

ОЦЕНКА ЕСТЕСТВЕННЫХ БАРЬЕРОВ БЕЗОПАСНОСТИ ПРИ КОНСЕРВАЦИИ ХРАНИЛИЩ НИЗКОУРОВНЕВЫХ РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ

А.Е. Богуславский¹, О.Л. Гаськова^{1,2}, А.И. Сурнин³, С.Ю. Носов⁴

1 – Институт геологии и минералогии им. В.С. Соболева СО РАН, 630090, Новосибирск, пр-т. Коптюга, 3, Россия;

2 – Новосибирский государственный университет, 630090, Новосибирск, ул. Пирогова, д. 2, Россия

3 – Сибирский научно-исследовательский институт геологии, геофизики и минерального сырья, 630091, Новосибирск, пр-т Красный, 67, Россия

4 – Новосибирский филиал государственного специализированного проектного института "ВНИПИЭТ", 630075, г. Новосибирск, ул. Богдана Хмельницкого, д. 2 Россия,

В работе рассмотрены геохимические аспекты системы хранения НРАО одного из предприятий топливно-ядерного цикла. Построена модель взаимодействия грунтовых вод с РАО. Выделены и рассмотрены геохимические барьеры, препятствующие распространению урана за пределы хранилища. Проведено экспериментальное и термодинамическое моделирование процессов осаждения урана. Обосновывается необходимость проведения при консервации шламохранилища дополнительных мероприятий по гидроизоляции сооружений.

консервация РАО, моделирование миграции урана, формы нахождения радионуклидов, геохимические барьеры, вторичные геохимические аномалии

ASSESSMENT OF NATURAL SAFETY BARRIERS AT PRESERVATION OF LOW-LEVEL RADIOACTIVE WASTE STORAGE

A.E. Boguslavskiy, O.L. Gaskova, A.I. Surnin, S.Yu. Nosov

In this paper geochemical aspects of low-level storages system are considered. The model of interaction of ground waters with low-level radioactive waste is constructed. The geochemical barriers interfering distribution of uranium out of storage borders are separated and considered. Experimental and thermodynamic modeling of uranium sedimentation processes is carried out. The need of additional actions for waterproof constructions at these storage preservation is explained.

radioactive waste preservation, modeling of uranium migration, forms of radionuclide presence, geochemical barriers, secondary geochemical anomalies

Современная концепция обращения с низкоуровневыми радиоактивными отходами (НРАО) заключается в создании мультибарьерной системы, препятствующей распространению радионуклидов за пределы хранилищ. В качестве барьеров безопасности могут выступать как природные, так и техногенные структуры, которые либо благодаря низким коэффициентам фильтрации, либо повышенным сорбционным характеристикам задерживают загрязняющие вещества. При консервации хранилищ, которые проектировались десятки лет назад, особое значение имеет надежность природных барьеров, так как создание дополнительных барьеров зачастую связано с перемещением РАО, что в ряде случаев весьма нежелательно. Для определения надежности и достаточности существующих барьеров

безопасности необходимо построение модели миграции ведущих загрязнителей на основе геологических, гидрогеологических и геохимических особенностей участка.

Хвостовое хозяйство ОАО «НЗХК» расположено в нескольких километрах от городской черты Новосибирска. Оно состоит из двух последовательно размещенных шламоотстойников, первый из которых выведен из эксплуатации, осушен и рекультивирован, а второй только готовится к выводу из эксплуатации. При сооружении шламохранилищ было принято решение о размещении их в тальвеге заболоченного лога, который является южным ответвлением Пашенского лога. Согласно проекту лог перегораживался дамбой из местных грунтов и отходов производства, в создаваемую чашу по трубам проводился сброс пульпы. При строительстве шламоотстойников, специальные мероприятия по усилению гидроизоляции днища и бортов оврага не проводились. Жидкая фаза через днище и борта секции, а также через дамбу фильтровалась, а твердая фаза осаждалась и накапливалась в отстойнике.

Определение элементного состава твердых проб проводилось методом РФА-СИ на станции элементного анализа ВЭПП-3 ИЯФ СО РАН. Формы содержания урана определялись с помощью электронного сканирующего микроскоп Tescan MIRA 3 LMU. Минеральный состав образцов определялся методом рентгеновской порошковой дифрактометрии на дифрактометре ДРОН-3 (излучение $\text{CuK}\alpha$). Анализ элементного состава жидких проб осуществлялся в аналитическом центре ИГМ СО РАН методами масс-спектрометрии с индуктивно-связанной плазмой (ICP MS) высокого разрешения на приборе фирмы FINNIGAN MAT (Germany). Концентрации анионов определялись титриметрическим, турбидиметрическим, потенциометрическим методами. Формы нахождения урана определялись методом ступенчатого выщелачивания по модернизированной методике Tessier [1].

Термодинамические расчеты в гетерофазной 27-компонентной системе $\text{H-O-C-Cl-N-S-Al-Si-Na-Ca-Mg-Mn-Fe-U-Pu-Am-Ru-Cs-Co-Ni-Mo-Zr-Cu-Zn-Cd-Ba-Sr}$ проводились при 25 и 5°C и общем давлении 1 атм. по алгоритму GIBBS с использованием встроенного банка термодинамической информации UNITHERM пакета программ HCh.

Верхняя часть геологического разреза на изученном участке представлена покровными среднечетвертичными образованиями краснодубровской свиты. Эти отложения сплошным чехлом покрывают территорию правобережья Оби. Непосредственно на участке в основании свиты выделяется пачка суглинков, мощностью 3–9 м. Их особенностью является очень слабая водопроницаемость ($K_{\phi} = < 0,001$ м/сут). Они являются основным водоупором для грунтовых вод в районе хвостохранилища. Выше залегает пачка, представленная переслаиванием суглинка с супесями и мелкозернистыми песками. Мощность пачки выдержана и составляет около 4 м. Она характеризуется повышенной водопроницаемостью ($K_{\phi} = 0,1 \div 0,3$ м/сут., участками до 1,5 м/сут). Супеси и пески этой пачки являются наиболее водопроницаемыми грунтами в районе хвостохранилища и именно к ним приурочен основной поток грунтовых вод. Верхняя пачка отложений краснодубровской свиты представлена лессовидными желтовато-бурыми суглинками. Их мощность составляет 8–15 м

и достигает максимальных значений на водораздельных участках, примыкающих к хвостохранилищу с запада и юго-запада. Голоценовые отложения представлены жёлто-бурыми суглинками. Эти отложения непрерывно выстилают всю рельефную поверхность, их мощность составляет от 1 до 10 м (максимум приходится на пониженные формы рельефа). Эти отложения на водораздельных участках имеют преимущественно эоловый генезис [2]. На бортах и тальвегах ложбин кроме эоловых могли принимать участие и флювиальные процессы. Современная овражно-балочная сеть сформировалась более 10000 лет назад, она врезана в четвертичные отложения краснодубровской свиты. Голоценовые суглинки, напротив сформированы в согласии с современным рельефом, они плащом переменной мощности перекрывают поверхность. На описываемом участке только эти отложения перекрывают по бортам долины водоносный горизонт, ограничивая его разгрузку в Пашенский лог.

До момента создания хвостохранилища Пашенский лог представлял собой глубокий задернованный овраг с сезонным водотоком. После создания технического пруда в правом (южном) ответвлении Пашенского лога, его тальвег интенсивно заболачивается на всем протяжении до Качимовского пруда. Это связано с усилением в указанном интервале застоя влаги в виду недостаточной проточности заполняющих ложе голоценовых рыхлых и современных торфянистых отложений. В основании лога под телом РАО бурением вскрыты торфяные отложения, их мощность в тальвеге около одного метра.

В результате изучения геологического строения и гидродинамического режима участка была построена модель взаимодействия грунтовых вод с РАО, состоящая из следующих звеньев: поступление грунтовых вод в хранилище → взаимодействие грунтовых вод с РАО → взаимодействие загрязненных вод с торфами → взаимодействие загрязненных вод с суглинками элювиального чехла → доочистка вод в проницаемом слое песков и супесей. Нахождение шламоотстойника в тальвеге лога приводит к подтоплению хранилища грунтовыми водами. По расчетам даже при гидроизоляции хранилища сверху и полном отводе метеорных осадков с поверхности из первого от поверхности водоносного горизонта в отстойник будет поступать в среднем $\sim 40000 \text{ м}^3$ грунтовых вод год. Поступающие природные воды гидрокарбонатные кальциевые, природная минерализация 0,3–0,5 мг/л (в зависимости от сезона и обводненности года), природное содержание урана 0,4–0,6 мкг/л. Отходы в шламоотстойнике имеют сложный минеральный и фазовый состав и при контакте с грунтовыми водами будут активно взаимодействовать. В разных типах отходов от 15 до 26 % процентов урана находится в подвижных формах. Концентрация урана в грунтах после взаимодействия в начальный период может достигать 1–2,3 мг/л [1]. Кроме урана, после взаимодействия со шламами воды содержат высокие концентрации сульфат-иона до 2,5 г/л и кальция до 0,97 г/л.

Наличие слоя торфа в основании залежи имеет положительное значение, так как он принимает на себя и задерживает уран. Максимальная концентрация урана в сухом веществе торфа может достигать до 0,046 %. Однако не весь уран, содержащийся в торфе, надежно осажден. Как показали эксперименты по ступенчатому выщелачиванию, только 63,4 %

осаждающегося на торфе урана переходит в трудно растворимые формы. Остальная часть находится в водорастворимой и обменных формах и способна десорбироваться грунтовыми водами (таб. 1). Поскольку шламоотстойник эксплуатируется с 1964 г., ёмкость данного барьера исчерпана и в настоящее время он практически не влияет на вынос урана.

Таблица 1. Распределение форм урана в основных типах грунтов (в процентах)

Форма	Грунт			
	Песок	Суглинок	Торф	Глина
Водорастворимая	2,9	1,3	35,7	19,1
Обменная	20,3	21,7	0,9	21,3
Карбонаты	53,1	58,6	42,4	40,2
Гидрооксиды	1,7	1,6	2,3	1,1
Органическая	11,8	8,4	16,9	6,5
Нерастворимая	10,3	8,3	1,9	11,9

Более важное значение для предотвращения распространения урана имеет покровный слой суглинков. В их минеральном составе преобладают кварц, полевые шпаты. В тонкодисперсной фракции присутствуют также слюда, хлорит, кальцит, небольшое количество смешанно-слоистого смектита–иллита. По данным эксперимента, в интервале концентраций растворов 1–2 мг/л они могут насыщаться ураном до концентрации 0,01–0,02 % (таб. 2). Эти концентрации близки к определенным в подстилающих суглинках, которые насыщались ураном в естественных условиях (до 160 г/т). Как показали эксперименты по десорбции урана, 77 % связывается в труднорастворимые формы и выводится из миграции (таб. 1). Техногенные воды при прохождении через слой этих суглинков очищаются от катионного груза и попадают в водоносный горизонт с существенно меньшим содержанием урана. Свидетельством того, что снижение концентрации урана вызвано не разбавлением грунтовыми водами, а очисткой, является отношение концентрации урана к концентрации сульфат- и нитрат-иона во второй секции и после фильтрации через суглинистый горизонт. Если концентрации сульфат- и нитрат-ионов практически не изменяются, то содержание уранил-иона снижается на порядки. Однако появление урана за пределами суглинистого барьера свидетельствует о том, что его ёмкость близка к пределу. Доочистка вод будет проходить и при движении вод по проницаемым породам водоносного горизонта. Сорбционные характеристики песков и опесчаненных суглинков существенно уступают исходным суглинкам, однако, учитывая протяженность песчаного горизонта, они играют немаловажную роль в общей очистке. Из поглощенного песками урана большая часть переходит в устойчивые формы (таб. 1). В настоящий момент в обводненных песчаных грунтах на границе второй секции отмечается концентрация урана 3 г/т, что в 1,5–2 раза выше фоновых значений. Сульфат- и нитрат-ионы в реакции с вмещающими грунтами практически не вступают и их концентрация постепенно снижается до фоновой вследствие разбавления чистыми грунтовыми водами.

Таблица 2. Результаты экспериментов по сорбции уранил-иона (навеска сорбента 1 грамм, раствора 50 мл)

$U_{исх}, \text{мг/л}$	Концентрация в грунте после сорбции, г/т		Процент осаждения урана на грунте	
	Суглинок	Песок и опесчаненные суглинки	Суглинок	Песок и опесчаненные суглинки
10	1469	164–311	74,9	8,4–15,5
1	142	22–23	74,7	11,9–12,3
0.1	18,8	5,5–7,9	98,9	28,3–51,9
0.01	2,1	0,46–0,80	95,5	48,1–81,9
0.001	0,15	0,05–0,06	87,2	67,6–84

Результаты модельных расчетов свидетельствуют о том, что при концентрации растворов выше 0,5 мг/л при достижении термодинамического равновесия главенствующую роль в очистке будет играть осаждение твердой фазы – $\text{CaUO}_4(\text{тв})$. Это подтверждается расчетом устойчивости $\text{CaUO}_4(\text{тв})$ в системе шламохранилищ. Однако равновесие « $\text{CaUO}_4 \Leftrightarrow$ раствор» подвижное и возрастание pH приводит к переходу урана в карбонатный раствор. Расчет распределения урана по формам при взаимодействии раствора (pH 8,1; C_U 2,3 мг/л – первые порции раствора при взаимодействии грунтовых вод с хвостами гидратных кеков) с вмещающими породами района показывает: 86 % урана будет осаждаться в виде фазы CaUO_4 ; 11,3 % сорбируется в виде поверхностного комплекса $> \text{SOUO}_2\text{OH}$; 2,7 % – доля урана оставшегося в растворе после осаждения и сорбции в виде комплекса $\text{Ca}_2\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3^0$, остаточная концентрация урана в растворе составит 0,06 мг/л.

Одновременно с выпадением твердой фазы развивается комплекс сорбционных процессов. В модельных расчетах доля урана осаждаемого в результате воздействий процессов сорбции урана на суглинках и песках составляет 11,3 и 2 %. Конечные остаточные концентрации урана в растворе 0,063 мг/л в обоих случаях. Процесс сорбции зависит от исходных концентраций микрокомпонента в растворе (таб. 2) и отношения вода/порода. Дополнительные расчеты показали, что в начальный момент, когда сорбционная ёмкость только начинает заполняться происходит практически полное осаждение урана. Но далее, по мере увеличения количества дренирующего раствора и заполнения сорбционной емкости вмещающих пород, интенсивность сорбции снижается, концентрации урана в водах постепенно выходят на исходный уровень.

ВЫВОДЫ

В сложившихся геолого-гидрогеологических условиях, без проведения дополнительных мероприятий по гидроизоляции сооружений, перекрытие шламов сверху для отвода метеорных вод не достаточно для выведения техногенной залежи из зоны активного водообмена. Поступающие в залежь по первому водоносному горизонту грунтовые воды будут приводить к миграции урана. Интенсивность выноса урана будет контролироваться количеством воды взаимодействующей с РАО. Учитывая резерв подвижного урана, продолжительность выноса при существующих скоростях миграции

исчисляется тысячами лет. Система геохимических барьеров до настоящего момента успешно справляется с распространением загрязнения в грунтовые воды, однако экстраполируя полученные результаты на продолжительный период времени ($n \cdot 100 - n \cdot 1000$) неизбежно наступление насыщения ёмкости барьеров, после которого скорость распространения урана возрастет на порядки. При этом возникает вероятность загрязнения поверхностных вод. Поэтому в сложившихся условиях единственной альтернативой удаления РАО из отстойника, является отвод грунтовых вод. Наиболее эффективный путь для этого организация барража в виде шпунтовой завесы вокруг шламоотстойников, который будет перекрывать поступление в хранилище грунтовых вод.

Исследования поддержаны грантом РФФИ № 13-05-00032.

ЛИТЕРАТУРА

1. Богуславский А.Е. Определение состава низкоуровневых отходов предприятий уранового производства // Радиоактивность и радиоактивные элементы в среде обитания человека: Материалы IV Международной конференции (Томск, 4-8 июня 2013 г.). Томск: Изд-во Томского политехнического университета, 2013. С. 103–106.
2. Волков И.А., Волкова В.С. Циклиты субаэральной толщи и континентальное плейстоценовое осадконакопление в Западной Сибири // Цикличность новейших субаэральных отложений. Новосибирск: Наука, 1987. С. 49–61.