

УДК 621.039

<https://doi.org/10.15407/jnpae2021.04.365>

О. О. Одінецов*, Л. А. Паламар, Л. Б. Чікур

Інститут проблем безпеки АЕС НАН України, Чорнобиль, Україна

*Відповідальний автор: oodin@ukr.net

**ФОРМИ ЗНАХОДЖЕННЯ УРАНУ І РАДІОНУКЛІДІВ У ДОННИХ ВІДКЛАДЕННЯХ
ПРИМІЩЕННЯ 001/3 ОБ'ЄКТА «УКРИТТЯ»**

Наведено результати експериментального визначення форм знаходження урану і радіонуклідів ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{154}Eu , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am і ^{244}Cm в донних відкладеннях (ДВ) приміщення 001/3 об'єкта «Укриття». Методом послідовних екстракцій визначено кількість водорозчинних, обмінних, карбонатних і кислоторозчинних форм урану, продуктів поділу (^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{154}Eu) і трансуранових елементів (^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am , ^{244}Cm) у ДВ приміщення 001/3 на позначці $-2,60$ м допоміжних систем реакторного відділення об'єкта «Укриття». Концентрація урану в ДВ приміщення 001/3 становить $3,1 \pm 0,5$ г/кг для повітряно-сухого стану. Питома активність для повітряно-сухого стану ^{90}Sr , ^{137}Cs в ДВ знаходиться в межах $6 \cdot 10^8 - 1 \cdot 10^9$ Бк/кг, а $^{239+240}\text{Pu}$ і ^{241}Am в межах $6 \cdot 10^5 - 8 \cdot 10^6$ Бк/кг. Уран і ^{137}Cs в ДВ приміщення 001/3 в основному знаходяться в обмінних формах. Кількість водорозчинних форм урану і цезію 1,5 - 3 %. Основна кількість ^{90}Sr , більше 60 % знаходиться у вигляді карбонатних сполучень, розчинних у слабокислому середовищі при рН 4,8. Більше 65 % ^{238}Pu і $^{239+240}\text{Pu}$ в ДВ знаходиться в кислоторозчинних формах. Рухливість ^{154}Eu , ^{241}Am і ^{244}Cm в ДВ значно вища, ніж плутонію, у розчинний стан при рН 4,8 переходить більше 40 % ^{241}Am . Відношення між активностями $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$, $^{90}\text{Sr}/^{239+240}\text{Pu}$, $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ і $^{244}\text{Cm}/^{239+240}\text{Pu}$ в ДВ значно відрізняються від аналогічних відношень радіонуклідів у паливовмісних матеріалах об'єкта «Укриття».

Ключові слова: уран, ^{137}Cs , ^{90}Sr , плутоній, америцій, форми знаходження радіонуклідів, донні відкладення, радіоактивно забруднена вода, об'єкт «Укриття».

1. Вступ

Одним із факторів радіаційної безпеки в об'єкті «Укриття» є радіоактивно забруднена вода (РЗВ). Водні потоки потрапляють у приміщення, де локалізовані паливовмісні матеріали (ПВМ). Взаємодія води з конструкційними матеріалами і ПВМ призводить до утворення РЗВ, що містить уран, продукти поділу (ПД) і трансуранові елементи (ТУЕ) [1 - 7]. РЗВ об'єкта «Укриття» – це лужні гідрокарбонатні розчини з мінералізацією 1 - 3 г/дм³ [3].

У роботах [2 - 5] визначено, що основна кількість водних потоків в об'єкті «Укриття» збирається у його північній частині в приміщенні 001/3 допоміжних систем реакторного відділення (ДСРВ) на позначці мінус 2,60 м. У приміщенні 001/3 постійно знаходяться неорганізовані скупчення РЗВ, об'єм їх за різними оцінками до 270 м³ [2]. У результаті фізико-хімічних процесів коагуляції, осадження дисперсної фази важкорозчинних солей у цих скупченнях води утворюються донні відкладення (ДВ), що містять уран і радіонукліди ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{154}Eu , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am і ^{244}Cm . Під шаром води в приміщенні 001/3 знаходяться ДВ у вигляді мулу. Об'єм цих відкладень оцінюється в 65 м³ [1, 2] – порядку 100 т. Склад ДВ в основному формується внаслідок таких процесів:

деструкція пластифікованого і конструкційного бетону;

корозія металевих конструкцій;

осадження колоїдних форм і розчинних продуктів деструкції та корозії;

осадження органічних сполучень.

Розрахунковий вміст урану в ДВ приміщення 001/3 приблизно 80 кг. При цьому кількість матеріалів, що діляться, ^{235}U і ^{239}Pu оцінюється приблизно 860 і 430 г відповідно [4].

Питання ядерної безпеки неорганізованих скупчень РЗВ і ДВ у приміщенні 001/3 розглянуті в роботі [4]. На даний час скупчення РЗВ і ДВ об'єкта «Укриття» є ядерно безпечними.

У роботах [5, 6] відзначається, що поряд із сезонними коливаннями концентрацій урану та об'ємної активності радіонуклідів у воді приміщення 001/3 спостерігалось стійке зростання вмісту урану і ТУЕ. Форми знаходження радіонуклідів і дисперсний склад суспензій рідких радіоактивних відходів (РРВ) об'єкта «Укриття» вивчені в роботах [7, 8]. Уран і більша частина ^{137}Cs знаходяться в розчинному стані. ТУЕ і ^{90}Sr асоційовані в основному з дисперсними частинками різних розмірів від 0,01 до 3 мкм.

Після встановлення арки НБК в проектне положення надходження води в приміщення 001/3 значно зменшилося, однак протягом останніх

10 років рівень води в контрольній точці (осі 49 - 50, ряд У - У₁) становить 1,1 м і практично не змінюється [9].

Визначення фізико-хімічних форм знаходження урану і радіонуклідів у ДВ дозволяє визначити механізми утворення ДВ у неорганізованих скупченнях РЗВ об'єкта «Укриття». Оцінка кількості водорозчинних й обмінних форм урану і радіонуклідів у ДВ необхідна для прогнозування міграційної здатності їх і виявлення шляхів вторинного перерозподілу радіоактивних ізотопів, що діляться, в об'єкті «Укриття».

Мета даної роботи полягала у визначенні фізико-хімічних форм знаходження ізотопів урану ^{234,235,236,238}U і радіонуклідів ⁹⁰Sr, ¹³⁷Cs, ¹⁵⁴Eu, ²³⁸Pu,

²³⁹⁺²⁴⁰Pu, ²⁴¹Am і ²⁴⁴Cm в ДВ у приміщенні 001/3 об'єкта «Укриття».

2. Матеріали та методи

Точка відбору проб ДВ.

На рис. 1 показано схему розташування приміщення 001/3 на вертикальному розрізі ДСРВ об'єкта «Укриття» в осях 39 - 52 і рядах У - У₁. Більша частина водних потоків з верхніх позначок об'єкта «Укриття» до установки арки НБК у проектне положення збиралася у приміщенні 001/3 (позначка -2,60 м) ДСРВ. Кількість води в приміщенні 001/3 протягом багатьох років залишається практично постійною і становить приблизно 270 м³.

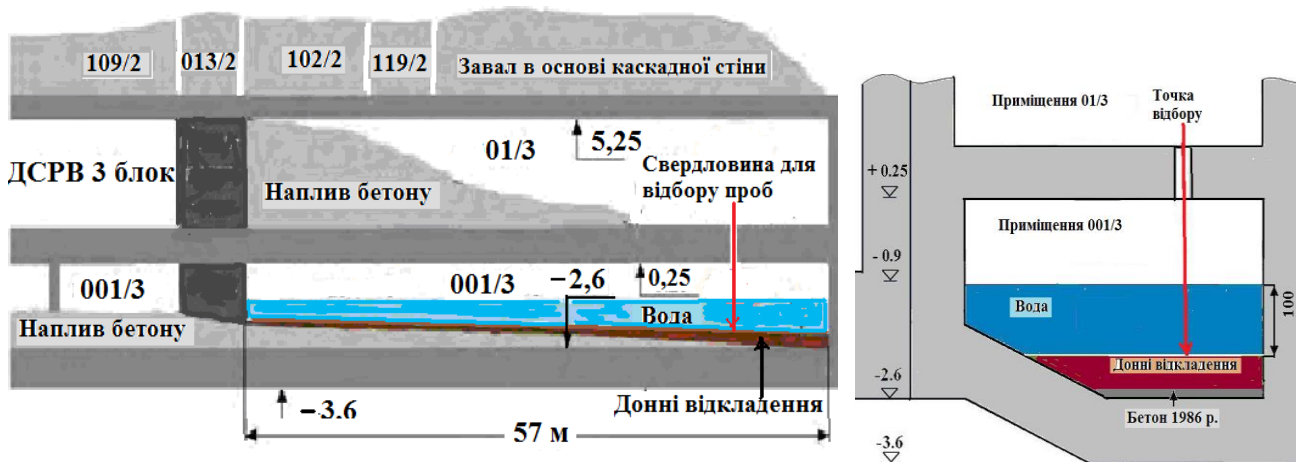


Рис. 1. Схема приміщення 001/3 об'єкта «Укриття» і місце відбору проб мулу.
(Див. кольоровий рисунок на сайті журналу.)

Довжина приміщення 001/3 57 м, ширина до позначки мінус 1,48 м становить 6 м. До аварії приміщення розташовувалося між осями 24 - 51' і мало довжину 162 м. Під час будівництва об'єкта «Укриття» між осями 41 і 42 була встановлена стіна, що відокремила частину примі-

щення 001/3 ДСРВ 4-го блока ЧАЕС від 3-го блока. При цьому частина приміщення 001/3, яка відноситься до об'єкта «Укриття», виявилася залитою бетоном, що змінило геометрію вільного простору.



Приміщення 01/3



Приміщення 001/3

Рис. 2. Неорганізовані водні скупчення у приміщенні 001/3 об'єкта «Укриття».
(Див. кольоровий рисунок на сайті журналу.)

На даний час доступ до приміщення 001/3 обмежений: сходи по ряду У між осями 51 - 51' на висоті одного прольоту залиті водою (рис. 2). Крім того, ці сходи від основного приміщення відокремлює стіна, в якій є двері, також на 3/4 залиті водою. У зв'язку з цим випробовування проводяться через свердловину, пробурену в підлозі приміщення 01/3. Рівень води в приміщенні 001/3 постійно тримається на одній позначці, що дорівнює 113,1 м в Балтійській системі висот; глибина водного скупчення 1,08 м. Детальний опис скупчень РРВ, основні джерела і напрямлення перетоку води у приміщеннях об'єкта «Укриття» наведені в роботах [1, 5]. Під шаром води знаходяться ДВ, що формувалися за весь період експлуатації об'єкта «Укриття». При детальному обстеженні приміщення 001/3 було встановлено, що шар ДВ у місці свердловини, пробуреній у підлозі приміщення 01/3 25 - 30 см.

Відбір проб ДВ.

Проби ДВ у приміщенні 001/3 відбирали протягом 2015 - 2017 рр. пробовідбірником через свердловину, пробурену в підлозі приміщення 01/3, на позначці + 1,25 м (див. рис. 1). Проби ДВ (мулу) представляли собою масу темного кольору з характерним запахом (рис. 3, а) і вологістю 65 %, втрати при прожарюванні при 600 °С 25 %. Втрати при прожарюванні в основному визначаються кількістю органічної фази в ДВ. Щільність повітряно-сухого мулу $1,4 \pm 0,2$ г/см³.

На рис. 3, б видно, що ДВ після прожарювання змінюють забарвлення з чорного кольору на буро-коричневий. Це обумовлено згорянням органічних речовин і мінералізацією ДВ. Буро-коричневий колір прожарених ДВ свідчить про великий вміст окислів заліза Fe₂O₃.

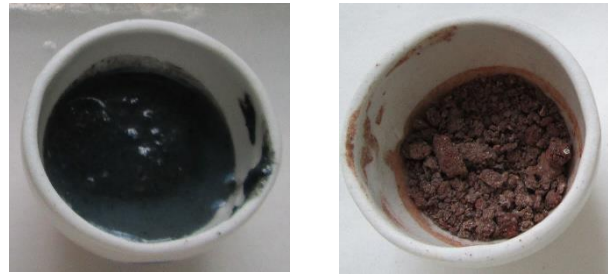


Рис. 3. ДВ приміщення 001/3, а – вихідні; б – прожарені.

(Див. кольоровий рисунок на сайті журналу.)

ДВ представляють собою неоднорідну суміш грубо дисперсних частинок і чорного мулу з характерним запахом органічних речовин, що розкладаються. Верхній шар ДВ складається з більш легкої і більш радіоактивної мулистій фракції. Середня щільність сухого осаду $1,54 \pm 0,2$ г/см³. Вологість мулистій фракції осаду приблизно 85 %. ДВ в основному складаються із сполучень кальцію і кремнію (більше 60 % у перерахунку на сухий залишок), найімовірніше всього у вигляді CaCO₃ і CaSiO₃. Крім того, до складу осаду входять сполучення заліза, магнію, урану, а також деяка кількість органічних сполук. Нижній шар ДВ в основному складається із звичайного піску (SiO₂), який, імовірно, утворився внаслідок руйнування бетону, що додавався у зруйнований 4-й блок ЧАЕС у 1986 р.

Вміст радіонуклідів у фільтратах надосадової рідини після відстоювання проб ДВ у лабораторії протягом доби наведено в табл. 1.

Таблиця 1. Вміст радіонуклідів у фільтратах води, Бк/дм³

Фільтр	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs	¹⁵⁴ Eu	¹⁵⁵ Eu	²³⁸ Pu	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Am	U мг/дм ³
«Синя стрічка»	$2,2 \cdot 10^6$	$1,2 \cdot 10^7$	$1,6 \cdot 10^3$	250	310	560	$6,7 \cdot 10^3$	8,8
Мембрана 0,2 мкм	$2,7 \cdot 10^5$	$6,8 \cdot 10^6$	99	< МДА	39	85	590	8,6

При фільтруванні надосадової рідини через паперовий фільтр «Синя стрічка» на фільтрі осідають частинки розмірами більше 3 мкм. Як видно з табл. 1, вміст радіонуклідів у фільтраті після мембранного фільтра розміром пор ~ 0,2 мкм в 2 - 16 раз менше, ніж у фільтраті після фільтра «Синя стрічка». Це свідчить, що знач-

на частина ⁹⁰Sr, ^{154,155}Eu, ^{238,239,240}Pu і ²⁴¹Am знаходиться у складі дисперсної фази з розмірами частинок 0,2 - 3 мкм. Концентрація урану в обох фільтратах з урахуванням похибки визначення практично однакова, тобто уран знаходиться в розчинному стані, найімовірніше всього у вигляді карбонатних комплексів.

Таблиця 2. Концентрація макрокомпонентів (мг/дм³) у РЗВ приміщення 001/3

pH	ХСК, мгО ₂ /дм ³	НРО ₄ ²⁻	СО ₃ ²⁻	НСО ₃ ⁻	СІ ⁻	SO ₄ ²⁻
$9,2 \pm 0,2$	79 ± 17	$0,57 \pm 0,23$	86 ± 26	450 ± 30	39 ± 8	430 ± 25
NO ₃ ⁻	SiO ₂	K ⁺ + Na ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	Fe ³⁺	Zn ²⁺
89 ± 16	$2,4 \pm 0,6$	740 ± 130	18 ± 3	$4,7 \pm 0,7$	$3,9 \pm 1,2$	$0,76 \pm 0,28$

У табл. 2 наведено концентрації макрокомпонентів у воді приміщення 001/3. Вода являє со-

бою лужний гідро-карбонатний розчин з pH 9,2. Сумарний вміст катіонів і аніонів $1,86$ г/дм³. Се-

ред аніонів домінують карбонати, гідрокарбонати, сульфати і нітрати. Вміст катіонів визначається в основному калієм, натрієм і кальцієм.

Методика послідовних екстракцій.

Визначення водорозчинних, обмінних, специфічно сорбованих, рухомих і кислоторозчинних форм урану та радіонуклідів ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{154}Eu , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am і ^{244}Cm в ДВ приміщення 001/3 виконувалися згідно із загальноприйнятими методиками [10 - 12]. Як правило, форми знаходження радіонуклідів визначають методом послідовних екстракцій різними реактивами, які вибірково вилуговуються або розчиняють ті чи інші хімічні сполуки радіонуклідів [10, 11]. Міграційна здатність радіонуклідів, асоційованих з

ДВ, визначається кількістю водорозчинних, обмінних, карбонатних і рухомих (розчинних у розбавлених кислотах) форм [10, 12, 13]. Для визначення кількості водорозчинних, обмінних, пов'язаних з карбонатами і кислоторозчинних форм урану і радіонуклідів, наважки повітряні сухих проб ДВ послідовно оброблялися різними реагентами відповідно до схем I та II. Схеми визначення хімічних форм урану і радіонуклідів у ДВ приміщення 001/3 наведено в табл. 3. Два протоколи вилуговування радіонуклідів використовувалися для більш детального вивчення форм знаходження радіонуклідів у ДВ. Обидві схеми використовувалися для всіх радіонуклідів ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{154}Eu , $^{238,239,240}\text{Pu}$, ^{241}Am і $^{234,235,236,238}\text{U}$.

Таблиця 3. Схеми послідовних екстракцій

Форма надходження	Реагент	
	Схема I	Схема II
Водорозчинна	Дистильована вода (H_2O)	Дистильована вода (H_2O)
Обмінна	1 моль/л $\text{CH}_3\text{COONH}_4$ pH 7,0	1 моль/л $\text{CH}_3\text{COONH}_4$ pH 7,0
Карбонатна	н.в.*	1 моль/л $\text{CH}_3\text{COONH}_4$ pH 4,8
Рухлива	1 моль/л HCl	1 моль/л HCl
Пов'язані з аморфними оксидами Fe_2O_3 і Al_2O_3	Розчин Тамма (0,2 моль/л $(\text{NH}_4)_2\text{C}_2\text{O}_4$ + 0,1 моль/л $\text{H}_2\text{C}_2\text{O}_4$) pH 3,2	н.в.
Кислоторозчинні	8 моль/л HNO_3	9 моль/л HCl
Нерозчинний залишок	HNO_3 + HF , після озолення при 600 °C	HNO_3 + HF , після озолення при 600 °C

* Не визначали.

Вилуговування урану і радіонуклідів проводилося дистильованою водою в статичних умовах протягом 24 год при періодичному перемішуванні; розчином 1 моль/л ацетату амонію при pH 7,0; розчином 1 моль/л ацетату амонію при pH 4,8; розчином 1 моль/л соляної кислоти; розчином Тамма; розчином 9 моль/л соляної кислоти і розчином азотної 8 моль/л кислоти. Співвідношення рідкої та твердої фаз $\tau : \rho - 1 : 10$. Рідку фазу відокремлювали від нерозчинного залишку центрифугуванням при 6000 об/хв з подальшим фільтруванням через паперовий фільтр «Синя стрічка».

В усіх вилугованих розчинах і нерозчинному залишку визначалися вміст урану і радіонуклідів. Активність γ -випромінюючих радіонуклідів ^{137}Cs , ^{154}Eu , ^{241}Am визначалися γ -спектрометричними вимірюваннями на γ -спектрометричному комплексі в складі напівпровідникового детектора GL2020R із надчистого германію CANBERRA і 16000-канального амплітудного аналізатора імпульсів CANBERRA. Детектор має вікно з берилію товщиною 500 мкм. Мінімальна активність, яка визначається для геометрії вимірювань для γ -лінії 59 кеВ (^{241}Am), становила 0,1 Бк/пробу, для $^{137\text{m}}\text{Ba}$ (661,6 кеВ) - 0,4 Бк/пробу. Обробка апаратурних спектрів виконувалася у програмному середовищі GENIE-2000.

Вміст урану, ^{90}Sr , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am і ^{244}Cm визначали з однієї проби вилуговуючих розчинів за іонообмінною методикою [14]. Активність ^{90}Sr визначали β -радіометричними вимірюваннями після радіохімічного виділення на низькофоновому β -радіометрі УМФ-1500. Активність ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am і ^{244}Cm визначалися α -спектрометричними вимірюваннями після радіохімічного виділення на α -спектрометрі фірми ORTEC. Концентрацію урану визначали спектрофотометричним методом. Ізотопний вміст урану розраховували на підставі α -спектрометричних вимірювань ^{234}U , ^{235}U , ^{236}U і ^{238}U після радіохімічного виділення фракції урану. Похибка визначення концентрації урану та об'ємної активності радіонуклідів не перевищувала 10 - 15 %. Концентрації важких металів у розчинах після висушування на фільтрувальному папері визначалися на рентгенофлуоресцентному спектрометрі X – Supreme 8000 OXFORD instrumentation.

3. Результати досліджень та обговорення їх

Питома активність (Бк/кг) радіонуклідів у повітряно-сухих пробах ДВ приміщення 001/3 об'єкта «Укриття» наведена в табл. 4. Питома активність ^{90}Sr в ДВ приміщення 001/3 ($6,72 \pm \pm 0,81$) $\cdot 10^8$ Бк/кг у перерахунку на повітряно-

суху наважку. Питома активність ^{90}Sr в ДВ на два порядки вища, ніж в РЗВ приміщення 001/3. Найбільший внесок у питому активність ДВ надає ^{137}Cs ($8,57 \pm 0,52$) $\cdot 10^8$ Бк/кг, питома активність ^{137}Cs в ДВ на порядок більша, ніж в РЗВ.

Вміст ^{154}Eu в ДВ ($9,3 \pm 1,9$) $\cdot 10^5$ Бк/кг. Питомі активності $^{239+240}\text{Pu}$ і ^{241}Am ($8,22 \pm 2,44$) $\cdot 10^5$ і ($6,63 \pm 1,34$) $\cdot 10^6$ Бк/кг відповідно. Питомі активності ^{238}Pu і ^{244}Cm по порядку величини однакові й не перевищують $5,1\cdot 10^5$ Бк/кг.

Таблиця 4. Питома активність ДВ, Бк/кг

Дата відбору	Радіонуклід						
	^{90}Sr	^{137}Cs	^{154}Eu	^{238}Pu	$^{239+240}\text{Pu}$	^{241}Am	^{244}Cm
02.07.2015 р.	$5,8\cdot 10^8$	$8,5\cdot 10^8$	$1,1\cdot 10^6$	$3,3\cdot 10^5$	$7,1\cdot 10^5$	$7,5\cdot 10^6$	$2,7\cdot 10^5$
07.06.2016 р.	$6,9\cdot 10^8$	$9,9\cdot 10^8$	$7,1\cdot 10^5$	$2,8\cdot 10^5$	$6,5\cdot 10^5$	$5,1\cdot 10^6$	$1,7\cdot 10^5$
06.07.2017 р.	$7,4\cdot 10^8$	$8,1\cdot 10^8$	$9,8\cdot 10^5$	$5,1\cdot 10^5$	$1,1\cdot 10^6$	$7,3\cdot 10^6$	$2,4\cdot 10^5$

З урахуванням похибки визначення питомих активностей радіонуклідів у ДВ результати, отримані протягом 2015 - 2017 рр., відрізняються несуттєво. Із табл. 4 видно, що питома активність ДВ по сумі α - і β -випромінюючих нуклідів становить $2\cdot 10^9$ Бк/кг (у перерахунку на повітряно-сухий стан).

Питомий вміст (у перерахунку на повітряно-сухий стан) та ізотопний склад урану в ДВ при-

міщення 001/3 наведено в табл. 5. Вміст урану в дослідних пробах ДВ становив 2,2 - 3,1 г/кг, при вмісті ^{235}U 0,026 - 0,033 г/кг. Масові долі ізотопів урану: ^{234}U - 0,000159, ^{235}U - 0,01045, ^{236}U - 0,00189 і ^{238}U - 0,9875. Ізотопний склад урану у ДВ в цілому відповідає ізотопному складу урану опроміненого палива 4-го блока ЧАЕС із середнім вигоранням.

Таблиця 5. Вміст урану і масова частка ізотопів урану в ДВ

Дата відбору	Уран, г/кг	Ізотопний склад урану, %			
		^{234}U	^{235}U	^{236}U	^{238}U
02.07.2015 р.	$3,1 \pm 0,5$	$0,016 \pm 0,003$	$1,06 \pm 0,13$	$0,184 \pm 0,028$	$98,74 \pm 2,87$
07.06.2016 р.	$2,4 \pm 0,4$	$0,015 \pm 0,002$	$1,03 \pm 0,12$	$0,185 \pm 0,026$	$98,77 \pm 2,96$
06.07.2017 р.	$2,2 \pm 0,4$	$0,015 \pm 0,002$	$0,98 \pm 0,15$	$0,175 \pm 0,029$	$98,83 \pm 2,94$

Поряд з абсолютними значеннями питомої активності радіонуклідів у ДВ для виявлення особливостей міграції радіонуклідів з водними потоками та механізмів утворення високоактивних ДВ важливе значення мають відношення між активностями різних радіонуклідів. Радіонукліди ^{90}Sr , ^{137}Cs , $^{239+240}\text{Pu}$ і ^{241}Am представляють елементи різних груп періодичної системи елементів. Поведінка ^{90}Sr , ^{137}Cs , $^{239+240}\text{Pu}$ і ^{241}Am у водних розчинах визначається хімічними властивостями

цезію, стронцію, плутонію і америцію, зокрема здатність утворювати важкорозчинні сполуки в умовах високого лугового середовища з великим вмістом карбонат іонів. У табл. 6 наведено експериментально визначені відношення активності різних радіонуклідів до активності $^{239+240}\text{Pu}$ у пробах РЗВ, ДВ і лавоподібних паливовмісних матеріалів (ЛПВМ), а також розрахункові значення відношень активностей для опроміненого палива 4-го блока ЧАЕС при середньому вигоранні.

Таблиця 6. Співвідношення між активностями радіонуклідів у воді та ДВ приміщення 001/3 об'єкта «Укриття»

Найменування	$^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$	$^{137}\text{Cs}/^{239+240}\text{Pu}$	$^{90}\text{Sr}/^{239+240}\text{Pu}$	$^{154}\text{Eu}/^{239+240}\text{Pu}$	$^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$	$^{244}\text{Cm}/^{239+240}\text{Pu}$
РЗВ	3,23	7668	2410	1,91	0,473	11,3	0,312
ДВ	1,15	1590	1450	1,94	0,464	6,63	0,47
ЛПВМ	0,48	18,9	47,4	0,386	0,469	2,04	0,042
Розрахункове значення*	1,21	51,8	45	0,468	0,461	1,89	0,051

* Розрахунок для «середнього» палива 4-го блока ЧАЕС [15].

Слід відзначити, що відношення активностей ізотопів плутонію $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ у РЗВ, ДВ і ЛПВМ практично однакові та вищі розрахункового значення. Це свідчить про те, що всі ізотопи плутонію вилугуюються (розчиняються) водою

із ЛПВМ однаково, переносяться водними потоками на нижні позначки об'єкта «Укриття» і акумулюються в ДВ. Відношення активностей $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$, $^{137}\text{Cs}/^{239+240}\text{Pu}$, $^{90}\text{Sr}/^{239+240}\text{Pu}$, $^{154}\text{Eu}/^{239+240}\text{Pu}$, $^{244}\text{Cm}/^{239+240}\text{Pu}$ і $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ у

пробах ДВ відрізняються від аналогічних відношень у РЗВ приміщення 001/3 і ЛПВМ об'єкта «Укриття». Це свідчить як про різну ступінь вилуговування радіонуклідів з ПВМ, так і про різну поведінку радіонуклідів у лужних карбонатних розчинах, які є РЗВ об'єкта «Укриття». Відношення активностей $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ для всіх досліджених скупчень РЗВ вище, ніж у ЛПВМ та опроміненому паливі 4-го блока ЧАЕС і становить 3,2. Слід відзначити, що відношення активностей $^{137}\text{Cs}/^{239+240}\text{Pu}$ і $^{90}\text{Sr}/^{239+240}\text{Pu}$ в ДВ у 4,8 і 1,7 раза нижчі, ніж у РЗВ, тобто акумуляція $^{239+240}\text{Pu}$ ДВ вища, ніж ^{90}Sr і ^{137}Cs . Відношення активностей $^{244}\text{Cm}/^{239+240}\text{Pu}$ і $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ в ДВ у 3 рази вище, ніж у ЛПВМ та опроміненому паливі 4-го блока ЧАЕС, при цьому відносний вміст ^{244}Cm і ^{241}Am у РЗВ приміщення 001/3 у 1,7 раза вищий,

ніж у ДВ. Це означає, що плутоній більше акумулюється ДВ, ніж америцій та кюрій.

Вміст водорозчинних (H_2O), обмінних (1М NH_4Ac , рН 7,0), карбонатних та специфічно сорбованих (1М NH_4Ac , рН 4,8), рухливих (1М HCl) і кислоторозчинних (9М HCl) форм урану і радіонуклідів ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{154}Eu , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am і ^{244}Cm Бк на 1 г повітряно-сухої наважки у зразках ДВ приміщення 001/3 наведено в табл. 7 і 8. При обробці наважок ДВ дистильованою водою та амонійно-ацетатним буфером з рН 7,0 сумарно в розчинний стан переходить 0,21 мг урану на 1 г ДВ, а також $1,4 \cdot 10^5$ Бк ^{90}Sr , $6,6 \cdot 10^5$ Бк ^{137}Cs , 13,6 Бк $^{239+240}\text{Pu}$ і 197 Бк ^{241}Am . Це свідчить про високу міграційну здатність урану і радіонуклідів, асоційованих з ДВ приміщення 001/3.

Таблиця 7. Вміст урану і радіонуклідів у вилуговуючих розчинах

Реагент	U, мг/г	^{90}Sr , Бк/г	^{137}Cs , Бк/г	^{154}Eu , Бк/г
H_2O	$0,041 \pm 0,013$	$(1,45 \pm 0,23) \cdot 10^4$	$(3,62 \pm 0,42) \cdot 10^4$	$3,11 \pm 0,84$
1М NH_4Ac , рН 7,0	$0,165 \pm 0,018$	$(1,29 \pm 0,19) \cdot 10^5$	$(6,21 \pm 0,77) \cdot 10^5$	$35,2 \pm 7,7$
1М NH_4Ac , рН 4,8	$0,539 \pm 0,047$	$(4,31 \pm 0,57) \cdot 10^5$	$(3,14 \pm 0,38) \cdot 10^5$	447 ± 69
1М HCl	$1,77 \pm 0,51$	$(8,11 \pm 1,03) \cdot 10^4$	$(1,98 \pm 0,23) \cdot 10^5$	383 ± 57
9М HCl	$0,363 \pm 0,096$	$(1,86 \pm 0,31) \cdot 10^4$	$(9,78 \pm 1,34) \cdot 10^4$	107 ± 17

Таблиця 8. Вміст радіонуклідів у вилуговуючих розчинах, Бк/г ДВ

Реагент	^{238}Pu	$^{239+240}\text{Pu}$	^{241}Am	^{244}Cm
H_2O	$0,61 \pm 0,11$	$1,51 \pm 0,21$	$14,3 \pm 2,2$	$0,39 \pm 0,11$
1М NH_4Ac , рН 7,0	$5,71 \pm 0,87$	$12,1 \pm 1,7$	183 ± 25	$6,17 \pm 1,04$
1М NH_4Ac , рН 4,8	$79,2 \pm 8,8$	153 ± 19	2050 ± 240	$65,6 \pm 10,2$
1М HCl	183 ± 23	366 ± 45	2120 ± 250	$72,1 \pm 10,7$
9М HCl	$45,3 \pm 6,1$	101 ± 14	558 ± 74	$16,2 \pm 2,6$

На рис. 4 показано розподіл радіонуклідів ^{90}Sr і ^{137}Cs по різних фракціях вилуговуючих розчинів у пробах ДВ. Форми знаходження ^{137}Cs , визначені за двома схемами послідовних екстракцій, принципово не відрізняються між собою. Водорозчинні форми ^{137}Cs становлять 2,2 - 2,9 %. Доля обмінних форм ^{137}Cs 46 - 58 %, що свідчить про значні міграційні здібності ^{137}Cs . Рухливі (розчинні в 1 моль/л HCl) форми ^{137}Cs знаходяться в межах від 20 до 26 %. Кислоторозчинні форми ^{137}Cs 5 - 9 %. Нерозчинний, після всіх послідовних екстракцій, залишок ^{137}Cs не перевищує 8 %. Слід відзначити, що частка міцно фіксованого ^{137}Cs у ґрунтах зони відчуження [12] і ДВ водойми охолоджувача ЧАЕС [13] становить 35 - 45 %. Фіксація ^{137}Cs відбувається за рахунок входження цезію в кристалічну решітку глинистих мінералів, присутніх у ґрунті та ДВ відкритих водойм.

Водорозчинні форми ^{90}Sr у ДВ приміщення 001/3 не перевищують 2,5 %. Кількість обмінних форм ^{90}Sr знаходиться в межах 18 - 28 %. Основна кількість ^{90}Sr до 66 % знаходиться у вигляді

карбонатних сполук SrCO_3 , що осаджуються разом з важкорозчинними солями макрокомпонентів CaCO_3 і MgCO_3 . Вода в приміщенні 001/3 лужна з рН 9,1 при вмісті карбонатів 50 - 100 мг/дм³ і гідрокарбонатів 300 - 400 мг/дм³. Ці умови сприятливі для утворення важкорозчинних сполук CaCO_3 і MgCO_3 . При високих концентраціях карбонат іонів, що характерні для «блочних» вод на нижніх позначках об'єкта «Укриття», стронцій утворює важкорозчинні сполуки SrCO_3 (похідна розчинності – $1,1 \cdot 10^{-10}$), які осаджуються разом з CaCO_3 (похідна розчинності – $0,5 \cdot 10^{-10}$) [16]. Концентрація кальцію у воді приміщення 001/3 (див. табл. 2) близько 20 мг/л. Це значення знаходиться на рівні межі розчинності кальцію в лужно-карбонатних розчинах, тому надлишок карбонату кальцію випадає в осад і захоплює карбонат $^{90}\text{SrCO}_3$. Дослідження хімічного складу ДВ підтвердили, що найбільш збагачені ^{90}Sr дрібнодисперсні частинки твердої фази складаються в основному із CaCO_3 . Частка кислоторозчинних форм ^{90}Sr у ДВ відносно невелика 2,5 - 4,5 %.

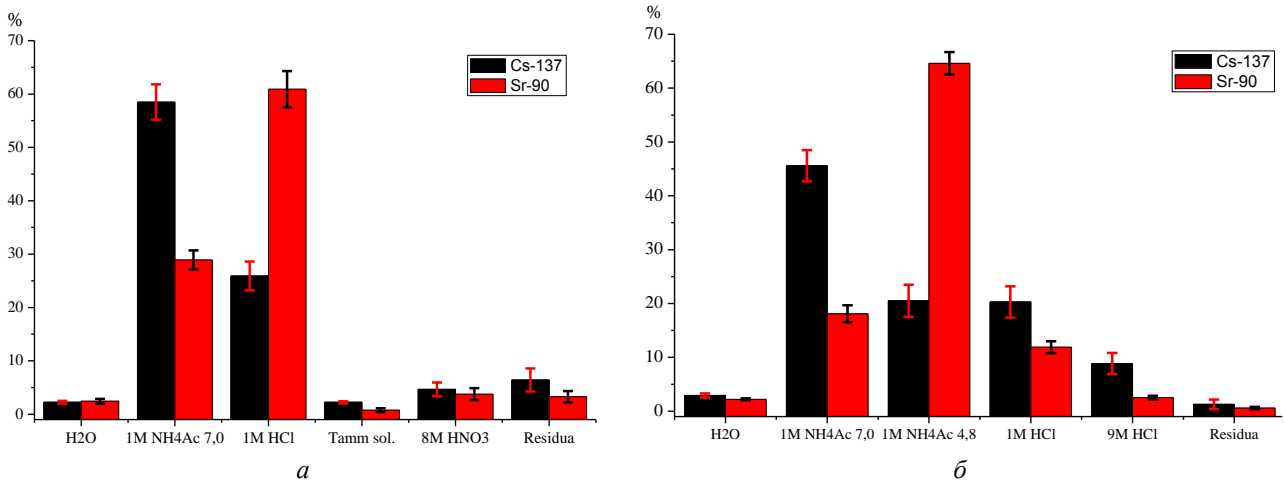


Рис. 4 Форми знаходження ^{137}Cs і ^{90}Sr у ДВ приміщення 001/3: *a* – схема I; *б* – схема II. (Див. кольоровий рисунок на сайті журналу.)

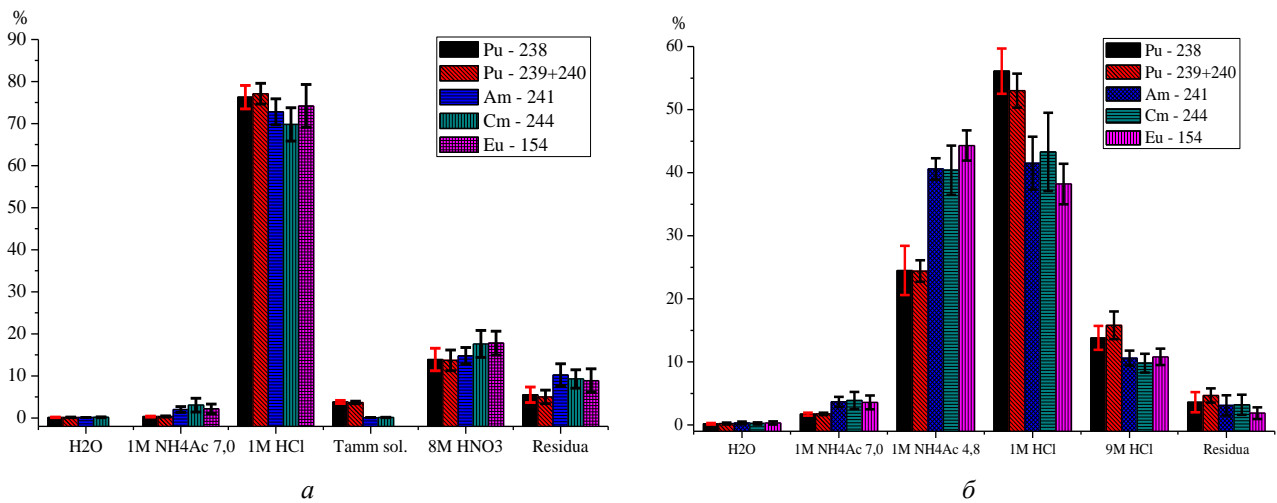


Рис. 5 Форми знаходження радіонуклідів у ДВ приміщення 001/3: *a* – схема I, *б* – схема II. (Див. кольоровий рисунок на сайті журналу.)

На рис. 5 показано форми знаходження у ДВ приміщення 001/3 радіонуклідів ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am , ^{244}Cm і ^{154}Eu . Розподіл форм знаходження ^{238}Pu і $^{239+240}\text{Pu}$ з урахуванням похибки визначення практично однакові. Сумарна частка водорозчинних і обмінних форм $^{238,239,240}\text{Pu}$ у ДВ невелика – 0,5 - 2 %. У слабкислому середовищі при рН 4,8 (1 моль/л NH_4Ac) у розчинний стан переходить до 25 % $^{238,239,240}\text{Pu}$ (рис. 5, *б*). Слід відзначити, що плутоній у ДВ приміщення 001/3 знаходиться в основному у вигляді сполук добре розчинних у 1 моль/л HCl , частка яких більше 70 %. У лужному середовищі плутоній гідролізується і утворює важкорозчинні гідроксиди $\text{Pu}(\text{OH})_4$, які співсаджуються при коагуляції гідроксидів заліза та інших важких металів. На відміну від ґрунтів і ДВ відкритих водойм частка $^{238,239,240}\text{Pu}$, пов'язана з аморфними окислами заліза і алюмінію в ДВ приміщення 001/3, не перевищує 4 %. Це свідчить, що у ДВ приміщення 001/3 відсутні комплексоутворювальні сполуки, що міцно зв'язують 4-валентний плутоній у ґрунтах.

Добре відомо [17], що хімічні властивості 3-валентних трансплутонієвих і рідкоземельних елементів америцію, кюрію та європію однакові. Форми знаходження ^{241}Am , ^{244}Cm і ^{154}Eu в ДВ приміщення 001/3 з урахуванням похибки визначення однакові (див. рис. 5). Кількість водорозчинних форм ^{241}Am , ^{244}Cm і ^{154}Eu 0,15 - 0,33 %. Обмінні форми ^{241}Am , ^{244}Cm і ^{154}Eu 2 - 4 %. Гідрооксиди 3-валентних $^{241}\text{Am}(\text{OH})_3$, $^{244}\text{Cm}(\text{OH})_3$ і $^{154}\text{Eu}(\text{OH})_3$ в слабкислому середовищі краще розчиняються, ніж $\text{Pu}(\text{OH})_4$, тому при розчиненні ДВ приміщення 001/3 в 1 моль/л NH_4Ac із рН 4,8 у розчин переходить 40 - 45 % ^{241}Am , ^{244}Cm і ^{154}Eu . Частка рухомих форм ^{241}Am , ^{244}Cm і ^{154}Eu залежно від схеми проведення послідовних екстракцій від 40 до 70 %. Кислоторозчинні форми ^{241}Am , ^{244}Cm і ^{154}Eu в ДВ приміщення 001/3 не перевищують 15 %.

Розподіл форм знаходження ізотопів урану в ДВ приміщення 001/3 показано на рис. 6. У ДВ приміщення 001/3 об'єкта «Укриття» уран знаходиться у вигляді різних форм. З урахуванням

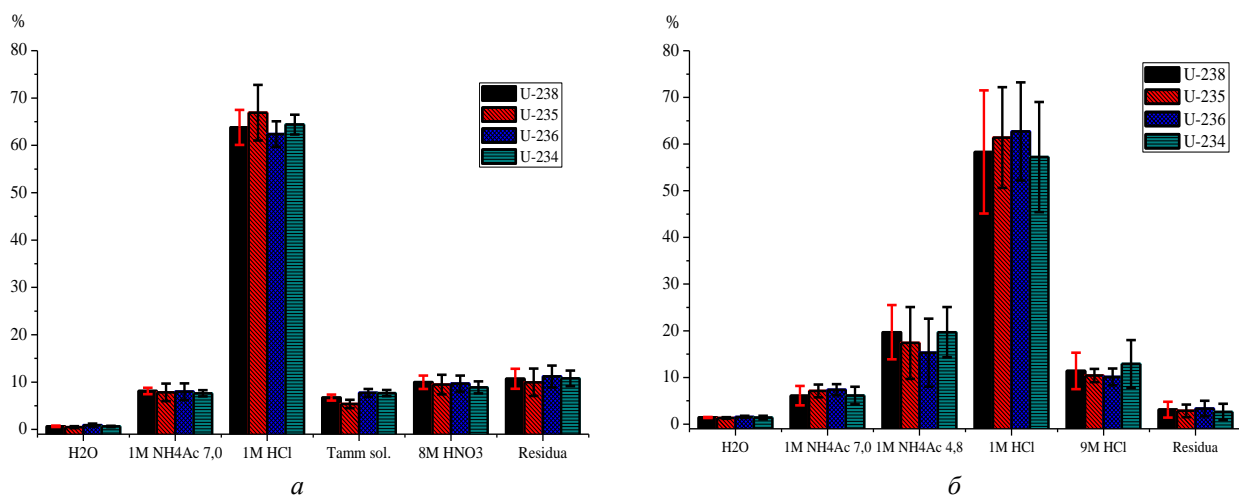


Рис. 6 Форми знаходження ізоотопів урану в ДВ приміщення 001/3: а – схема I; б – схема II. (Див. кольоровий рисунок на сайті журналу.)

похибки визначення форми знаходження ²³⁴U, ²³⁵U, ²³⁶U і ²³⁸U практично однакові. Як видно на рисунку кількість водорозчинних сполук урану не перевищує 1,5 %. Частка обмінних форм урану 6 - 8 %. Аналогічно плутонію та америцію уран у ДВ знаходиться у вигляді гідроксидів, що добре розчиняються у розбавлених кислотах, частка рухомих форм урану 58 - 64 %. Це свід-

чить про низький ступінь іммобілізації урану в ДВ і значну ймовірність переносу урану з водними потоками при зміні хімічного складу води об'єкта «Укриття». Кислоторозчинні форми урану в ДВ не перевищують 15 %. Частка важкорозчинних сполук урану знаходиться в межах від 5 до 12 %.

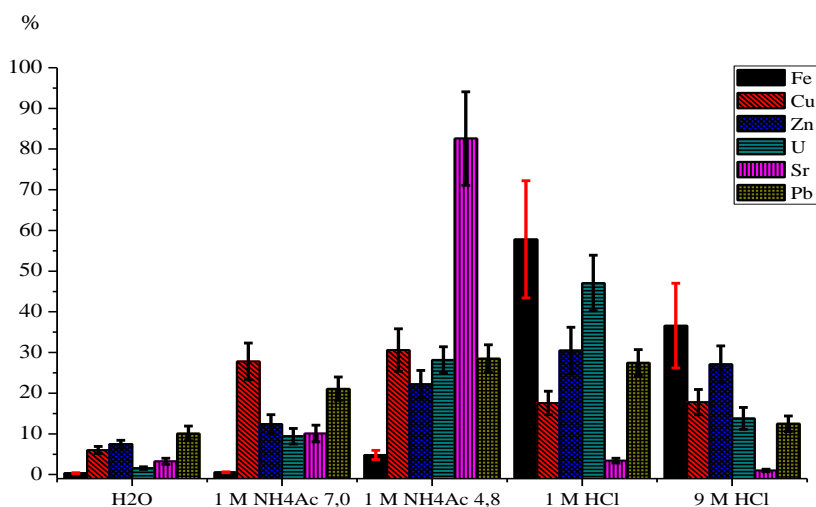


Рис. 7. Форми знаходження стабільних елементів у ДВ приміщення 001/3. (Див. кольоровий рисунок на сайті журналу.)

На рис. 7 показано розподіл форм знаходження стабільних елементів заліза, міді, цинку, стронцію та свинцю в ДВ приміщення 001/3. Форми знаходження радіонуклідів і стабільних елементів визначали одночасно з одних і тих наважок ДВ приміщення 001/3. Більше 80 % стабільного стронцію знаходиться у вигляді карбонатних сполук, розчинних у 1 моль/л NH₄Ac з рН 4,8. Частка мобільних форм ⁹⁰Sr менша, ніж стабільного стронцію. Можливо, це пов'язано з тим, що ⁹⁰Sr входить до складу важкорозчинних «гарячих» частинок, присутніх у ДВ. Близько 60 % заліза знаходиться у вигляді кислоторозчинних

форм, що підтверджує припущення про те, що гідроксиди урану, плутонію та америцію осаджуються разом з гідроксидами заліза та інших важких металів. Розподіл цинку та свинцю за фракціями вилуговуючих розчинів приблизно однаковий. Цинк і свинець присутні в усіх фракціях у межах 10 - 25 %. Найбільша кількість обмінних форм (28 %) характерна для міді. З урахуванням похибки вимірювань результати двох незалежних методів визначення вмісту урану у вилуговуючих розчинах (α-спектрометричні вимірювання активності ізоотопів урану після радіохімічного виділення та рентгенофлуоресцентний

метод визначення урану) показали добрий збіг результатів визначення форм знаходження урану в ДВ приміщення 001/3 об'єкта «Укриття».

4. Висновки

Питома активність радіонуклідів у ДВ приміщення 001/3 об'єкта «Укриття» становить: $^{90}\text{Sr} - (6,72 \pm 0,81) \cdot 10^8$; $^{137}\text{Cs} - (8,57 \pm 0,52) \cdot 10^8$; $^{154}\text{Eu} - (9,32 \pm 1,94) \cdot 10^5$; $^{238}\text{Pu} (3,73 \pm 1,22) \cdot 10^5$; $^{239+240}\text{Pu} - (8,22 \pm 2,44) \cdot 10^5$; $^{241}\text{Am} - (6,63 \pm 1,34) \cdot 10^6$; $^{244}\text{Cm} - (2,28 \pm 0,52) \cdot 10^5$ Бк/кг.

Відношення активностей $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$, $^{90}\text{Sr}/^{239+240}\text{Pu}$, $^{244}\text{Cm}/^{239+240}\text{Pu}$ і $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ у ДВ приміщення 001/3 значно відрізняються від аналогічних відношень у РЗВ і ЛПВМ об'єкта «Укриття».

Радіонукліди ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{154}Eu , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am , ^{244}Cm у ДВ знаходяться в різних фізико-хімічних формах, що визначають їхню різну потенціальну мобільність.

Частка обмінних форм ^{137}Cs 50 - 58 %, що свідчить про значні міграційні здатності ^{137}Cs у ДВ приміщення 001/3 об'єкта «Укриття».

Основна кількість ^{90}Sr , до 60 %, знаходиться у вигляді карбонатних сполук SrCO_3 , які осаджуються разом з важкорозчинними солями макро-

компонентів CaCO_3 і MgCO_3 .

Плутоній у ДВ знаходиться в основному (більше 65 %) у вигляді кислоторозчинних сполук, які утворюються при коагуляції гідроксидів заліза та інших важких металів. Сумарна частка водорозчинних та обмінних форм плутонію не перебільшує 2 %.

Америцій гідролізується меншою мірою, ніж плутоній, і 45 - 53 % ^{241}Am переходить у розчинний стан вже при рН 4,8.

Уран у ДВ об'єкта «Укриття» знаходиться у вигляді різних форм. Кількість водорозчинних, обмінних і кислоторозчинних становить 1,5, 10 і 65 % відповідно. Це свідчить про низьку ступінь іммобілізації урану в ДВ.

Основний механізм утворення ДВ у приміщенні 001/3 після встановлення арки НБК у проектне положення – це утворення важкорозчинних сполук радіонуклідів та їхнє осадження. На даний час надходження води в приміщення 001/3 практично зупинилося, тому значного збільшення об'ємів ДВ не відбудеться. У подальшому в разі випаровування води буде зростати питома активність радіонуклідів і концентрація макрокомпонентів, унаслідок чого можливе збільшення кількості ДВ у приміщенні 001/3.

СПИСОК ВИКОРИСТАНОЇ ЛІТЕРАТУРИ

1. А.А. Корнеев и др. Жидкие радиоактивные отходы внутри объекта «Укрытие». *Радиохимия* 44(6) (2002) 545.
2. А.П. Криницын, О.Л. Стрихарь, В.Н. Щербин. Проблема обращения с жидкими радиоактивными отходами объекта «Укрытие». *Радиохимия* 45(5) (2003) 461.
3. А.А. Одинцов и др. Трансурановые элементы в жидких радиоактивных отходах объекта «Укрытие». *Радиохимия* 51(4) (2009) 337.
4. А.А. Боровой. Ядерная безопасность скоплений воды в объекте «Укрытие». *Атомная энергия* 107(2) (2009) 91.
5. А.А. Одинцов, В.Е. Хан, Б.И. Огородников. Контроль факторов радиационной опасности помещения 001/3 объекта «Укрытие». *Проблеми безпеки атомних електростанцій і Чорнобиля* 15 (2011) 96.
6. А.А. Одинцов и др. Многолетний мониторинг неорганизованных скоплений жидких радиоактивных отходов объекта «Укрытие». *Проблеми безпеки атомних електростанцій і Чорнобиля* 27 (2016) 43.
7. Л.И. Руденко, В.Я. Скляр, В.Е. Хан. Очистка жидких радиоактивных отходов из объекта «Укрытие» от трансурановых элементов, Sr и γ -излучателей. *Радиохимия* 46(2) (2004) 184.
8. Л.И. Руденко и др. Механизм очистки жидких радиоактивных отходов от трансурановых элементов и урана методом комплексообразования и ультрафильтрации. *Доп. НАН України* 11 (2009) 145.
9. А.А. Одинцов, В.Е. Хан. Радиоактивно загрязненная вода в объекте «Укрытие» после установки «Арки» НБК в проектное положение. *Проблеми безпеки атомних електростанцій і Чорнобиля* 30 (2018) 67.
10. Ф.И. Павлоцкая. *Миграция радиоактивных продуктов глобальных выпадений в почвах* (Москва: Атомиздат, 1974) 216 с.
11. A. Tessier, P.G.C. Campbell, M. Bisson. Sequential extraction procedure for the speciation of particulate trace metals. *Anal. Chem.* 51(7) (1979) 844.
12. О.О. Odintsov, A.D. Sazhenyuk, V.A. Satsyuk. Association of ^{90}Sr , ^{137}Cs , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am , and ^{244}Cm with Soil Adsorbing Complex in Soil Typical of the Vicinity of the Chernobyl NPP. *Radiochemistry* 46(1) (2004) 95.
13. 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.
14. А.А. Одинцов, Э.М. Пазухин, В.Е. Хан. Методика одновременного определения содержания урана и трансурановых элементов в грунтовой воде и жидких радиоактивных отходах объекта «Укрытие». *Радиохимия* 47(5) (2005) 467.
15. А.А. Боровой и др. Определение ядерно-физических характеристик топлива 4-го энергоблока ЧАЭС. Отчет ИБРАЭ РАН, Инв. № 52/11-20 (Москва, 1991).
16. В.А. Рабинович, З.Я. Хавин. Краткий химический справочник (Ленинград: Химия, 1978) 392 с.
17. А.Н. Несмеянов. *Радиохимия* (Москва: Химия, 1978) 560 с.

SPECIATION OF URANIUM AND RADIONUCLIDES IN THE BOTTOM SEDIMENTS OF PREMISES 001/3 OF THE "SHELTER" OBJECT

The results of experimental determination of the forms of uranium and radionuclides ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{154}Eu , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am , and ^{244}Cm in the bottom sediments of the premises 001/3 of the "Shelter" object are presented. By the sequential extraction procedure, the following amounts are determined: water-soluble, exchange, carbonate, and acid-soluble forms of uranium, fission products (^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{154}Eu), and transuranium elements (^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am , ^{244}Cm) in the bottom sediments in the premises 001/3 on a mark of -2.60 m of auxiliary systems of the reactor compartment of the "Shelter" object. The concentration of uranium in the bottom sediments of room 001/3 is equal 3.1 ± 0.5 g/kg. The specific activity of ^{90}Sr and ^{137}Cs in the bottom sediments is within the range of $6 \cdot 10^8 - 1 \cdot 10^9$ Bq/kg, and $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{241}Am within the range of $6 \cdot 10^5 - 8 \cdot 10^6$ Bq/kg. Radionuclides ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{154}Eu , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am , and ^{244}Cm in the bottom sediments are in different chemical forms that will define their different potential mobility. Uranium and ^{137}Cs in the bottom sediments of premises 001/3 mainly are in exchange forms. The amount of water-soluble forms of uranium and cesium is 1.5 - 3 %. The basic amount of ^{90}Sr , more than 60 % is carbonate soluble in a weak acid at pH 4.8. More than 65 % of ^{238}Pu and $^{239+240}\text{Pu}$ in the bottom sediments are in acid-soluble forms. The mobility of ^{154}Eu , ^{241}Am , and ^{244}Cm in the bottom sediments is much higher than that of plutonium; at pH 4.8 more than 40 % of ^{241}Am goes to a soluble state. The ratio between the activities of $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$, $^{90}\text{Sr}/^{239+240}\text{Pu}$, $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$, and $^{244}\text{Cm}/^{239+240}\text{Pu}$ in the bottom sediments considerably differ from the analogical relations of radionuclides in a fuel containing materials of the "Shelter" object.

Keywords: uranium, ^{137}Cs , ^{90}Sr , plutonium, americium, sequential extraction, speciation of radionuclides, bottom sediments, "Shelter" object.

REFERENCES

1. A.A. Korneev et al. Liquid radioactive waste inside the "Shelter" object. *Radiokhimiya* 44(6) (2002) 545. (Rus)
2. A.P. Krinitsyn, O.L. Strikhar, V.N. Shcherbin. The problem of handling liquid radioactive waste from the "Shelter" object. *Radiokhimiya* 45(5) (2003) 461. (Rus)
3. A.A. Odintsov et al. Transuranium elements in liquid radioactive waste from the "Shelter" object. *Radiokhimiya* 51(4) (2009) 337. (Rus)
4. A.A. Borovoy. Nuclear safety of water accumulations in the "Shelter" object. *Atomnaya Energiya* 107(2) (2009) 91. (Rus)
5. O.O. Odintsov, V.E. Khan, B.I. Ogorodnikov. Control of factors of radiation danger of apartment 001/3 object "Ukrytya". *Problemy Bezpeky Atomnyh Elektrostantsiy i Chornobylya (Problems of Nuclear Power Plants and of Chornobyl)* 15 (2011) 96. (Rus)
6. O.O. Odintsov et al. Long-term monitoring of the unorganized accumulations liquid radioactive wastes of object "Ukrytya". *Problemy Bezpeky Atomnyh Elektrostantsiy i Chornobylya (Problems of Nuclear Power Plants and of Chornobyl)* 27 (2016) 43. (Rus)
7. L.I. Rudenko, V.Ya. Sklyar, V.E. Khan. Purification of liquid radioactive waste from the "Shelter" object from transuranium elements, Sr and γ -emitters. *Radiokhimiya* 46(2) (2004) 184. (Rus)
8. L.I. Rudenko et al. The mechanism of purification of liquid radioactive waste from transuranium elements and uranium by complex formation and ultrafiltration. *Dopovidi NAN Ukrainy* 11 (2009) 145. (Rus)
9. O.O. Odintsov, V.E. Khan. Radioactive water in object "Ukrytya" after pulling down of "Arch" of NEV safe confinement in project statute. *Problemy Bezpeky Atomnyh Elektrostantsiy i Chornobylya (Problems of Nuclear Power Plants and of Chornobyl)* 30 (2018) 67. (Rus)
10. F.I. Pavlotskaya. *Migration of Radioactive Products of Global Fallout in Soils* (Moskva: Atomizdat, 1974) 216 p. (Rus)
11. A. Tessier, P.G.C. Campbell, M. Bisson. Sequential extraction procedure for the speciation of particulate trace metals. *Anal. Chem.* 51(7) (1979) 844.
12. O.O. Odintsov, A.D. Sazhenyuk, V.A. Satsyuk. Association of ^{90}Sr , ^{137}Cs , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am , and ^{244}Cm with Soil Adsorbing Complex in Soil Typical of the Vicinity of the Chernobyl NPP. *Radiochemistry* 46(1) (2004) 95.
13. V.P. Protsak, O.O. Odintsov. Estimation of the forms of Chernobyl radionuclides in the bottom sediments of the Chernobyl cooling reservoir. *Yaderna Fizyka ta Energetyka (Nucl. Phys. At. Energy)* 15(3) (2014) 259. (Ukr)
14. A.A. Odintsov, E.M. Pazukhin, V.E. Khan. Method for simultaneous determination of the content of uranium and transuranium elements in groundwater and liquid radioactive waste of the "Shelter" object. *Radiokhimiya* 47(5) (2005) 467. (Rus)
15. A.A. Borovoy et al. Determination of the nuclear-physical characteristics of the fuel of the 4th power unit of the Chernobyl Nuclear Power Plant. Report of the Nuclear Safety Institute of the Russian Academy of Sciences, Inv. No. 52/11-20 (Moskva, 1991). (Rus)
16. V.A. Rabinovich, Z.Ya. Khavin. *Brief Chemical Guide* (Leningrad: Khimiya, 1978) 392 p. (Rus)
17. A.N. Nesmeyanov. *Radiochemistry* (Moskva: Khimiya, 1978) 560 p. (Rus)

Надійшла/Received 20.05.2021