О. О. Одінцов, В. Є. Хан, Л. А. Паламар, П. В. Сабенін, Л. Б. Чикур

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

Динаміка змін об'ємів і радіаційних характеристик радіоактивно забрудненої води в об'єкті «Укриття» в умовах нового безпечного конфайнмента

Ключові слова:

об'єкт «Укриття»,
радіонукліди,
уран,
рідкі радіоактивні відходи,
новий безпечний конфайнмент

Представлено експериментальні визначення об'ємів і радіаційних характеристик радіоактивно забрудненої води в неорганізованих скупченнях рідких радіоактивних відходів на нижніх позначках об'єкта «Укриття» після встановлення нового безпечного конфайнмента (НБК) у проектне положення. Досліджено динаміку зменшення об'ємів радіоактивно забрудненої води на нижніх позначках НБК об'єкта «Укриття». За період грудень 2016 – червень 2020 рр. об'єми радіоактивно забрудненої води в приміщеннях 017/2, 012/5–8 і 012/13–16 знизилися більше, ніж у 10 разів. У приміщеннях 009/4, 013/2, 014/2 та 210/5–7 вода висохла повністю. Зменшення об'ємів радіоактивно забрудненої води відбувається за рахунок випаровування води в осінньо-зимові сезони й не компенсується утворенням конденсаційної вологи в літні періоди. Наведено дані регулярного моніторингу вмісту урану, макрокомпонентів та радіонуклідів у радіоактивно забрудненій воді в приміщеннях на нижніх позначках НБК об'єкта «Укриття». У результаті випаровування води концентрації макрокомпонентів і урану, а також об'ємні активності радіонуклідів ^{90}Sr , ^{137}Cs , $^{238, 239, 240}\text{Pu}$ і ^{241}Am в радіоактивно забрудненій воді об'єкта «Укриття» значно збільшилися. Об'ємні активності радіонуклідів становлять: $^{90}\text{Sr} - n \cdot 10^9$, $^{137}\text{Cs} - n \cdot 10^{10}$, $^{154}\text{Eu} - n \cdot 10^6$, $^{239 + 240}\text{Pu} - n \cdot 10^6$, $^{241}\text{Am} - n \cdot 10^7$ Бк/м³.

Вступ

У листопаді 2016 р. «Арка» нового безпечного конфайнмента (НБК) була встановлена в проектне положення над об'єктом «Укриття». Установлення НБК у проектне положення зумовило зміни режиму надходження води в підпокрівельний простір об'єкта «Укриття». У першу чергу було припинено надходження атмосферних опадів у вигляді дощу в літні періоди та снігу взимку. Змінилися умови вентиляції приміщень об'єкта «Укриття» та температурно-вологісного режиму в ньому. Це призвело до значних змін умов утворень неорганізованих скупчень

радіоактивно забрудненої води (РЗВ) у приміщеннях НБК об'єкта «Укриття». До встановлення «Арки» НБК у проектне положення основними джерелами надходження води в об'єкт «Укриття» були атмосферні опади, конденсаційна волога і технологічні розчини, які надходять у його підпокрівельний простір під час сеансів пилопригнічення [1–8]. Середньорічне надходження атмосферних опадів у підпокрівельний простір становило приблизно 1 700 м³. Розрахункові значення утворень конденсаційної вологи в приміщеннях об'єкта «Укриття», зроблені в роботі [2], припускали, що в літній період може утворюватися до 340 м³ конденсату. Під час проведення сеансів пило-

© О. О. Одінцов, В. Є. Хан, Л. А. Паламар, П. В. Сабенін, Л. Б. Чикур, 2021

пригнічення у 2008–2014 рр. щорічно надходило 95 м³ локалізуючого і промивного розчину. У приміщеннях об'єкта «Укриття» на позначках нижче +12,5 м постійно знаходилось, залежно від сезону, 330–350 м³ РЗВ. Основна кількість РЗВ (приблизно 270 м³) локалізована в приміщенні 001/3 допоміжних систем реакторного відділення (ДСРВ). У приміщеннях басейна-барботера (ББ) на позначках – 0,65 м і +2,20 м постійно знаходилося 40–50 м³ РЗВ.

Радіаційні характеристики та макрокомпонентний склад РЗВ у приміщеннях 001/3, 01/3, 009/4, 061/2, 014/2, 017/2, 012/5–8 і 012/13–16 до встановлення НБК у проектне положення добре вивчені в роботах [4–6]. За об'ємною активністю радіонуклідів ⁹⁰Sr і ¹³⁷Cs в неорганізованих водних скупченнях на нижніх позначках об'єкта «Укриття» ця вода може бути віднесена до середньоактивних рідких радіоактивних відходів. Основна кількість радіонуклідів потрапляє в РЗВ унаслідок вилуговування їх із лавоподібних паливовмісних матеріалів (ЛПВМ) водою, яка має лужне середовище та великий вміст карбонатів і гідрокарбонатів.

Питання ядерної та радіаційної безпеки скупчень РЗВ у приміщенні 001/3 розглянуті в роботах [7, 8]. Інтерес до цього приміщення обумовлений декількома причинами: у ньому акумулюється більша частина РЗВ, які утворюються в об'єкті «Укриття». Із приміщення 001/3 4-го блока ЧАЕС потік РЗВ постійно просочується через стіну, яка розділяє це приміщення по осі 41, у приміщення 001/3 ДСРВ 3-го блока. У приміщенні 001/3 зосереджена більша частина донних відкладень об'єкта «Укриття» (за різними оцінками від 65 до 90 м³), що акумулюють уран, продукти розподілу і трансуранові елементи (ТУЕ), а також матеріали, що діляться, ²³⁵U і ²³⁹Pu. До встановлення «Арки» НБК у проектне положення над об'єктом «Укриття» скупчення рідких радіоактивних відходів та донні відкладення є ядерно безпечними [7]. Уран та більша частина ¹³⁷Cs знаходяться в розчинному стані, ТУЕ і ⁹⁰Sr пов'язані в основному з дисперсними частинками різних розмірів від 0,01 до 3 мкм [9].

Висихання скупчень РЗВ призводить до утворення високоактивних донних відкладень у приміщеннях на нижніх позначках НБК об'єкта «Укриття». Вторинний вітровий підйом високодисперсної фракції донних відкладень визначає радіонуклідний склад і фізико-хімічні властивості радіоактивних аерозолів у приміщеннях 012/7 і 012/15 [10, 11].

Мета роботи — вивчити динаміку змін об'ємів РЗВ, концентрації урану, макрокомпонентів і об'єм-

ної активності радіонуклідів у неорганізованих скупченнях РЗВ у приміщеннях на нижніх позначках об'єкта «Укриття» в умовах експлуатації НБК за період 2017–2020 рр.

Моніторинг змін об'ємів РЗВ

На рис. 1–3 вказані місця локалізації водних скупчень і точки контролю глибини РЗВ на планах приміщень 4-го блока ЧАЕС на позначках 0,00, +3,00 і +6,00 м до встановлення НБК у проектне положення (рис. 1, а; 2, а; 3, а) та станом на липень 2020 р. (рис. 1, б; 2, б; 3, б).

Найбільші скупчення РЗВ знаходяться в приміщенні 001/3 ДСРВ на позначці –2,60 м. Об'єм цього скупчення оцінюється приблизно в 270 м³. Вода з приміщення 001/3 просочується крізь роздільну стіну по осі 41 у приміщення 001/3 ДСРВ 3-го блока ЧАЕС. На сьогодні встановлення «Арки» НБК над об'єктом «Укриття» практично не вплинуло на зміну кількості РЗВ у приміщенні 001/3. Більша частина водних протікань збирається в приміщенні 001/3, розташованому між рядами У і У₁ та осями 42 і 51. Довжина приміщення становить 57 м, ширина до позначки –1,48 — 6 м. На позначці –2,60 м ширина підлоги становить 3 м за рахунок ухилу з боку ряду У. Вода в приміщення 001/3 надходила зі свердловини 2.1–116, що пробурена з приміщення 001/3 в північному напрямку під каскадною стіною (низькоактивні РЗВ), із труби, виведеної з паророзподільного коридору (ПРК) у приміщення 01/3 (високоактивні РЗВ) та з північної частини приміщень 012/5–8 (високоактивні РЗВ). Перетікання РЗВ із ББ у приміщення 001/3 і, як наслідок, підвищення концентрації радіонуклідів до встановлення «Арки» НБК відбувалося в основному в період інтенсивного надходження вологи в об'єкт «Укриття» у весняно-літній період. З другої половини 2013 р. просочування зі сторони каскадної стіни через свердловину 2.1–116 різко зменшилося і за період 2014–2018 рр. повністю припинилось.

Вода в приміщення 009/4 (див. рис. 1) надходила із розташованих вище приміщень 207/4–5 на позначці +6,00, а також за рахунок конденсату, який утворюється у весняно-літній період. У листопаді 2016 р. перед установленням «Арки» НБК глибина водного скупчення в приміщенні 009/4 становила 16 см. У 2017 р. глибина водного скупчення знаходилася на рівні 9–11 см. У період з 2018 по лютий 2019 р. кількість РЗВ у приміщенні 009/4 значно зменшилася. Глибина водного скупчення в лютому 2019 р. становила 0,5 см,

Рис. 1. План-схема розташування скупчень РЗВ і точки вимірювання глибини води в приміщеннях об'єкта «Укриття» на позначці 0,00 м у 2016 р. (а) та 2020 р. (б)

при цьому значно зменшилася площа водного скупчення. У березні 2019 р. скупчення РЗВ у приміщенні 009/4 повністю висохло.

Водне скупчення в північній частині приміщень 012/5–8 (див. рис. 1, а) (ряди П–Т, позначка –0,65) формується в результаті просочувань із розташованих вище приміщень другого поверху ББ і ПРК, а також за рахунок конденсації вологи в літній період. Кількість води в цих приміщеннях за останні роки підтверджена значними коливаннями. Постійно вода знаходиться в північній частині приміщень 012/6–8 у напрямках на позначці –0,95 м. У листопаді 2016 р. глибина води в напрямках приміщень 012/6–8 становила 29 см. У період 2017–2020 рр. глибина води в напрямках приміщень 012/6–8 змінюється від 23 до 26 см. У вересні 2020 р. глибина води в напрямку приміщення 012/6 була 23,8 см. Площа напрямку дорівнює 9 м², тобто об'єм РЗВ становив приблизно 2,1 м³.

Водне скупчення в південній частині приміщень 012/5–8 ББ (ряди Г–Ж, позначка –0,65) формується за рахунок просочень із розташованих вище приміщень 12/13–16 другого поверху ББ і приміщень ПРК, а також за рахунок конденсації вологи в літній період. Крім того, у приміщення 012/8 через колектор з позначки +9,00 м надходять РЗВ зі свердловин у приміщеннях 207/4–5. Колір води визначається наявністю розчину для пилопригнічення. Скупчення в цих приміщеннях є малопроточними. На початку червня

2018 р. вода у приміщенні 012/8 практично висохла (див. рис. 1, б). Унаслідок конденсації вологи за період серпень — вересень у приміщеннях 012/5–8 з'явилися скупчення води площею до 10–15 м² і глибиною від 0,5 до 1,0 см. Об'єми скупчень регулюються процесами випаровування та конденсації.

У східній частині блока Б водні скупчення до насування «Арки» НБК спостерігалися в приміщеннях 013/2, 014/2, у південній частині коридору 017/2 і 018/2. Ці скупчення РЗВ формувалися за рахунок надходжень води з верхніх позначок об'єкта «Укриття». Рівень води в південній частині приміщення 017/2 визначається висотою порога дверного отвору в приміщенні 018/2. У період з січня 2017 р. по вересень 2020 р. рівень води в приміщенні 017/2 знизився з 23 до 0,5 см. У приміщеннях 013/2, 014/2 і 018/2 в січні 2018 р. скупчення РЗВ повністю висохли.

Водне скупчення в північній частині приміщення 012/13 ББ (ряди П–Т, позначка +2,20) (рис. 2, а), можливо, формується за рахунок протікань технологічної води з комунікацій водопостачання об'єкта «Укриття». На стелі і залізних трубопроводах у приміщеннях 012/13–16 у літні місяці (червень — вересень) знаходиться велика кількість конденсаційної вологи, аналогічна картина спостерігається і в приміщеннях 012/13–15 у південній і північній частинах цих приміщень. У центральних частинах приміщень ББ (ряди Ж–П) сухо, конденсаційна волога відсутня.

Рис. 2. План-схема розташування скупчень РЗВ і точки вимірювання глибини водних скупчень у приміщеннях об'єкта «Укриття» на позначці +3,00 м у 2016 р. (а) та 2020 р. (б)

За період превалювання процесу випаровування площа водних скупчень значно скорочується. Як видно на рис. 2, б, у північній частині приміщень 012/14–16 і південній частині приміщення 012/13–16 у 2020 р. вода відсутня. Висихання скупчень РЗВ відбулося за рахунок випаровування води. Конденсат, який утворюється в літні місяці, не компенсує об'єми води, яка випаровується в зимовий час.

У південній частині приміщень 012/13–16 ББ (ряди Г–Ж, позначка +2,20) спостерігалось постійне скупчення води (див. рис. 2, а). Об'єм води в цих приміщеннях до встановлення «Арки» НБК у проектне положення змінювався залежно від сезону року та кількості атмосферних опадів від 25 до 34 м³ [5].

У південній частині приміщень 210/5–7 ПРК (рис. 3, а) до 2018 р. спостерігалось скупчення РЗВ сумарним об'ємом до 10 м³. Контроль скупчень РЗВ у цих приміщеннях ускладнюється високим рівнем гамма-випромінювання від скупчень ЛПВМ. Імовірно напрямлення витоку в розташовані нижче приміщення ББ. З початку травня 2018 р. (див. рис. 3, б) вода в приміщенні 210/7 була відсутня. Оскільки можливих шляхів перетоків води з цих приміщень не виявлено, то найімовірніше відбулося випаровування води до повного висихання.

Велике водне скупчення на позначці +6,00 об'ємом більше 8 м³ до встановлення «Арки» НБК знаходилося в південній частині приміщення 061/2 (див.

рис. 3, а). Це скупчення формувалося за рахунок протікання води (у тому числі пилопригнічувального розчину) з верхніх позначок у північну частину приміщення і далі по схилу бетонного напливу в південному напрямку. За рахунок процесу сезонної кристалізації вода у скупченнях залишалася безбарвною та прозорою до моменту надходження протікань пилопригнічувального розчину. Висота шару води біля південної стіни приміщення могла сягати 40 см, у жовтні 2016 р. рівень води в приміщенні 061/2 був близько 20 см. У 2018 р. це скупчення РЗВ повністю висохло (див. рис. 3, б).

Протягом останніх 10 років рівень води в контрольній точці (осі 49–50, ряд У–У₁) близько 1,1 м і практично не змінюється (рис. 4).

Динаміка зміни глибин водних скупчень у приміщеннях 009/4, 012/6 (прямки на позначці –0,95), 012/8, 017/2, 012/13 і 012/16 після встановлення «Арки» НБК у проектне положення показана на рис. 5. У приміщеннях 009/4, 012/8, 017/2 і 012/16 спостерігається зменшення об'ємів водних скупчень аж до повного висихання. У літні місяці за рахунок утворення конденсаційної вологи рівні води в приміщеннях підвищуються. У приміщенні 012/8 (південна частина) до березня 2018 р. вода висохла, проте у вересні — листопаді 2018 р. за рахунок конденсації утворилися невеликі скупчення РЗВ сумарним об'ємом до 0,1 м³.

Рис. 3. План розташування скупчень РЗВ і точки вимірювання глибини водних скупчень у приміщеннях об'єкта «Укриття» на позначці +6,00 у 2016 р. (а) та 2020 р. (б)

Слід відзначити, що в приміщеннях 012/6 (приямки на позначці $-0,95$ м) і 012/13, які розташовані в північно-західній частині НБК об'єкта «Укриття» на позначках $-0,65$ і $+2,20$ м, а також у приміщенні 001/3 глибина водних скупчень змінюється несуттєво й кількість РЗВ залишається приблизно такою самою, як і до встановлення НБК у проектне положення. У цих скупченнях майже не спостерігається сезонних змін об'ємів РЗВ за рахунок процесів випаровування та конденсації. Можна припустити, що це пов'язано з постійним надходженням води із системи водопостачання або збирання трапних вод об'єкта «Укриття».

Рис. 4. Глибина води в приміщенні 001/3 ДСРВ 4-го блока ЧАЕС

Рис. 5. Глибина водних скупчень у приміщеннях НБК об'єкта «Укриття»

У таблиці наведено результати визначення об'ємів РЗВ у приміщеннях НБК об'єкта «Укриття» в листопаді 2016 р. і липні 2020 р. Кількість РЗВ на нижніх позначках об'єкта «Укриття» до встановлення НБК становила приблизно 340 м^3 . За три з половиною роки експлуатації НБК кількість РЗВ знизилася до 277 м^3 . Загальний об'єм РЗВ на нижніх позначках НБК об'єкта «Укриття» зменшився більш ніж на 66 м^3 передусім за рахунок випаровування води.

Об'єми основних водних скупчень у приміщеннях НБК об'єкта «Укриття»

Приміщення	Позначка	Вісь	Ряд	Об'єм води, м ³	
				2016 р.	2020 р.
012/5–8	–0,65	45–49	Г–Ж	17	0
012/5–8	–0,65	45–49	П–Т	9,5	6,4
009/4	–0,65	49–50	Ж–И	3,2	0
012/13–16	2,20	45–49	Г–Ж	25	0
012/13–16	2,20	45–49	П–Т	3,1	0,75
013/2	0,00	44–45	Г–Е	1,2	0
014/2	0,00	44–45	Ж–И	0,2	0
017/2	0,00	43–44	Г–Е	5,4	0,02
018/2	0,00	42–43	Г–И	0,1	0
061/2	6,00	41–42	Е–Ж	3,6	0
001/3	–2,60	41–52	У–У1	275	270
Сумарний об'єм				343	277

Динаміку змін об'ємів води в неорганізованих водних скупченнях на нижніх позначках об'єкта «Укриття» після встановлення «Арки» НБК у проектне положення показано на рис. 6. Як впливає з рисунка, за період з грудня 2016 р. (коли об'єм РЗВ становив близько 340 м³) по липень 2017 р. спостерігалось зменшення об'ємів РЗВ за рахунок випаровування й перетоку на 3-й блок. Надалі після періоду наростання об'єму водних скупчень, унаслідок конденсації вологи та проведення сеансів пілопригнічення, зниження об'єму РЗВ у НБК об'єкта «Укриття» продовжилося до червня 2018 р. і зменшилося до 290 м³. У деяких приміщеннях, де до встановлення «Арки» НБК у проектне положення завжди були присутні скупчення РЗВ, у червні 2018 р. вода повністю була відсутня. Аналогічна картина спостерігалась й у 2019–2020 рр.

У приміщеннях 012/6–8 (північна частина ряди С–Т) вода залишалася тільки в приямках на позначці –0,95 м (див. рис. 1, 6). Рівень води в приямках також понизився з 31 до 23 см. Варто відзначити, що в приміщенні 001/3 кількість РЗВ залишається практично постійною — близько 270 м³. Зменшення об'ємів РЗВ відбулося внаслідок перетоку з одного приміщення до другого і в основному за рахунок випаровування.

У приміщеннях 009/4 013/2, 014/2, 017/2, 018/2, 061/2, 012/5–8 (південна частина), 012/14–16 (північна частина) і 210/7–9 до вересня 2020 р. вода повністю висохла. У залишкових скупченнях РЗВ за винятком скупчень у приміщенні 001/3 спостерігається

збільшення концентрації урану, макрокомпонентів і об'ємних активностей радіонуклідів ⁹⁰Sr, ¹³⁷Cs, ¹⁵⁴Eu, ²³⁸Pu, ²³⁹⁺²⁴⁰Pu та ²⁴¹Am за рахунок концентрації внаслідок випаровування води.

На рис. 7 показано залежність об'ємів РЗВ від часу, що пройшов після встановлення НБК у проектне положення. Часовий інтервал становить 44 місяці з моменту встановлення «Арки» над об'єктом «Укриття». Крива зменшення об'ємів РЗВ добре описується експоненціальним рівнянням R² 0,923.

На рис. 8 показано можливий шлях надходження води із приміщення 012/13 (позначка +2,20 м) у приміщення 012/6 (позначка –0,95 м) і далі в приміщення 001/3 на позначці –2,60 м. Джерело надходження води в приміщення 012/13 на сьогоднішній день не

Рис. 6. Динаміка змін об'ємів РЗВ у приміщеннях на нижніх позначках НБК об'єкта «Укриття»

виявлено. Найвірогідніше, вода в приміщення 012/13 надходить з ушкоджених технологічних комунікацій водопостачання і/або системи збирання трапної води об'єкта «Укриття».

Рис. 7. Залежність об'ємів РЗВ від часу після встановлення «Арки» НБК

Рис. 8. Вертикальний розріз приміщень 012/6 і 012/13 (північна частина, ряди П–У1)

Контроль зміни концентрації урану та об'ємної активності радіонуклідів в РЗВ НБК об'єкта «Укриття»

Активність ^{137}Cs , ^{154}Eu і ^{241}Am у зразках РЗВ визначали на гамма-спектрометрі, який складається з багатоканального аналізатора (16К) фірми Canberra і германієвого детектора GX2018 (Canberra) з берилієвим вікном. Об'ємну активність ^{90}Sr вимірювали на бета-радіометрі після виділення за осаджувальною методикою [12]. Визначення об'ємних активностей радіонуклідів $^{234-238}\text{U}$, $^{238-240}\text{Pu}$ і ^{241}Am виконували альфа-спектрометричними вимірюваннями на альфа-спектрометрі фірми ORTEC після виділення фракцій урану, плутонію та америцію за іонообмінною методикою [13].

Динаміку змін концентрації урану в РЗВ приміщень 012/6 (північна частина, точка обстеження (т. о.) проб води 31), 012/7 (південна частина, т. о. 32), 012/13 (північна частина, т. о. 21) і 012/16 (південна частина, т. о. 6) у період 2016–2020 рр. показано на рис. 9. Як видно з рисунка, у приміщеннях 012/7 (т. о. 32) і 012/16 (т. о. 6) після встановлення «Арки» НБК над об'єктом «Укриття», унаслідок випаровування води, концентрації урану збільшилися до значення більше 150 г/м^3 . В умовах лугового карбонатного середовища уран знаходиться у вигляді комплексних з'єднань, що добре розчиняються у воді $[(\text{UO}_2)(\text{CO}_3)_2(\text{H}_2\text{O})_2]$ і $[(\text{UO}_2)(\text{CO}_3)_3]^{4-}$ [14]. У РЗВ приміщень 012/13 і 012/6 концентрація урану практично не змінюється й знаходиться приблизно на тому самому рівні: $2\text{--}3 \text{ г/м}^3$ у приміщенні 012/13 і $25\text{--}35 \text{ г/м}^3$ у приміщенні 012/6.

На рис. 10–13 показано зміни об'ємних активностей ^{90}Sr , ^{137}Cs , $^{239+240}\text{Pu}$ і ^{241}Am в РЗВ приміщень 012/6

(північна частина, т. о. 31), 012/7 (південна частина, т. о. 32), 012/13 (північна частина, т. о. 21) і 012/16 (південна частина, т. о. 6) за період 2016–2020 рр.

Об'ємна активність ^{90}Sr (рис. 10) значно збільшилась до моменту повного висихання в приміщенні 012/7 (т. о. 32) і в лютому 2018 р. дорівнювала $2,5 \cdot 10^{10} \text{ Бк/м}^3$. У РЗВ приміщення 012/16 (т. о. 6) в умовах зменшення об'єму води за рахунок випарувань об'ємна активність ^{90}Sr збільшилася дещо менше, ніж у приміщенні 012/7, і становила в березні 2020 р. $3,8 \cdot 10^9 \text{ Бк/м}^3$. Імовірно, це обумовлено утворюванням сполук, які важко розчиняються у воді, а саме карбонатів кальцію в умовах збільшення концентрації катіонів Ca^{2+} і аніонів CO_3^{2-} за рахунок випаровування води і співосадження карбонатів стронцію (^{90}Sr)

Рис. 9. Концентрація урану в РЗВ приміщень 012/6 (т. о. 31), 012/7 (т. о. 32), 012/13 (т. о. 21) і 012/16 (т. о. 6)

і кальцію. У приміщеннях 012/6 і 012/13 змін об'ємної активності ^{90}Sr за період експлуатації НБК з 2017 р. по липень 2020 р. не спостерігалось. Об'ємна активність ^{90}Sr в РЗВ приміщень 012/6 і 012/13– $2,5\text{--}4,2 \cdot 10^9 \text{ Бк/м}^3$ та $1,5\text{--}2,7 \cdot 10^7 \text{ Бк/м}^3$ відповідно.

Рис. 10. Об'ємна активність ^{90}Sr в РЗВ приміщень 012/6 (т. о. 31), 012/7 (т. о. 32), 012/13 (т. о. 21) і 012/16 (т. о. 6)

Об'ємна активність ^{137}Cs (рис. 11) у РЗВ приміщень 012/7 і 012/16 також значно збільшилася до значень

Рис. 11. Об'ємна активність ^{137}Cs в РЗВ приміщень 012/6 (т. о. 31), 012/7 (т. о. 32), 012/13 (т. о. 21) і 012/16 (т. о. 6)

$7,5 \cdot 10^{10}$ і $1,4 \cdot 10^{11}$ Бк/м³ відповідно. У РЗВ приміщень 012/6 і 012/13 об'ємна активність ^{137}Cs знаходилася на тому ж рівні, що й до встановлення «Арки» НБК у проектне положення: 012/6– $2,7 \cdot 10^{10}$ Бк/м³ і 012/13– $5,2 \cdot 10^9$ Бк/м³.

Об'ємна активність $^{239+240}\text{Pu}$ (рис. 12) у РЗВ приміщень 012/7 і 012/16 збільшилася майже на порядок і становила в приміщенні 012/7 у лютому 2018 р. $5,6 \cdot 10^6$ Бк/м³, а в приміщенні 012/16 у березні 2020 р. $1,5 \cdot 10^7$ Бк/м³. У РЗВ приміщень 012/6 і 012/13 спостерігається зменшення об'ємної активності $^{239+240}\text{Pu}$ в 2–3 рази. Об'ємна активність $^{239+240}\text{Pu}$ у червні 2020 р. становила в приміщеннях 012/6 і 012/13 $1,1 \cdot 10^6$ і $2,1 \cdot 10^5$ Бк/м³ відповідно. Імовірно, зменшення об'ємної активності $^{239+240}\text{Pu}$ в РЗВ приміщень 012/6 і 012/13 відбувається за рахунок надходження води з низьким вмістом радіонуклідів.

Об'ємна активність ^{241}Am у РЗВ приміщень 012/7 і 012/16 також збільшилася на порядок і досягла значень $1,1 \cdot 10^8$ і $9,2 \cdot 10^7$ Бк/м³ (рис. 13). У РЗВ приміщень 012/6 і 012/13 спостерігається зменшення об'ємної активності ^{241}Am в 4–5 разів.

Рис. 12. Об'ємна активність $^{239+240}\text{Pu}$ в РЗВ приміщень 012/6 (т. о. 31), 012/7 (т. о. 32), 012/13 (т. о. 21) і 012/16 (т. о. 6)

Слід зазначити, що в приміщеннях 012/6 і 012/13, де кількість РЗВ практично не змінюється, спостерігається постійна об'ємна активність ^{137}Cs (див. рис. 11). При цьому об'ємна активність ^{90}Sr (див. рис. 10) у приміщенні 012/6 зменшується, об'ємна активність $^{239+240}\text{Pu}$ і ^{241}Am у приміщеннях 012/6 і 012/13 помітно зменшується (див. рис. 12 і 13). Добре відомо [15], що частка розчиненого ^{137}Cs , що перебуває в катіонній формі, становить 97,6–99,5 % загального змісту ^{137}Cs в РЗВ об'єкта «Укриття». Частка твердої фази з розміром часток >1 мкм у сумарній активності ^{137}Cs у воді 0,01–0,94 %, а частка часток розміром 0,1–1 мкм $\sim 0,09$ –0,38 %. На колоїдних частках розміром 0,01–0,1 мкм зосереджено 0,31–1,35 % сумарної активності ^{137}Cs у воді. Частка розчиненого ^{90}Sr , що перебуває в катіонній формі, 74–95 % загальної активності ^{90}Sr у РЗВ об'єкта «Укриття». Частка твердої фази з розміром часток більше 1 мкм у сумарній активності ^{90}Sr у воді 2,4–9,2 %, а частка часток розміром 0,1–1 мкм становить $\sim 0,9$ –10,8 %. На колоїдних частках знаходиться 0,4–6,9 % сумарної активності ^{90}Sr у РЗВ.

Частка розчиненого $^{239+240}\text{Pu}$ становить 2,9–47,0 % загальної активності $^{239+240}\text{Pu}$ у РЗВ. Частка твердої фази з розміром часток >1 мкм у сумарній активності ізотопів плутонію у воді 11–69 %, а частка часток розміром 0,1–1 мкм ~ 15 –41 %. На колоїдних частках знаходиться 0,9–28 % сумарної активності $^{239+240}\text{Pu}$ у РЗВ. Частка розчиненого ^{241}Am становить 0,3–20 % загальної активності ^{241}Am у РЗВ. Частка твердої фази з розміром часток >1 мкм у сумарній активності ^{241}Am у воді 18–73 %, а частка часток розміром 0,1–1 мкм ~ 20 –65 %. На колоїдних частках знаходиться 0,6–19 % сумарного вмісту ^{241}Am у РЗВ. Тому зниження об'ємної активності $^{239+240}\text{Pu}$ і ^{241}Am з часом у приміщеннях 012/6 і 012/13 можливе за рахунок осадження твердої фази з розміром часток >1 мкм і часток розміром 0,1–1 мкм.

Рис. 13. Об'ємна активність ^{241}Am в РЗВ приміщень 012/6 (т. о. 31), 012/7 (т. о. 32), 012/13 (т. о. 21) і 012/16 (т. о. 6)

Найімовірніше, зменшення активності $^{239+240}\text{Pu}$ і ^{241}Am відбувається за рахунок утворення важкорозчинних гідроксидів $\text{Pu}(\text{OH})_4$ і $\text{Am}(\text{OH})_3$, їхньої коагуляції та осадження спільно з гідроксидами макрокомпонентів, наприклад з гідроксидом $\text{Fe}(\text{OH})_3$. У водних розчинах стан ТУЕ та урану обумовлений процесами гідролізу. Ці процеси зводяться до утворення на першій стадії моноядерного гідроксокомплексу, а потім і поліядерного продукту гідролізу. Можуть також утворюватися й оксокомплекси за рахунок взаємодії моноядерних гідроксокомплексів або в разі відщеплення іонів водню від поліядерних продуктів гідролізу. Швидкість процесу гідролізу визначається другою стадією — утворенням поліядерних гідроксо- і оксокомплексів. Наслідком процесу гідролізу є присутність у розчині як розчинених моно- і поліядерних комплексів різного ступеня ядерності, так і нерозчинних частинок полімерів колоїдних розмірів і опадів, що сприяє зниженню об'ємної активності $^{239+240}\text{Pu}$ і ^{241}Am у РЗВ.

На рис. 14 наведено концентрації урану в РЗВ приміщень 017/2 і 001/3 за період 2016–2020 рр. Після встановлення НБК у проектне положення концентрація урану в РЗВ приміщення 001/3 знизилась з 10 до 7 г/м³. У воді приміщення 017/2 на фоні постійного зменшення об'ємів РЗВ концентрація урану виросла у 100 разів, з 0,5 до 50 г/м³. Значне збільшення концентрації урану в приміщенні 017/2 почалося з травня 2018 р.

Рис. 14. Концентрація урану в РЗВ приміщень 017/2 (т. о. 18) і 001/3 (т. о. 30)

Динаміка збільшення об'ємних активностей радіонуклідів ^{90}Sr , ^{137}Cs , $^{239+240}\text{Pu}$ і ^{241}Am в РЗВ приміщень 017/2 показана на рис. 15. Об'ємна активність ^{90}Sr збільшилася в 5 разів до величини $1,7 \cdot 10^8$ Бк/м³. Об'ємна активність ^{137}Cs збільшилася в 7 разів до величини $1,9 \cdot 10^{10}$ Бк/м³. Об'ємна активність $^{239+240}\text{Pu}$ збільшилася у 8 разів до величини $4,2 \cdot 10^6$ Бк/м³. Об'ємна активність ^{241}Am збільшилася в 5 разів до величини $4,9 \cdot 10^6$ Бк/м³.

Рис. 15. Об'ємна активність ^{90}Sr , ^{137}Cs , $^{239+240}\text{Pu}$ і ^{241}Am в РЗВ приміщення 017/2

Як видно на рис. 16, об'ємна активність ^{137}Cs в РЗВ приміщення 001/3 практично не змінюється і знаходиться на рівні $7 \cdot 10^9$ – $1,1 \cdot 10^{10}$ Бк/м³. Об'ємні активності ^{90}Sr , $^{239+240}\text{Pu}$ і ^{241}Am у воді приміщення 001/3 з початку січня 2017 р. мають постійний тренд до зменшення й у червні 2020 р. становили: ^{90}Sr — $1,4 \cdot 10^9$ Бк/м³, $^{239+240}\text{Pu}$ — $5,8 \cdot 10^5$ Бк/м³ і ^{241}Am — $6,2 \cdot 10^9$ Бк/м³. Зниження об'ємної активності ^{90}Sr можливо за рахунок утворення важкорозчинних карбонатів SrCO_3 і співосадження їх з карбонатами кальцію CaCO_3 в умовах сильнолужного середовища в умовах pH 9,2 і концентрацій CO_3^{2-} 160–190 мг/дм³. Зниження об'ємної активності $^{239+240}\text{Pu}$ і ^{241}Am , імовірно, відбувається за рахунок коагуляції гідроксидів плутонію $\text{Pu}(\text{OH})_4$ та $\text{Am}(\text{OH})_3$ і осадження спільно з гідроксидами заліза $\text{Fe}(\text{OH})_3$. Можливе також надходження води з високим вмістом ^{137}Cs і низьким вмістом ^{90}Sr , $^{239+240}\text{Pu}$ і ^{241}Am .

Рис. 16. Об'ємна активність ^{90}Sr , ^{137}Cs , $^{239+240}\text{Pu}$ і ^{241}Am в РЗВ приміщення 001/3

Під час випарювання води спостерігається збільшення лужності РЗВ, pH збільшується до значень 9,5–10,2 (рис. 17 та 18). Це обумовлено збільшенням концентрації карбонатів CO_3^{2-} і гідрокарбонатів HCO_3^- у воді. На рисунках показана динаміка зростання

Рис. 17. Концентрація карбонатів, гідрокарбонатів і рН у РЗВ приміщення 012/16

Рис. 18. Концентрація карбонатів, гідрокарбонатів і рН у РЗВ приміщення 017/2

концентрацій CO_3^{2-} і HCO_3^- в РЗВ приміщень 012/16 і 017/2. У березні 2020 р. концентрація карбонатів у РЗВ приміщення 012/16 зросла в 4 рази і становила 620 мг/дм³, а гідрокарбонатів у 5 разів і становила 2560 мг/дм³. У РЗВ приміщення 017/2 концентрації CO_3^{2-} і HCO_3^- збільшилися майже в 10 разів і становили в липні 2020 р. 2370 та 9940 мг/дм³ відповідно.

Щомісячний моніторинг складу макрокомпонентів, урану й об'ємних активностей ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ і ^{241}Am у воді неорганізованих скупчень на нижніх позначках НБК об'єкта «Укриття» показав стійкий тренд збільшення концентрацій карбонатів, гідрокарбонатів, урану й об'ємних активностей радіонуклідів ^{90}Sr , ^{137}Cs , $^{239+240}\text{Pu}$ і ^{241}Am у воді приміщень 009/4, 012/7, 012/16, 014/2 та 017/2.

Висновки

Установлення «Арки» НБК повністю виключило можливість надходження атмосферних опадів у підпокрівельний простір об'єкта «Укриття». За три з половиною роки з моменту встановлення НБК у приміщеннях 013/2, 014/2, 017/2, 009/4, 012/5–8 (південна частина) і 012/13–16 (південна частина) неор-

ганізовані скупчення РЗВ повністю висохли. Сумарний об'єм РЗВ на нижніх позначках об'єкта «Укриття» зменшився на 70 м³.

Утворення конденсаційної вологи в літній період істотно не впливає на об'єми скупчень РЗВ.

За умов випаровування води відбувається значне (10–20-кратне) збільшення концентрації урану, макрокомпонентів та об'ємної активності радіонуклідів ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ і ^{241}Am у скупченнях РЗВ.

У приміщеннях 001/3, 012/6–8 (прямки на позначці –0,95) і 012/13 (північна частина) кількість РЗВ за період 2017–2020 рр. практично не змінилася, імовірно, випаровування води компенсується надходженням трапних вод за рахунок негерметичності технологічних комунікації водопостачання і/або водовідводу об'єкта «Укриття».

Список використаної літератури

1. Исследования водопотоков внутри объекта «Укрытие» / С. А. Богатов, А. А. Корнеев, А. П. Криницын [и др.] // Радиохимия. — 2000. — Т. 42, № 3. — С. 276–280.
2. Жидкие радиоактивные отходы внутри объекта «Укрытие» / А. А. Корнеев, А. П. Криницын, О. Л. Стрихарь, В. Н. Щербин // Радиохимия. — 2002. — Т. 44, № 6. — С. 545–552.
3. Проблема обращения с жидкими радиоактивными отходами объекта «Укрытие» / А. А. Корнеев, А. П. Криницын, О. Л. Стрихарь, В. Н. Щербин // Радиохимия. — 2003. — Т. 45, № 5. — С. 461–465.
4. Одинцов А. А. Трансурановые элементы в жидких радиоактивных отходах объекта «Укрытие» / А. А. Одинцов, В. Е. Хан, В. А. Краснов // Радиохимия. — 2009. — Т. 51, № 4. — С. 337–343.
5. Многолетний мониторинг неорганизованных скоплений жидких радиоактивных отходов объекта «Укрытие» / А. А. Одинцов, В. Е. Хан, В. А. Краснов, В. Н. Щербин // Проблемы безопасности атомных электростанций и Чернобиля. — 2016. — Вип. 27. — С. 43–58.
6. Одинцов А. А. Радиоактивно загрязненная вода в объекте «Укрытие» после установки «Арки» НБК в проектное положение / А. А. Одинцов, В. Е. Хан // Проблемы безопасности атомных электростанций и Чернобиля. — 2018. — Вип. 30. — С. 67–77.
7. Боровой А. А. Ядерная безопасность скоплений воды в объекте «Укрытие» / А. А. Боровой // Атомная энергия. — 2009. — Т. 107, № 2. — С. 91–95.
8. Одинцов А. А. Контроль факторов радиационной опасности помещения 001/3 объекта «Укрытие» / А. А. Одинцов, В. Е. Хан, Б. И. Огородников // Пробле-

- ми безпеки атомних електростанцій і Чорнобиля. — 2011. — Вип. 15. — С. 96–102.
9. Механизм очистки жидких радиоактивных отходов от трансурановых элементов и урана методом комплексобразования и ультрафильтрации / Л. И. Руденко, О. А. Гуменная, В. Е. Хан, О. В. Джужа // Доповіді НАН України. — 2009. — № 11. — С. 145–148.
 10. Радиоактивные аэрозоли около скопления лавообразных топливосодержащих материалов в помещении 012/7 объекта «Укрытие» в 2017–2018 гг. / А. С. Лагуненко, В. Е. Хан, А. А. Одинцов [и др.] // Ядерна енергетика та довкілля. — 2019. — № 1 (13). — С. 83–90.
 11. Радиоактивные аэрозоли около скопления лавообразных топливосодержащих материалов в помещении 012/15 объекта «Укрытие» в 2017–2018 гг. / А. С. Лагуненко, В. Е. Хан, А. А. Одинцов [и др.] // Ядерна енергетика та довкілля. — 2019. — № 2 (14). — С. 31–38.
 12. Ageyev V. A. Routine radiochemical method for the determination of ^{90}Sr , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am and ^{244}Cm in environmental samples / V. A. Ageyev, O. O. Odintsov, A. D. Sajeniouk // J. Radioanal. Nucl. Chem. — 2005. — Vol. 264, No. 2. — P. 337–342.
 13. Одинцов А. А. Методика одновременного определения содержания урана и трансурановых элементов в грунтовой воде и жидких радиоактивных отходах объекта «Укрытие» / А. А. Одинцов, Э. М. Пазухин, В. Е. Хан // Радиохимия. — 2005. — Т. 47, № 5. — С. 467–471.
 14. Garrels R. M. Solutions, Minerals, and Equilibria / R. M. Garrels, C. L. Christ. — San Francisco: Freeman, Cooper & Co., 1965. — 450 p.
 15. Руденко Л. И. Трансурановые элементы в жидких радиоактивных отходах из объекта «Укрытие» / Л. И. Руденко, О. В. Джужа, В. Е. Хан // Доповіді НАН України. — 2007. — № 10. — С. 142–146.

**O. O. Odintsov, V. E. Khan, L. A. Palamar,
P. V. Sabenin, L. B. Chikur**

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

Dynamics of Changing of Volumes and Radiation Properties of Radioactive Contaminate Water in the Shelter Object in the Condition of New Safety Confinement

In November 2016 the “Arch” of the New Safe Confinement (NSC) was installed into design position over the Shelter

object (SO). Installation of the NSC in design position stipulated the changes of the mode of water inflow into underroof space of the SO. The conditions of the SO rooms ventilation as well as temperature-humidity conditions have changed inside the SO. It resulted in the considerable changes of formations conditions of the radioactively contaminated water (RCW) unorganized accumulations in the complex NSC–SO rooms. Aim of the work is to study the dynamics of changes of RCW volumes, concentration of uranium, macrocomponents, as well as radionuclides activity concentration in the RCW unorganized accumulations in rooms at the bottom marks of the SO under conditions of the NSC operation for 2017–2020. Experimental data on the determination of the volumes and radiation characteristics of radioactively contaminated water in unorganized accumulations of liquid radioactive waste at the bottom marks of the SO after the NSC installation into the design position are presented. The biggest accumulations of RCW are in the room 001/3 at the mark –2.60 m. Volume of the accumulation is approximately 270 m³. During the last decade a water level at the control point is about 1.1 m and does not change practically. During December 2016 – June 2020 the volume of radioactively contaminated water in rooms 017/2, 012/5–8 and 012/13–16 decreased by more than 10 times. In rooms 009/4, 013/2, 014/2 and 210/5–7, the water has dried completely. A decrease of radioactively contaminated water volume occurs due to the evaporation of water during the autumn-winter seasons and is not compensated by the formation of condensation moisture in the summer. Due to the water evaporation, concentrations of macrocomponents and uranium, as well as the activity concentration of radionuclides ^{90}Sr , ^{137}Cs , $^{154,155}\text{Eu}$, $^{238,239,240}\text{Pu}$, ^{241}Am and ^{244}Cm in the radioactively contaminated water increased significantly. The activity concentrations of radionuclides are $^{90}\text{Sr} - n \cdot 10^9$, $^{137}\text{Cs} - n \cdot 10^{10}$, $^{154}\text{Eu} - n \cdot 10^6$, $^{239+240}\text{Pu} - n \cdot 10^6$, $^{241}\text{Am} - n \cdot 10^7$, $^{244}\text{Cm} - n \cdot 10^5$ Bq/m³. As a result of drying out of radioactively contaminated water accumulations, highly active deposits are formed, which are a source of radioactive aerosols in the rooms of the SO. During water evaporation there is an increase of RCW alkaline, pH increases to the values of 9.5–10.2. It is due to the increase of concentration of carbonates of CO_3^{2-} and hydro carbonates of HCO_3^- in water.

Keywords: Shelter object, radionuclides, uranium, liquid radioactive waste, New Safe Confinement.

References

1. Bogatov S. A., Korneev A. A., Krynitsyn A. P., Strikhar O. L., Shherbin V. N. (2000). [Researches of water

- streams inside the Shelter object]. *Radiokhimiya* [Radiochemistry], vol. 42, no. 3, pp. 276–280. (in Russ.)
2. Koreneev A. A., Krinitsyn A. P., Strikhar O. L., Shcherbin V. N. (2002). [Liquid radioactive waste inside the Shelter object]. *Radiokhimiya* [Radiochemistry], vol. 44, no. 6, pp. 545–552. (in Russ.)
 3. Krinitsyn A. P., Strikhar O. L., Shcherbin V. N. (2003). [The problem of handling the liquid radioactive waste of the Shelter object]. *Radiokhimiya* [Radiochemistry], vol. 45, no. 5, pp. 461–465. (in Russ.)
 4. Odintsov A. A., Khan V. E., Krasnov V. A., Pazukhin E. M., Shcherbin V. N. (2009). [Transuranium elements in liquid radioactive waste of the Shelter object]. *Radiokhimiya* [Radiochemistry], vol. 51, no. 4, pp. 337–343. (in Russ.)
 5. Odintsov A. A., Khan V. E., Krasnov V. A., Shcherbin V. N. (2016). [Long-term monitoring of unorganized accumulations of liquid radioactive waste at the Shelter object]. *Problemy bezpeky atomnykh elektrostantsiy i Chornobylya* [Problems of Nuclear Power Plants' Safety and of Chornobyl], vol. 27, pp. 43–58. (in Russ.)
 6. Odintsov A. A., Khan V. E. (2018). [Radioactive water in the Shelter object after installing the “Arch” of the New Safe Confinement into design position]. *Problemy bezpeky atomnykh elektrostantsiy i Chornobylya* [Problems of Nuclear Power Plants' Safety and of Chornobyl], vol. 30, pp. 67–77. (in Russ.)
 7. Borovoy A. A. (2009). [Nuclear safety of water accumulations in the Shelter object]. *Atomnaya energiya* [Atomic Energy], vol. 107, no. 2, pp. 91–95. (in Russ.)
 8. Odintsov O. O., Khan V. E., Ogorodnikov B. I. (2011). [Control of radiation hazard factors in room 001/3 of the Shelter object]. *Problemy bezpeky atomnykh elektrostantsiy i Chornobylya* [Problems of Nuclear Power Plants' Safety and of Chornobyl], vol. 15, pp. 96–102. (in Russ.)
 9. Rudenko L. I., Gumennaya O. A., Khan V. E., Dzhuzha O. V. (2009). [The mechanism of purification of liquid radioactive waste from transuranium elements and uranium by the method of complexation and ultrafiltration]. *Dopovidi NANU* [Reports of NASU], vol. 11, pp. 145–148. (in Russ.)
 10. Lagunencko A. S., Khan V. Ye., Odintsov O. O., Kovalchuk V. P., Kravchuk T. A., Kalinovskiy A. K., Kashpur V. O., Svirid O. A., Tkach A. V., Yurchuk S. V. (2019). [Radioactive aerosols in 2017–2018 near lava-like fuel containing materials in premise 012/7 of the Shelter object]. *Yaderna energetyka ta dovkillia* [Nuclear Power and the Environment], vol. 13, no. 1, pp. 83–90. doi: 10.31717/2311–8253.19.1.10. (in Russ.)
 11. Lagunencko A. S., Khan V. E., Odintsov O. O., Kalinovskiy A. K., Kovalchuk V. P., Kravchuk T. A., Filipov O. B., Popov M. M. (2019). Radioactive aerosols near lava-like fuel contained materials in premise 012/15 of Shelter object in 2017–2018 гг. *Yaderna energetyka ta dovkillia* [Nuclear Power and the Environment], vol. 14, no. 2, pp. 31–38. (in Russ.)
 12. Ageyev V. A., Odintsov O. O., Sajeniouk A. D. (2005). Routine radiochemical method for the determination of ^{90}Sr , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am and ^{244}Cm in environmental samples. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, vol. 264, no. 2, pp. 337–342.
 13. Odintsov O. O., Pazukhin E. M., Khan V. E. (2005). [Method for the simultaneous determination of the content of uranium and transuranic elements in groundwater and liquid radioactive waste of the Shelter object]. *Radiokhimiya* [Radiochemistry], vol. 47, no. 5, pp. 467–471. (in Russ.)
 14. Garrels R. M., Christ C. L. (1965). *Solutions, Minerals, and Equilibria*. San Francisco: Freeman, Cooper & Co., 450 p.
 15. Rudenko L. I., Dzhuzha O. V., Khan V. E. (2007). [Transuranium elements in liquid radioactive waste of the Shelter object]. *Dopovidi NANU* [Reports of NASU], vol. 10, pp. 142–146. (in Russ.)

Надійшла 03.03.2021

Received 03.03.2021