.*, 1997, No 12, с.147-160.
  17. Кумшаев С.Б., Кибкало Н.Ю., Колодка С.В., Максимов Ю.К., Майборода С.В., Русанович В.Ю., Спектровский А.Р., Хайнацкий К.О. Базы данных по состоянию объекта "Укрытие". // *Cond. Matt. Phys.*, 1997, No 12, с.161-172.
  18. Кумшаев С.Б., Васильев Ю.О., Кибкало Н.Ю., Максимов Ю.К., Спектровский А.Р., Чечеров К.П. Радиационная обстановка в помещениях объекта "Укрытие" (информационно-аналитическое обеспечение). // *Cond. Matt. Phys.*, 1997, No 12, с.173-187.
  19. Галанин А.Д. Введение в теорию ядерных реакторов на тепловых нейтронах. М.: Энергоатомиздат, 1990, 535с.
  20. Кривохатский А.С., Романов Ю.Ф. Получение трансураниевых и актиноидных элементов при нейтронном облучении. М.: Атомиздат, 1970, 317с.
  21. Колобашкин В.М., Рубцов П.М., Ружанский П.А., В.Д.Сидоренко. Радиоактивные характеристики облученного ядерного топлива. Справочник. М.: Энергоиздат, 1983.
  22. Схемы распада радионуклидов. Энергия и интенсивность излучения. М.: Энергоатомиздат, 1987.
  23. Yukhnovskii I.R., Tokarchuk M.V. The problems of the 4th powerblock of Chernobyl NPS I. Review. Lviv, 1995. Preprint ICMP-95-3U, 40 p.
  24. Anderson E.B., Borovoi A.A., Burakov B.E., Krinitsyn A.P., Pazu-khin E.M., Checherov K.P. Technogeneous products of interaction of fuel and constructing materials, obtained after Chernobyl disaster. // *Radiohimiya*, 1992, No 5, с. 144-155 (in Russian).
  25. Kiselyov A.N., Nenaglyadov A.Yu., Surin A.I. et al. Experimental researches in lava-shaped fuel containing mediums at the 4th block of Chernobyl Atomic Power Station. Moscow, 1992, 120 p. Preprint of Atomic Power Institute - 5533/3 (in Russian).
  26. Development of method and estimation of the contribution of  $(\alpha, n)$  reactions in neutron intensity generated in lava-like fuel containing masses in premises 305/2 and 304/2 of the object "Shelter". Report, Minks, 1994, 77 p (in Russian).
  27. Calculation and experimental investigations of neutron fields characteristics in the places of accumulation of lava-shaped fuel containing masses inside premises 304/2 and 305/2 of the object "Shelter". Report, Minsk, 1994, 77 p (in Russian). An estimate of  $(\alpha, n)$  reaction contribution into neutron intensity, generated inside fuel containing materials in premises

- 305/2 of the object "Shelter". Technical certificate. Minsk, 1995, Sci. Ind. Center "Kamerton", p. 1-6 (in Russian).
28. Юхновський І.Р., Токарчук М.В., Кобрин О.Є., Дмитрів Г.С., Гуменик Й.А. Аналіз хемічних реакцій  $\alpha$ -радіолізу, гідролізу та комплексоутворень у лужних розчинах об'єкта "Укриття". Дослідження коефіцієнтів переносу йонів  $UO_2^{2+}$ ,  $PuO_2^{2+}$  у водних розчинах // Журн. фіз. досл., 1999. Т.3, N 2, С.224-236.
  29. Владимирова В.М. Радиационная химия актиноидов. М.: Энергоатомиздат, 1983, 187с.
  30. Колтунов В.С. Кинетика реакций актиноидов. М.: Атомиздат, 1974, 312с.
  31. Вдовенко В.М. Современная радиохимия. М.: Атомиздат, 1969, 542с.
  32. Переработка ядерного горючего. Под ред. С. Столера и Р. Ричардса. М.: Атомиздат, 1964.
  33. Вдовенко В.М. Химия урана и трансураниевых элементов. М.-Л. Изд.АН СССР, 1960, 698с.
  34. Громов Б.В., Судариков Б.Н. и др. Химическая технология облученного ядерного топлива. М.: Атомиздат, 1971, 448с.
  35. Nitsche H. and Brendler V. Radionuclide Migration and Transport in the Vadose Zone: R&D Needs in Measurement and Modeling. Forschung. Rossendorf e.v. Inst. of Radioch., Dresden, Germany, 1998, 13p.
  36. Yukhnovskii I.R., Tokarchuk M.V., Zhelem R.I. Physical processes in the fuel containing masses interacting with aqueous solutions in the object "Shelter". Inhomogeneous diffusion of ions  $UO_2^{2+}$ ,  $Cs^+$  in the system "glassy nuclear magma - water". // Cond.Matt.Phys.,1999, V.2, No 2(18), p.351-360.
  37. Пологих В.Г., Курносков В.А., Аден В.Г., Черкашов Ю.В., Римский-Корсаков А.А., Поляков А.С. Заключение экспертов МСМ СССР, утв Рябевым Л.Д., 24.05.86., 1986, 4с.
  38. Киселев А.Н., Ненаглядов А.Ю., Сурин А.И., Чечеров К.П. Лавообразные топливосодержащие массы. Сб. докл. в 2-х т.т. "Уроки Чернобыля, Технические аспекты". Международный семинар 15-19 апреля, 1996г. Десногорск, Смоленская АЭС, Т.2, с.280-292.
  39. Киселев А.Н., Сурин А.И., Чечеров К.П. Результаты дополнительных исследований мест скопления лавообразных топливосодержащих масс на 4-м блоке Чернобыльской АЭС. - Москва, ЗНЦ "Курчатовский институт"- Препринт ИАЭ-5783/3, 1994, 59с.
  40. Киселев А.Н., Сурин А.И., Чечеров К.П. Послеаварийное обследование реактора 4-го энергоблока Чернобыльской АЭС.// Атом. энерг., 1996, Т. 80, вып. 4, с.240-247.
  41. Пахомов С.А., Кривохатский А.С., Соколов И.А. Оценка величины мгновенного энерговыделения при аварии реактора на ЧАЭС, основанная на определении соотношения активностей ксенона - 133 и ксенона - 133m в воздухе. // Радиохимия, 1991, Т. 33, No 6, с.125-132.
  42. Чечеров К.П. О физической природе, мощности и центре очага взрыва

- 26.04.86. на 4-ом энергоблока ЧАЭС. Международная конференция "Наука-Чернобыль 98", МЧС Украины, Киев, 1-2 апреля 1999г.
43. Дубовский Б.Г. Причины чернобыльской аварии 1986г. 10 лет после Чернобыля. Сб. информационных материалов ЯО Росси, М., 1996, с.59-60.

Препринти Інституту фізики конденсованих систем НАН України розповсюджуються серед наукових та інформаційних установ. Вони також доступні по електронній комп'ютерній мережі на WWW-сервері інституту за адресою <http://www.icmp.lviv.ua/>

The preprints of the Institute for Condensed Matter Physics of the National Academy of Sciences of Ukraine are distributed to scientific and informational institutions. They also are available by computer network from Institute's WWW server (<http://www.icmp.lviv.ua/>)

Сергій Борисович Кумшаєв  
Константин Павлович Чечеров  
Михайло Васильович Токарчук  
Олександр Євгенійович Кобрин

ДО ПРОБЛЕМ МОНИТОРИНГУ ВОДНИХ РОЗЧИНІВ РАДІОАКТИВНИХ  
ЕЛЕМЕНТІВ В ЗОНІ ВІДЧУЖЕННЯ. I. ОБ'ЄКТ "УКРИТТЯ"

Роботу отримано 28 лютого 2000 р.

Затверджено до друку Вченою радою ІФКС НАН України

Рекомендовано до друку семінаром відділу теорії нерівноважних процесів

Виготовлено при ІФКС НАН України

© Усі права застережені