

**В. П. Процак^{1,*}, О. О. Одінцов², Ю. В. Хомутінін¹,
М. А. Журба¹, Н. М. Прокопчук¹, В. О. Кашпаров¹**

¹ Український науково-дослідний інститут сільськогосподарської радіології
Національного університету біоресурсів і природокористування України, Київ, Україна

² Інститут проблем безпеки АЕС НАН України, Київ, Україна

*Відповідальний автор: protsak2013@gmail.com

ДИНАМІКА ФІЗИКО-ХІМІЧНИХ ФОРМ ЗНАХОДЖЕННЯ РАДІОНУКЛІДІВ У ДОННИХ ВІДКЛАДЕННЯХ ВОДОЙМИ-ОХОЛОДЖУВАЧА ЧАЕС ПІСЛЯ ЇХНЬОГО ОСУШЕННЯ: 1. МОДЕЛЬНИЙ ЕКСПЕРИМЕНТ

Методом послідовних вилуговувань оцінена динаміка форм знаходження радіонуклідів у донних відкладеннях водойми-охолоджувача ЧАЕС після їхнього осушення та експозиції в натурних умовах. За результатами досліджень переважна частина радіонуклідів (> 90 %) упродовж 4 років після осушення продовжує знаходитися в необмінному стані. Значна частина радіонуклідів залишається не вилученою із твердої фази донних відкладень водойми-охолоджувача ЧАЕС навіть після застосування «наджорстких» умов екстракції, що свідчить про знаходження ^{90}Sr , $^{238,239,240}\text{Pu}$, ^{241}Am і частини ^{137}Cs у складі хімічно стійких паливних частинок і відповідно дана частина радіонуклідів не може бути мобілізована в природних умовах упродовж десятків років. Отримані результати вказують, що на осушених ділянках ложа водойми-охолоджувача ЧАЕС не слід очікувати істотного підвищення мобільності та біологічної доступності радіонуклідів у найближчі 5 - 10 років.

Ключові слова: послідовне вилуговування радіонуклідів, форми знаходження радіонуклідів, радіоактивне забруднення, донні відкладення, водойма-охолоджувач ЧАЕС.

Вступ

Після зупинення в кінці 2014 р. насосів берегової насосної станції (БНС-3), яка безперервно підживлювала водойму-охолоджувач ЧАЕС (ВО ЧАЕС) водою з р. Прип'ять, почалося поступове зниження рівня води у ВО, яке буде тривати 5 - 7 років, до стабілізації рівня на рівноважних природних висотних відмітках. Очікується, що рівень води знизиться приблизно на 7 м, що призведе до перетворення цілісної водойми площею близько 22 км² на декілька невеликих озер, при цьому оголиться близько 14,8 км² ложа ВО [1]. На осушених ділянках умови знаходження радіонуклідів зазнають значних змін. У зв'язку з обмеженістю сучасних даних, що характеризують форми знаходження радіонуклідів у донних відкладеннях ВО ЧАЕС наразі відсутнє чітке розуміння динаміки радіологічної ситуації, що створиться. Відомо, що такі біологічно значимі радіонукліди, як ^{90}Sr , $^{238,239,240}\text{Pu}$, ^{241}Am , початково потрапили у ВО виключно у складі паливних частинок (ПЧ), які впродовж довгого часу не зазнавали значної трансформації через знаходження в нейтрально-лужному середовищі при низькій концентрації кисню [2]. Дослідження поведінки ПЧ у ґрунтах та модельних середовищах у тому числі й у рідинах показали, що основними факторами, відповідальними за вилуговування радіонуклідів з паливної компоненти, є склад матриці оксиду урану, ступень її окислен-

ня та кислотність середовища [3, 4]. Характер поведінки ПЧ в умовах ВО ЧАЕС, на жаль, до цього часу досліджений недостатньо. Наразі вважається, що переважна частина активності ^{90}Sr , $^{238,239,240}\text{Pu}$, ^{241}Am у ВО ЧАЕС капсульована в матриці ПЧ [2, 5]. Згідно з існуючими науковими прогнозами на ділянках ложа ВО, що зазнають осушення, розпочнуться інтенсивні процеси аерації та ґрунтоутворення, що має призвести до закислення середовища (зменшення рН ґрунтового розчину) і, як наслідок, зростання швидкості розчинення ПЧ, вивільнення радіонуклідів та переходу їх у рухливі форми [6]. За розрахунками Булгакова та ін., що базуються на даних по динаміці зміни рН ґрунтового розчину після вапнування ґрунтів і даних залежності швидкості розчинення ПЧ від кислотності ґрунту [7], на осушених ділянках ВО впродовж 15 - 25 років має розчинитися основна частина ПЧ [6].

Для експериментальної оцінки динаміки фізико-хімічних форм знаходження радіонуклідів на ділянках ВО ЧАЕС, що зазнають осушення, авторами статті у 2012 р. був розпочатий модельний експеримент. Суть експерименту полягала в імітації осушення реальних донних відкладень ВО ЧАЕС та довгострокової їхньої експозиції в натурних умовах з періодичними відбором та аналізом зразків. Отримані в ході виконання досліджень результати дозволяють прогнозувати радіоекологічну ситуацію, що складеться на осушених ділянках ложа ВО ЧАЕС.

© В. П. Процак, О. О. Одінцов, Ю. В. Хомутінін,
М. А. Журба, Н. М. Прокопчук, В. О. Кашпаров, 2017

Матеріали та методи

Відбір та підготовка зразків

Зразки донних відкладень відбиралися улітку 2012 р. в північно-західній частині ВО ЧАЕС на глибинах 4 - 7 м за 2,5 року до початку зниження рівня води. Пробовідбір здійснювався з човна за допомогою донного пробовідбірника ковшового типу СДЧ-250. Усього було здійснено близько 60 точкових відборів верхнього 20-см шару донних відкладень на акваторії близько 4000 м². Загальний об'єм відібраних зразків сягав 150 л.

Безпосередньо на березі ВО ЧАЕС був облаштований експериментальний майданчик, що складався з пластикової кювети розміром 1 × 1 × 0,2 м без дна, яка була заповнена відібраними донними відкладеннями після їхньої гомогенізації шляхом перемішування. Для оцінки форм знаходження радіонуклідів на початок експерименту були відібрані аліквоти для узагальненого зразка. У подальшому через певні проміжки часу (9, 15, 24 та 47 міс) з різних частин кювети відбиралися аліквоти вже модифікованих (що зазнали осушення та експозиції в натурних умовах) донних відкладень. Відібрані зразки сушилися при 105 °С, подрібнювалися, просіювалися через сито 2 мм для відділення залишків мушлі та гомогенізувалися. У наступному з кожного зразка відбиралось по 6 наважок 5 г кожна та проводилася їхня гамма-спектрометрія. За їхніми результатами ви-

биралися 3 наважки з найбільш близькою питомою активністю по ¹³⁷Cs і ²⁴¹Am, які й використовувалися для проведення послідовних екстракцій. Таким чином для кожного пробовідбору проводилось послідовне вилуговування у трьох повторностях. Отримані результати усереднювалися, що гарантувало мінімізацію похибок, пов'язаних із проведенням процедур пробовідбору та послідовного вилуговування.

Для оцінки вмісту органіки у зразках проводилося їхнє відпалювання в муфельній печі протягом 6 год при температурі 550 °С.

Визначення рН водної витяжки зразків (актуальна кислотність) проводилося відповідно до ДСТУ ISO 10390-2001, при співвідношенні в суспензії твердої і рідкої фаз 1 : 5.

Схема послідовної екстракції радіонуклідів із зразків донних відкладень ВО ЧАЕС

Протокол послідовних вилуговувань для оцінки форми знаходження ⁹⁰Sr, ¹³⁷Cs, ^{238,239,240}Pu і ²⁴¹Am у донних відкладеннях ВО ЧАЕС був розроблений з урахуванням досвіду, отриманого при вилуговуванні чорнобильських радіонуклідів із ґрунтів зони відчуження ЧАЕС [3, 8, 9]. Вилуговування проводилось при співвідношенні твердої і рідкої фаз 1 : 5. Умови вилуговування, реагенти та форми радіонуклідів, що асоціюються з кожною стадією вилуговування наведено в табл. 1.

Таблиця 1. Умови послідовного вилуговування радіонуклідів із зразків донних відкладень ВО ЧАЕС та форми радіонуклідів, що з ними асоціюються

№	Реагент та умови вилуговування	Форми радіонуклідів
I	Дистильована вода; 24 год при кімнатній температурі і періодичному перемішуванні	водорозчинні
II	1 М CH ₃ COONH ₄ (NH ₄ Ac); рН 7; 24 год при кімнатній температурі	обмінні
III	1 М HCl; 24 год при кімнатній температурі	рухливі
IV	0,2 М (NH ₄) ₂ C ₂ O ₄ + 0,1 М H ₂ C ₂ O ₄ (розчин Тама); рН 3,2; 2 год при кімнатній температурі	пов'язані з аморфними оксидами та гідроксидами Fe і Al у формі органо-мінеральних комплексів
V	8 М HNO ₃ ; 24 год при кімнатній температурі	важко розчинні та асоційовані з ПЧ (U _x O _y + UO ₂)
VI	Залишок після п. 5 озолували при 550 °С протягом 6 год з наступною обробкою суміші кислот 8 М HNO ₃ + 10 М HCl протягом 2 год при 95 °С	пов'язані з органічними компонентами донних відкладень та ПЧ (UO ₂)
VII	Залишок після п. 6 вилуговували сумішню кислот 8 М HNO ₃ + 4 М HF протягом 2 год при 95 °С	міцно фіксовані на мінеральних компонентах донних відкладень і у складі конструкційних ПЧ (U _x Z _y O _z)
VIII		нерозчинний залишок

Отримані вилуги відокремлювали від твердого залишку за допомогою центрифуги. Після декантування розчини фільтрували через паперовий фільтр «синя стрічка». Після стадій вилуговування II - VII тверді залишки промивали дистильованою водою й отриману промивку після центрифугування і фільтрування об'єднували з відповідним

розчином вилугу. Фільтри після фільтрування об'єднували з твердими залишками.

Визначення активності радіонуклідів

Для визначення у вилугах вмісту ¹³⁷Cs (¹³⁷Ba^m) і ²⁴¹Am застосовувався гамма-спектрометричний

метод, ^{90}Sr визначався бета-радіометричним методом після радіохімічного виділення, вміст ^{238}Pu , ^{239}Pu та ^{241}Am визначався за допомогою альфа-спектрометрії після радіохімічного виділення.

Вимірювання активності ^{137}Cs , $^{154,155}\text{Eu}$ і ^{241}Am виконували на гамма-спектрометричному комплексі у складі напівпровідникового детектора GL2020R (CANBERRA) з берилієвим вікном. Мінімальна активність, що визначається для геометрії вимірювань, для гамма-лінії 59 кэВ (^{241}Am) становила 0,1 Бк/пробу, для $^{137}\text{Ba}^m$ (661,6 кэВ) - 0,4 Бк/пробу. Обробка апаратурних спектрів виконувалась у програмному середовищі GENIE-2000.

Бета-радіометричні вимірювання ^{90}Sr (SrCO_3) проводили на низькофоновому бета-радіометрі УМФ-1500 відразу після його радіохімічного виділення за осаджувальною методикою.

Радіохімічне виділення плутонію та америцію

з вилугів виконували за іонообмінною методикою [10]. Для визначення хімічного виходу плутонію та америцію використовувалися трасери (^{242}Pu і ^{243}Am) з відомою активністю.

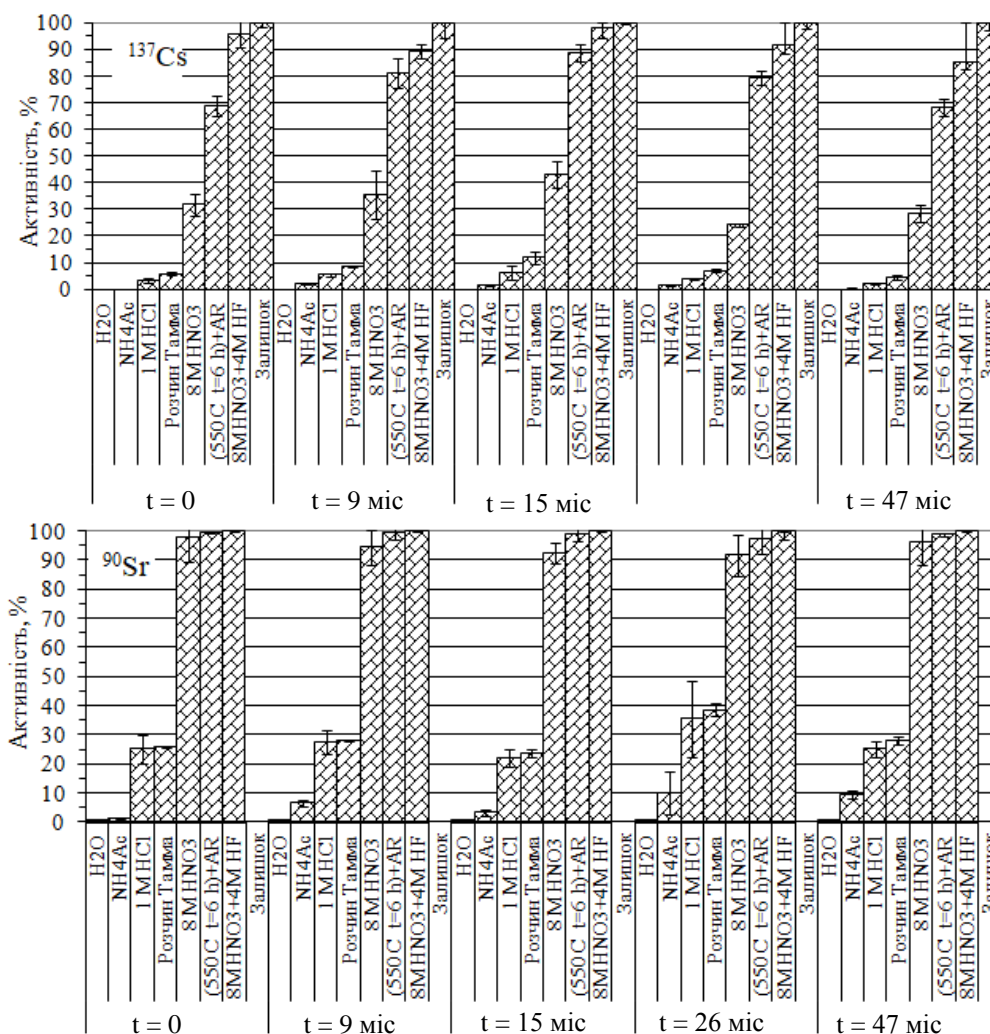
Альфа-спектрометричні вимірювання проводились на восьмиканальному альфа-спектрометрі фірми EG&G ORTEC OCTETE PC з напівпровідниковими кремнієвими детекторами серії BU-017-450-100 ULTRA.

Результати

У табл. 2 наведені результати гамма-спектрометричних вимірювань узагальненого зразка донних відкладень ВО ЧАЕС, якими була заповнена кювета, оцінка його зольності у відсотках до початкової повітряно-сухої маси та актуальна кислотність. Зважаючи на зольність, у 34 % відібрані донні відкладення можна класифікувати як замулений пісок.

Таблиця 2. Характеристики узагальненого зразка донних відкладень ВО ЧАЕС

Питома активність, Бк·г ⁻¹			Зольність, %	рН
^{137}Cs	^{154}Eu	^{241}Am		
270 ± 30	1,1 ± 0,2	7,2 ± 0,8	34	7,2 ± 0,1



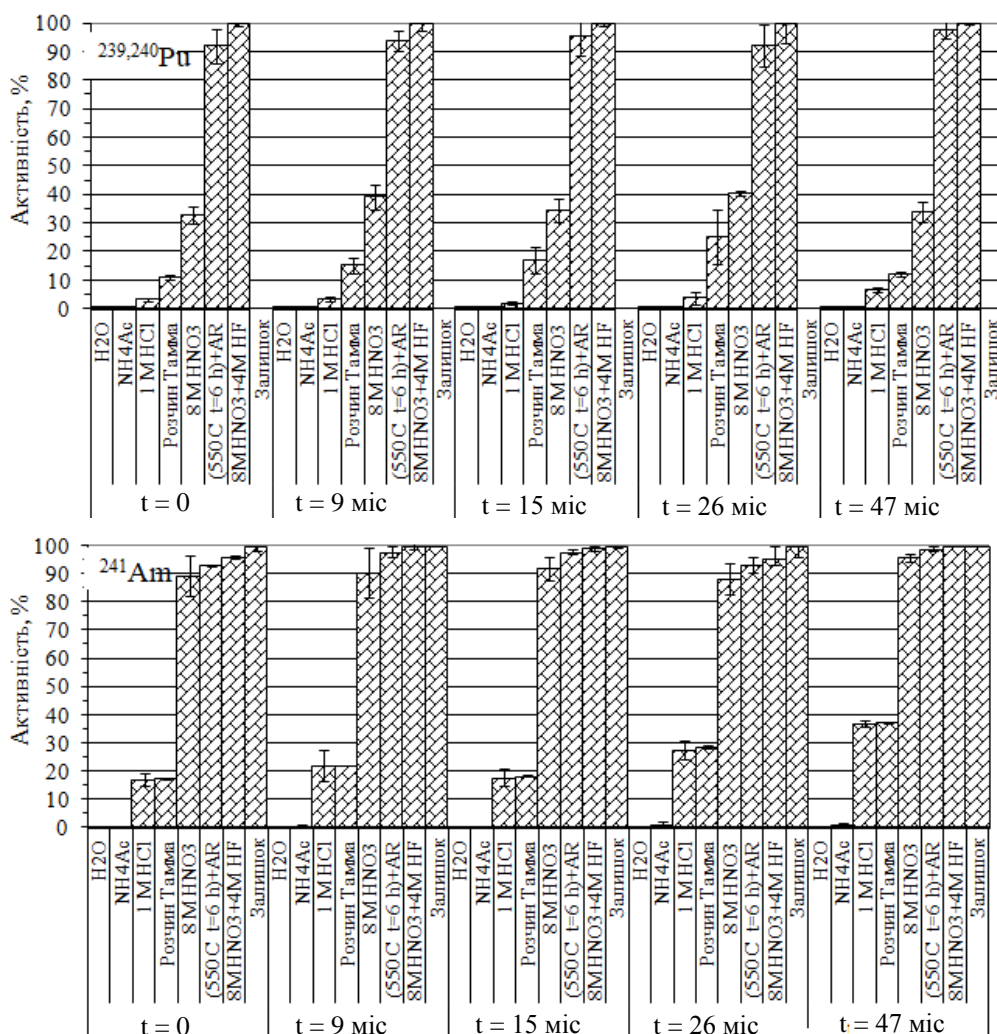


Рис. 1. Відносний розподіл активності ^{137}Cs , ^{90}Sr , $^{239,240}\text{Pu}$ та ^{241}Am у вилугах послідовних екстракцій зразків донних відкладень ВО ЧАЕС у початковий момент ($t = 0$) і після осушення та експозиції в натурних умовах упродовж 9, 15, 26 та 47 міс.

Результати досліджень форм знаходження радіонуклідів у донних відкладеннях ВО ЧАЕС на початок експерименту (2012 р.) детально викладено в [11]. Згідно з цими результатами переважна частина радіонуклідів у донних відкладеннях ВО ЧАЕС перебувала в необмінному стані ($> 98\%$), при цьому згідно з отриманими оцінками у складі матриці ПЧ знаходилось близько 70% ^{90}Sr та більш ніж 80% ^{241}Am та ізоотопів плутонію.

Відносні розподіли активності ^{137}Cs , ^{90}Sr , $^{238,239,240}\text{Pu}$ і ^{241}Am у вилугах послідовних екстракцій зразків донних відкладень ВО ЧАЕС на початок експерименту ($t = 0$) та після імітації їхнього осушення та експозиції в натурних умовах упродовж 9, 15, 26 та 47 міс наведено на рис. 1. Для інтерпретації отриманих результатів застосовувався статистичний аналіз.

Аналіз результатів та обговорення

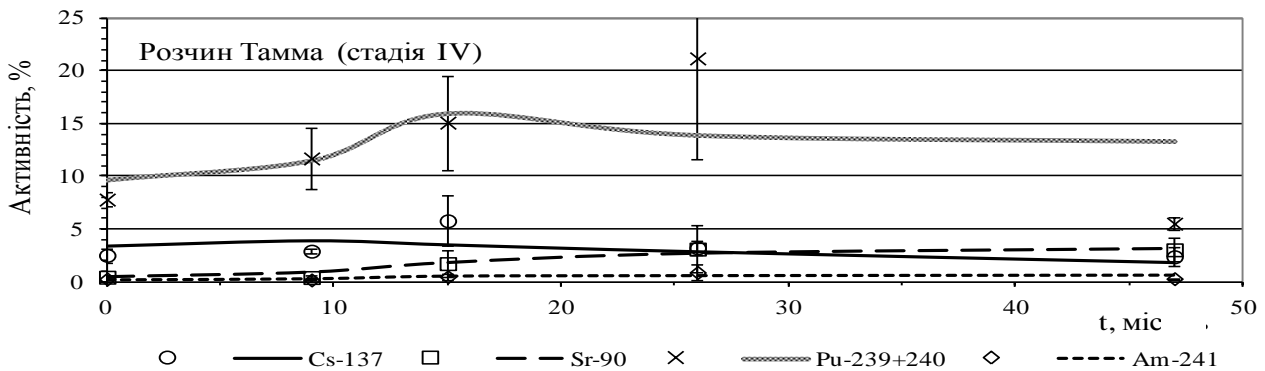
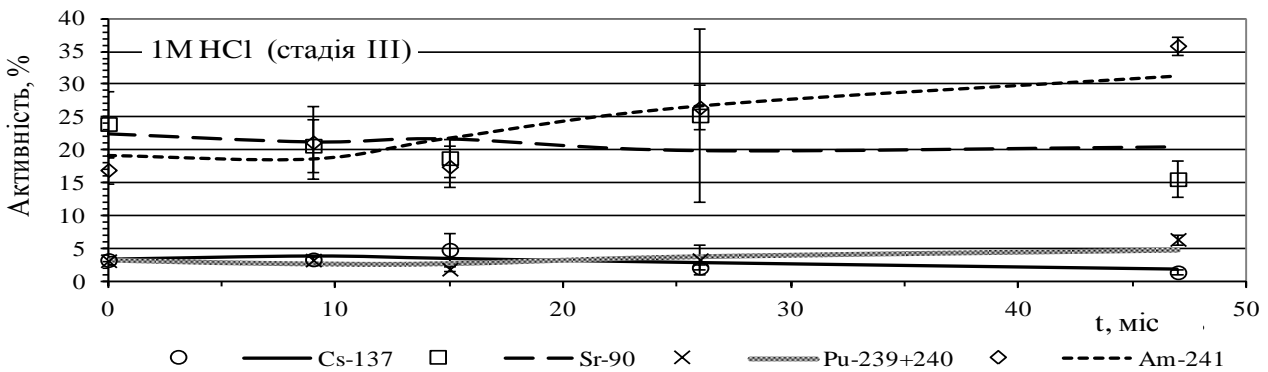
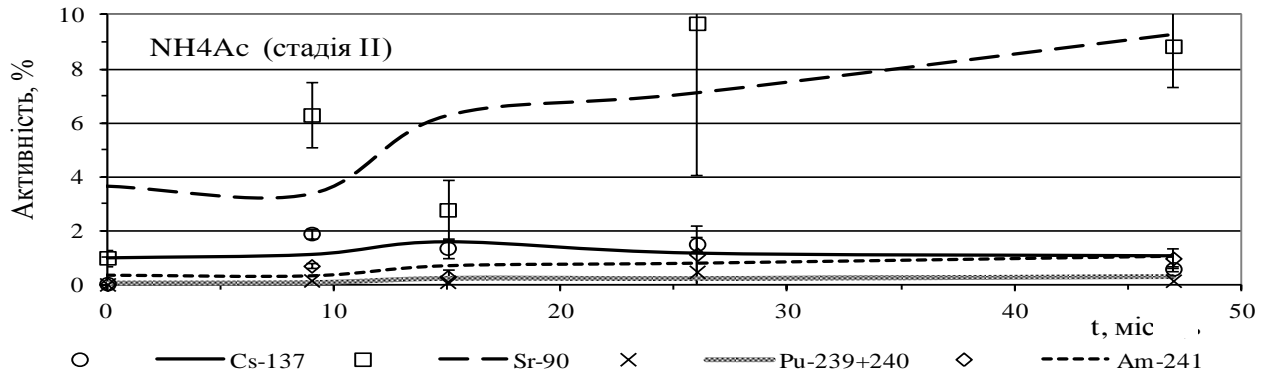
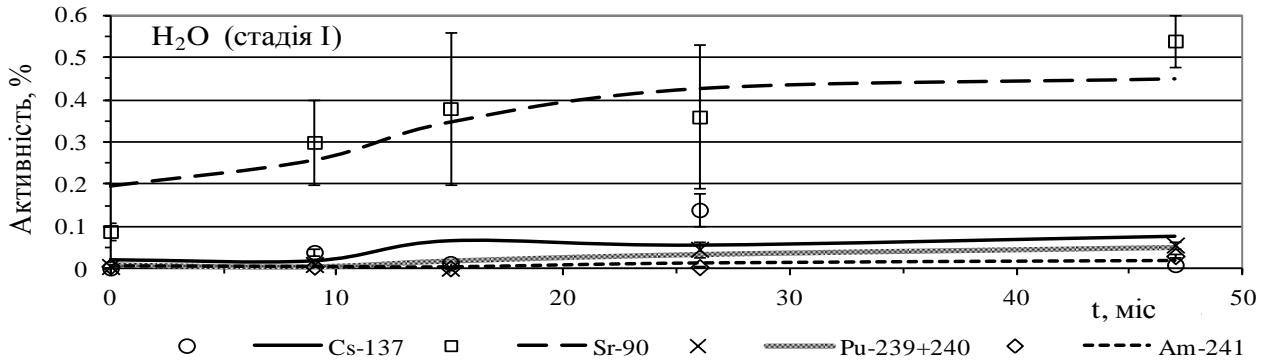
Аналіз отриманих результатів проводився з використанням статистичного методу змінного

середнього. Цей метод часто застосовують для аналізу даних часових рядів при прогнозуванні, оскільки це дає змогу згладжувати короткострокові коливання й виділяти основні тенденції та тренди. Результати статистичного аналізу (тренди) та експериментальні значення частки активності ^{137}Cs , ^{90}Sr , $^{239,240}\text{Pu}$ і ^{241}Am у вилугах послідовних екстракцій зразків донних відкладень після їхнього осушення та експозиції впродовж 9, 15, 26 та 47 міс у натурних умовах наведено на рис. 2.

Динаміка водорозчинних форм радіонуклідів упродовж експерименту вказує на їхнє зростання для ^{90}Sr (до 5 разів), але в абсолютному значенні збільшення водорозчинних форм ^{90}Sr є зовсім незначним (до $0,6\%$ валового вмісту). Для інших радіонуклідів вміст водорозчинних форм упродовж експерименту істотно не змінився й залишився вкрай низьким ($< 0,1\%$ валового вмісту). Аналіз динаміки ацетатних вилугів указує на зростання для ^{90}Sr внеску обмінних форм від 1 до 10% валового вмісту. Для інших радіонуклідів

вміст обмінних форм істотно не змінився і залишився менше 2 % валового вмісту. Вміст кислото-розчинних рухливих форм для ^{241}Am упродовж 47 міс експозиції зріс від 17 до 35 % валового вмісту. Для інших радіонуклідів значимої

динаміки рухливих форм радіонуклідів не виявлено. Також не виявлено впродовж експерименту значимої динаміки форм радіонуклідів, пов'язаних із полуторними оксидами та комплексними сполуками.



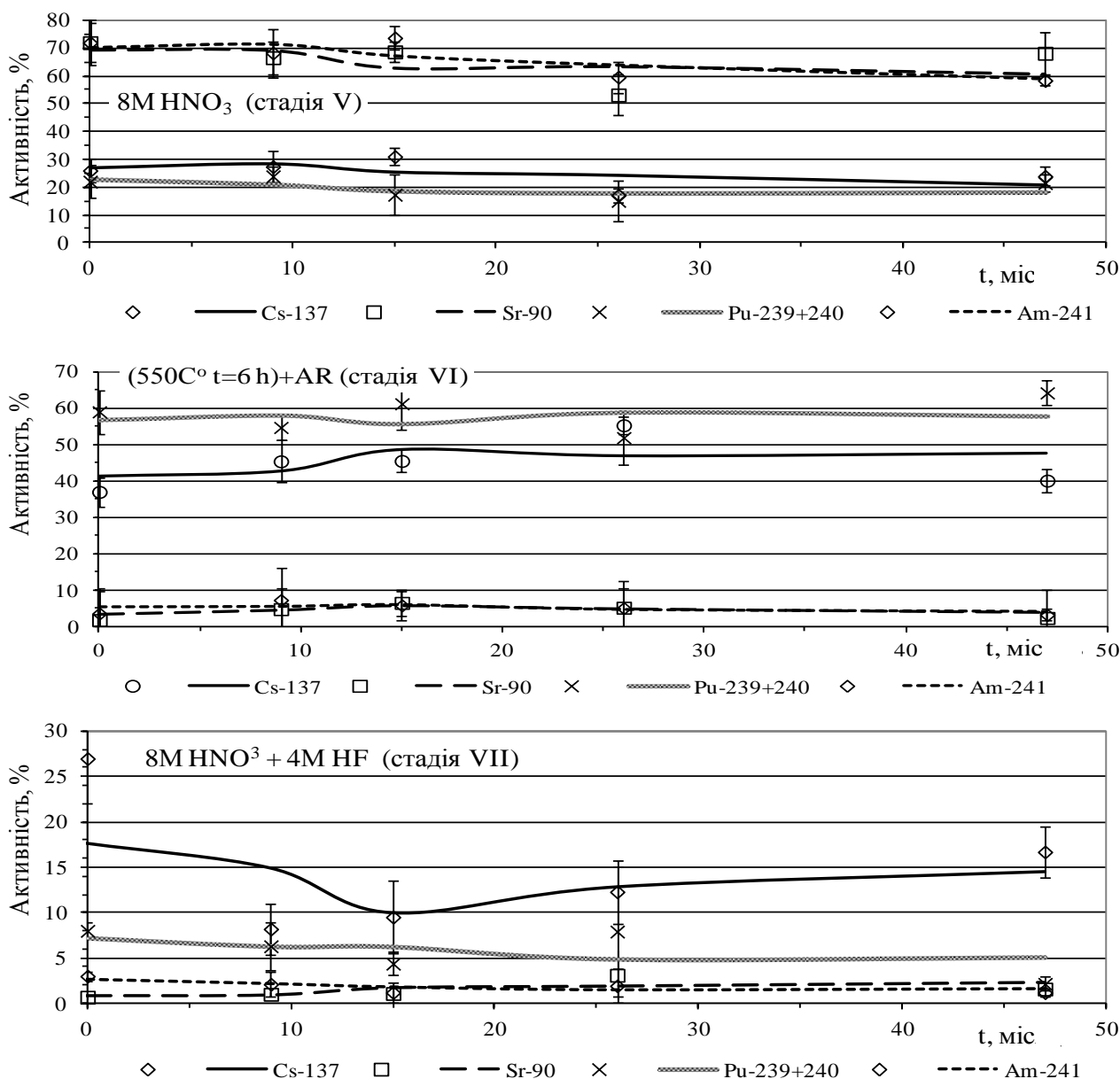


Рис. 2. Експериментальні значення та тренди динаміки частки активності ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr, ^{239,240}Pu та ²⁴¹Am у вилугах зразків донних відкладень ВО ЧАЕС після осушення та експозиції в натурних умовах.

Параметри апроксимації статистично значимих результатів динаміки форм радіонуклідів на експериментальному майданчику наведено в табл. 3.

Таблиця 3. Параметри апроксимації динаміки зростання форм знаходження радіонуклідів у донних відкладеннях ВО ЧАЕС після моделювання їхнього осушення та експозиції в натурних умовах упродовж 47 міс

Радіонуклід	Форми радіонукліда	Рівняння для величини відносної активності (A, %)	Кореляція, R ²
⁹⁰ Sr	водорозчинні	$A = 0,0082 \cdot t(\text{міс}) + 0,17$	0,83
⁹⁰ Sr	обмінні	$A = 0,16 \cdot t(\text{міс}) + 2,6$	0,6
²⁴¹ Am	рухливі	$A = 0,41 \cdot t(\text{міс}) + 15,6$	0,9

Звертає на себе увагу значно інтенсивніше вилуговування ⁹⁰Sr і ²⁴¹Am (60 - 70 % активності) у порівнянні з ¹³⁷Cs і ^{239,240}Pu (15 - 30 % активності) при вилуговуванні концентрованою азотною кислотою (стадія V). Цей факт необхідно врахувати при застосуванні радіохімічних методик

із використанням HNO₃ для розчинення зразків.

Упродовж наступної стадії (VI) вилуговується близько 60 % ізотопів плутонію, 50 % ¹³⁷Cs та до 5 % ⁹⁰Sr і ²⁴¹Am, оскільки основна частина ⁹⁰Sr і ²⁴¹Am уже вилугувалась у попередній стадії 8 M HNO₃.

Застосування суміші 8М HNO_3 і 4М HF при температурі 95 °С протягом 2 год (стадія VII) дозволяє вилуговувати залишки $^{239,240}\text{Pu}$ з ПЧ та близько 15 % ^{137}Cs скоріш за все з глинистих мінералів донних відкладень.

Результати гамма-спектрометрії залишків після всього циклу вилуговувань указують, що не вилученими можуть залишатися до 10 % активності ^{137}Cs та до 5 % активності ^{241}Am . Це та активність, що не зможе бути мобілізована в природних умовах упродовж досить тривалого часу.

Відсутність значимої динаміки форм знаходження радіонуклідів у донних відкладеннях ВО ЧАЕС після їхнього осушення та експозиції в натурних умовах та характер їхнього вилуговування може вказувати на те, що переважна частина активності ^{90}Sr , ^{241}Am і ізоотопів плутонію міститься в складі ПЧ з матрицею UO_2 (60 - 70 %), а перерозподіл форм знаходження радіонуклідів у донних відкладеннях після їхнього осушення та експозиції в натурних умовах відбувається в межах тієї частки активності, що потрапила до ВО у вигляді ПЧ з матрицею U_xO_y і впродовж 30 років встигла розчинитися в умовах ВО ЧАЕС. Таким чином, можна припустити, що початковий склад паливного забруднення ВО ЧАЕС, принаймні її північної частини, був обумовлений 60 - 65 % ПЧ з матрицею UO_2 , 30 - 35 % ПЧ із матрицею U_xO_y та 5 - 10 % ПЧ з матрицею $\text{U}_x\text{Z}_y\text{O}_z$, що також узгоджується з оцінками для чорнобильських радіоактивних випадів у ближній зоні [12, 13].

Як відомо рН середовища є визначальним фактором, що впливає на швидкість деструкції паливної компоненти чорнобильського радіоактивного викиду [4]. Для ВО ЧАЕС характерними значеннями рН є 7,2 - 8,5 [2]. Згідно з прогнозом [6], що базувався на даних зменшення буферності завапнованого ґрунту, на осушених ділянках ложа ВО ЧАЕС мало б відразу розпочатися закислення ґрунту (упродовж 4 років до значення рН \approx 6) і, як результат, зростання швидкості розчинення ПЧ [4]. Періодичне визначення рН на експериментальному майданчику для оцінки його динаміки вказує на зворотний процес (рис. 3). Як видно з даного рисунка, рН середовища осушених донних відкладень на експериментальному майданчику впродовж 4 років зростає від значень 7,2 до 8 і зберігався слаболужним. У травні 2017 р. на осушених ділянках ложа ВО ЧАЕС були відібрані зразки донних відкладень верхнього 5-см шару для оцінки актуальної кислотності. Визначення рН у даних зразках показав, що інтервал його значень лежить в області 7,6 - 7,9, що добре узгоджується з результатами, отриманими для модельного експерименту.

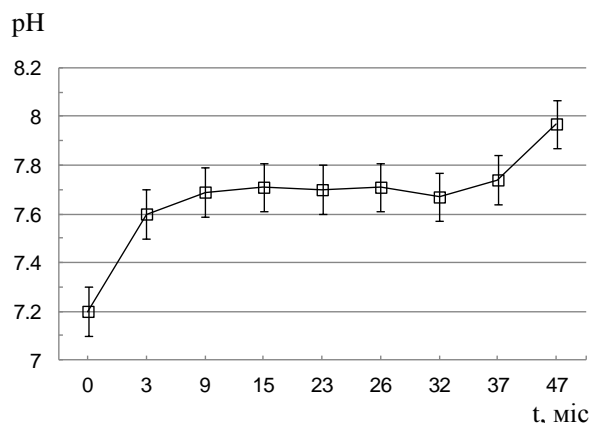


Рис. 3. Динаміка актуальної кислотності донних відкладень ВО ЧАЕС на експериментальному майданчику.

Збереження впродовж тривалого часу слаболужної реакції середовища на експериментальному майданчику, очевидно, пов'язано з наявністю значної кількості катіонів кальцію. Лужна буферність середовища може забезпечуватися надходженням розчинного кальцію із залишків мушлі дрейсени, яка скрізь присутня в донних відкладеннях ВО ЧАЕС, а місцями товщина її шару сягає 20 см і більше. На експериментальному майданчику вміст залишків мушель приблизно 15 % сухої маси. Тривале збереження слаболужної реакції середовища донних відкладень на експериментальному майданчику (рН \sim 7,7) є додатковим чинником, що мінімізує швидкість розчинення ПЧ.

Таким чином, якщо екстраполювати отримані результати на всю частину ложа ВО ЧАЕС, що зазнає осушення, то можна констатувати, що всупереч науковим прогнозам [6] умови, які складуться на осушених ділянках, не спровокують значимої деструкції існуючих на даний час ПЧ у донних відкладеннях ВО ЧАЕС, а відповідно на даних територіях не слід очікувати істотного підвищення мобільності й біологічної доступності радіонуклідів. У радіоекологічному плані це є досить позитивний момент.

Підсумовуючи, можна констатувати, що крім зростання водорозчинних і обмінних форм ^{90}Sr і кислоторозчинних рухливих форм ^{241}Am у донних відкладеннях ВО ЧАЕС після їхнього осушення та експозиції в натурних умовах упродовж 4 років вміст інших форм знаходження ^{137}Cs , ^{90}Sr , $^{239,240}\text{Pu}$ і ^{241}Am достовірно не змінився у порівнянні з початковими формами.

Висновки

На осушених територіях ВО ЧАЕС не слід очікувати істотного підвищення мобільності радіонуклідів у найближчі 5 - 10 років. Причиною цього є тривале збереження слаболужної реакції дон-

них відкладень та присутність паливної компоненти у ВО ЧАЕС у вигляді хімічно стійких ПЧ. Тому в міграційних процесах на осушених ділянках ложа ВО ЧАЕС може бути задіяна тільки та частина радіонуклідів, що наразі знаходиться в рухливих формах (< 30 % валового вмісту).

Значна частина активності радіонуклідів залишається невилученою із твердої фази донних відкладень ВО ЧАЕС навіть після застосування «наджорстких» умов екстракції. Це може свідчити про знаходження ^{90}Sr , $^{238,239,240}\text{Pu}$, ^{241}Am і час-

тини ^{137}Cs у складі хімічно дуже стійких ПЧ і відповідно дана частина радіонуклідів не може бути мобілізована в природних умовах упродовж десятиліть років.

Робота виконана за підтримки дослідницького контракту МАГАТЕ № 17928 “Environmental Behavior and Biological Impact of Chernobyl Radioactive Particles” та проекту ЕС FP7 № 604974 “Coordination and Implementation of a pan-European instrument for radioecology (COMET)”.

СПИСОК ВИКОРИСТАНОЇ ЛІТЕРАТУРИ

1. ТЕО виведення з експлуатації водойми-охолоджувача ДСП «Чорнобильська АЕС». В кн.: Матеріали техн. семінару “Результати діяльності, пов’язаної з варіантами виведення з експлуатації водоймища-охолоджувача ЧАЕС” (1 - 3 жовтня 2013 р., Київ).
2. D. Weiss et al. Collection and analysis of data related to the contamination of the Chernobyl cooling pond. СЕС Contract No. B7-5350/99/62/42/MAR/C2. Final report. (GRS, 2000).
3. V.A. Kashparov et al. Kinetics of fuel particle weathering and ^{90}Sr mobility in the Chernobyl 30-km exclusion zone. *Health Physics* 76(3) (1999) 251.
4. V.A. Kashparov et al. Dissolution kinetics of particles of irradiated Chernobyl nuclear fuel: influence of pH and oxidation state on the release of radionuclides in contaminated soil of Chernobyl. *Journal of Nuclear Materials* 279 (2000) 225.
5. А.П. Коноплев, А.А. Булгаков. Трансформация ^{90}Sr и ^{137}Cs в почве и донных отложениях. *Атомная энергия* 88 (1999) 55.
6. A. Bulgakov et al. Fuel particles in the Chernobyl cooling pond: current state and prediction for remediation options. *Journal of Environmental Radioactivity* 100 (2009) 329.
7. V.A. Kashparov. Hot Particles at Chernobyl. *Environmental Science and Pollution Research Special issue 1* (2003) 21.
8. В.А. Агеев и др. Определение форм нахождения радионуклидов ^{137}Cs , ^{90}Sr , $^{239+240}\text{Pu}$ и ^{241}Am в почвах зоны отчуждения Чернобыльской АЭС. *Агроекологический журнал* 2 (2001) 68.
9. А.А. Одинцов, А.Д. Саженюк, В.А. Сацюк. Изучение ассоциации ^{137}Cs , ^{90}Sr , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am , ^{244}Cm с почвенным поглощающим комплексом почв, типичных для ближней зоны ЧАЭС. *Радиохимия* 46(1) (2004) 87.
10. V.A. Ageyev, O.O. Odintsov, A.D. Sajeniouk. 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.* 264(2) (2005) 337.
11. В.П. Процак, О.О. Одинцов. Оцінка форм знаходження чорнобильських радіонуклідів у донних відкладеннях водойми-охолоджувача ЧАЕС. *Ядерна фізика та енергетика* 15(3) (2014) 259.
12. V.A. Kashparov et al. Kinetics of dissolution of Chernobyl fuel particles in soil in natural conditions. *Journal of Environmental Radioactivity* 72(3) (2004) 335.
13. В.А. Кашпаров. Радиологическая значимость топливной компоненты чернобыльских радиоактивных выпадений. В кн.: Проблемы Чернобыльской зоны отчуждения. Научно-техн. зб. Вип. 9 (К.: Книга, 2009) 5.

В. П. Процак^{1,*}, А. А. Одинцов², Ю. В. Хомутинин¹, М. А. Журба¹, Н. Н. Прокопчук¹, В. А. Кашпаров¹

¹ Украинский научно-исследовательский институт сельскохозяйственной радиологии Национального университета биоресурсов и природопользования Украины, Киев, Украина

² Институт проблем безопасности АЭС НАН Украины, Киев, Украина

*Ответственный автор: protsak2013@gmail.com

ДИНАМИКА ФИЗИКО-ХИМИЧЕСКИХ ФОРМ НАХОЖДЕНИЯ РАДИОНУКЛИДОВ В ДОННЫХ ОТЛОЖЕНИЯХ ВОДОЕМА-ОХЛАДИТЕЛЯ ЧАЭС ПОСЛЕ ИХ ОСУШЕНИЯ: 1. МОДЕЛЬНЫЙ ЭКСПЕРИМЕНТ

Методом последовательных выщелачиваний оценена динамика форм нахождения радионуклидов в донных отложениях водоема-охладителя ЧАЭС после их осушения и экспозиции в натуральных условиях. Согласно результатам исследований преимущественная часть радионуклидов (> 90 %) в течение 4 лет после осушения продолжает находиться в необменном состоянии. Значительная часть радионуклидов остается не извлеченной из твердой фазы донных отложений водоема-охладителя ЧАЭС даже после использования «сверхжестких» условий экстракции. Это свидетельствует о нахождении ^{90}Sr , $^{238,239,240}\text{Pu}$, ^{241}Am и части ^{137}Cs в составе химически стойких топливных частиц и соответственно данная часть радионуклидов не может быть мобилизована в при-

родных условиях в течение десятков лет. Полученные результаты указывают, что на осушенных участках ложа водоема-охладителя ЧАЭС не следует ожидать значительного повышения мобильности и биологической доступности радионуклидов в ближайшие 5 - 10 лет.

Ключевые слова: последовательное выщелачивание радионуклидов, формы нахождения радионуклидов, радиоактивное загрязнение, донные отложения, водоем-охладитель ЧАЭС.

V. P. Protsak^{1,*}, O. O. Odintsov², Y. V. Khomutinin¹, M. A. Jurba¹, N. M. Prokopchuk¹, V. O. Kashparov¹

¹ Ukrainian Institute of Agricultural Radiology,

National University of Life and Environmental Sciences of Ukraine, Kyiv, Ukraine

² Institute of Safety of NPP, National Academy of Sciences of Ukraine, Kyiv, Ukraine

*Corresponding author: protsak2013@gmail.com

DYNAMICS OF PHYSICO-CHEMICAL FORMS OF RADIONUCLIDES IN THE BOTTOM SEDIMENTS OF COOLING POND OF THE ChNPP AFTER THEIR DRYING: 1. MODEL EXPERIMENT

Dynamics of the forms of radionuclides in the bottom sediments of cooling pond of the ChNPP after their drying and exposure in full-scale conditions has been estimated by the method of successive leaching. According to the results of the research the main part of the radionuclides (> 90 %) continues to be in the non-exchange state for 4 years after drying. Significant part of the radionuclides remains not recovered from the solid phase of bottom sediments of cooling pond of the ChNPP even after using "super-hard" extraction conditions. This indicates the presence of ⁹⁰Sr, ^{238,239,240}Pu, ²⁴¹Am and part of ¹³⁷Cs in the composition of chemically stable fuel particles. Therefore, this part of radionuclides can not be mobilized in natural conditions for dozens of years. The obtained results indicate that on the drained parts of the cooling pond bed of the ChNPP one should not expect significant increase of mobility and bioavailability of radionuclides in the next 5 - 10 years.

Keywords: sequential leaching of radionuclides, forms finding of radionuclides, radioactive contamination, bottom sediments, cooling pond of the ChNPP.

REFERENCES

1. Technical and economic reasons for the decommissioning of the cooling reservoir of the State Specialized Enterprise "Chernobyl NPP". In: Materials of technical seminar "Results of activities related with the decommissioning of the ChNPP cooling reservoir" (1 - 3 Oct. 2013, Kyiv). (Ukr)
2. D. Weiss et al. Collection and analysis of data related to the contamination of the Chernobyl cooling pond. CEC Contract No. B7-5350/99/62/42/MAR/C2. Final report. (GRS, 2000).
3. V.A. Kashparov et al. Kinetics of fuel particle weathering and ⁹⁰Sr mobility in the Chernobyl 30-km exclusion zone. *Health Physics* 76(3) (1999) 251.
4. V.A. Kashparov et al. Dissolution kinetics of particles of irradiated Chernobyl nuclear fuel: influence of pH and oxidation state on the release of radionuclides in contaminated soil of Chernobyl. *Journal of Nuclear Materials* 279 (2000) 225.
5. A.P. Konoplev, A.A. Bulgakov. Transformation of ⁹⁰Sr and ¹³⁷Cs in soil and bottom sediments. *Atomnaya energiya* 88 (1999) 55. (Rus)
6. A. Bulgakov et al. Fuel particles in the Chernobyl cooling pond: current state and prediction for remediation options. *Journal of Environmental Radioactivity* 100 (2009) 329.
7. V.A. Kashparov. Hot Particles at Chernobyl. *Environmental Science and Pollution Research Special issue* 1 (2003) 21.
8. V.A. Ageev et al. Determination of the ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr, ²³⁹⁺²⁴⁰Pu and ²⁴¹Am radionuclides forms in the soils of the Chernobyl NPP exclusion zone. *Agroekologichnyi zhurnal* 2 (2001) 68. (Rus)
9. A.A. Odintsov, A.D. Sazhenyuk, V.A. Satsyuk. Study of the ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr, ²³⁹⁺²⁴⁰Pu, ²⁴¹Am, ²⁴⁴Cm association with a soil-absorbing complex of soils, typical for the Chernobyl NPP near zone. *Radiokhimiya* 46(1) (2004) 87. (Rus)
10. V.A. Ageyev, O.O. Odintsov, A.D. Sajeniouk. Routine radiochemical method for the determination of ⁹⁰Sr, ²³⁸Pu, ²³⁹⁺²⁴⁰Pu, ²⁴¹Am and ²⁴⁴Cm in environmental samples. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 264(2) (2005) 337.
11. V.P. Protsak, O.O. Odintsov. Assessment of forms finding of Chernobyl radionuclides in bottom sediments of cooling pond of the ChNPP. *Yaderna Fizyka ta Energetyka (Nucl. Phys. At. Energy)* 15(3) (2014) 259. (Ukr)
12. V.A. Kashparov et al. Kinetics of dissolution of Chernobyl fuel particles in soil in natural conditions. *Journal of Environmental Radioactivity* 72(3) (2004) 335.
13. V.O. Kashparov. Radiological significance of the fuel component of the Chernobyl radioactive fallout. In: *Problemy Chornobyl's'koyi zony vidchuzhennya. Naukovo-tehnichniy zbirnyk. Iss. 9* (Kyiv: Knyga, 2009) 5. (Rus)

Надійшла 27.07.2017

Received 27.07.2017