

МИГРАЦИЯ РАДИОАКТИВНЫХ НУКЛИДОВ В РАЗЛИЧНЫХ ГИДРОГЕОЛОГИЧЕСКИХ УСЛОВИЯХ

А. С. Белицкий, Е. И. Орлова, Ю. А. Жаков,
Р. А. Чельшева, В. А. Смиренная, В. П. Круглов
Институт биофизики Министерства здравоохранения СССР
Москва, Союз Советских Социалистических Республик

Аннотация

The report presents various methods for storage of liquid wastes from atomic power stations. The conditions for underground transport of radioactive contamination as a result of unsealing of radioactive waste reservoirs have been considered. The assessment of radioactive wastes' movement in different hydrological conditions has been given.

Работа современных атомных электростанций неизбежно связана с возникновением радиоактивных отходов. Из них жидкие отходы потенциально наиболее опасны для загрязнения внешней среды, так как содержат основное количество долгоживущих изотопов и по своему физическому состоянию хорошо мигрируют в объектах внешней среды.

В интересах охраны природных ресурсов необходимо стремиться к полной локализации продуктов деления и наведенной активности в жидких отходах в пределах небольших участков на территориях АЭС или вблизи их, достаточно изолированных от мест проживания и активной деятельности людей, т. е. эти станции должны быть по отношению к объектам внешней среды практически "безотходными" предприятиями.

Указанный принцип может обеспечиваться выбором благоприятных природных и санитарных условий для создания могильников и хранилищ отходов, а также инженерными мероприятиями. Эти два фактора взаимосвязаны: чем хуже природные условия, тем сложнее и дороже осуществить инженерные мероприятия. Следует еще отметить, что по сравнению с инженерными мероприятиями природные условия, как правило, являются более устойчивыми во времени, поэтому при выборе мест захоронения радиоактивных отходов им следует отдавать предпочтение.

По действующим в СССР санитарным нормативам могильники и хранилища радиоактивных отходов должны быть связаны с площадками размещения атомных электростанций. Поэтому одним из критериев санитарно-радиационной оценки указанных площадок также должны являться элементы природных условий, которые ограничивают миграцию радиоактивных и химических загрязнений из могильников и хранилищ в объекты внешней среды.

Современные методы обработки жидких радиоактивных отходов на атомных электростанциях позволяют их сконцентрировать путем выпарки и ионного обмена в относительно небольших объемах.

Кубовые остатки и отработанные ионообменные смолы и шламы направляются в специальные бетонные емкости, облицованные нержавеющей сталью, иногда по типу "банка в банке". В СССР начато освоение отверждения жидких и полужидких среднеактивных отходов методом битумирования, но пока большая часть этих отходов хранится в указанных емкостях.

В тех случаях, когда позволяют гидрогеологические и санитарные условия, возможно непосредственное удаление жидких радиоактивных отходов в поглощающие горизонты горных пород, как это осуществляется уже в течение 6 лет на Ульяновской АЭС /1/. При захоронении жидких радиоактивных отходов в недра Земли не всегда требуется проводить концентрирование нетехнологических слабо- и среднеактивных стоков, а можно непосредственно удалять их в поглощающие горизонты.

Считают, что гидроизоляция железобетонных емкостей для кубовых остатков, отработанных смол и шламов не является гарантированной во времени. По условиям проектирования, строительства и эксплуатации этих емкостей надежность изоляции указанных отходов в них составляет 25-30 лет. Не исключается аварийное нарушение герметичности емкостей и в более ранние сроки.

При разгерметизации емкостей (могильников) жидких отходов степень опасности радиоактивного загрязнения объектов внешней среды определяется способностью радиоизотопов мигрировать в горных породах.

Миграция радиоизотопов в породах зависит в значительной степени от сорбционной способности пород и химического состояния изотопов фильтрующихся растворов. Сорбционная способность пород очень разнообразна и экспериментально определяется в каждом конкретном случае для образцов пород, отобранных в районе расположения могильников АЭС.

Форма нахождения радиоизотопов зависит в основном от химического состава инфильтрирующихся вод. При разгерметизации емкостей, как правило, расположенных выше уровня грунтовых вод, в почвы и подстилающие породы зоны аэрации будут поступать жидкие отходы, поэтому химическое состояние радиоизотопов в почвенных растворах будет определяться составом этих отходов.

Химический состав жидких отходов в емкостях был определен на примере отходов Нововоронежской АЭС с реакторами водо-водяного типа. Выполненные анализы показали, что жидкие отходы имеют сильно щелочную реакцию и высокую окисляемость (от 4 до 12 г O_2 /л). Сухой остаток отходов колеблется от 90 до 150 г/л. Их состав представлен в основном различными солями натрия, при этом количество боратов колеблется от 2 до 20 г/л, гидрокарбонатов - от 12 до 80 г/л, оксалатов - от 1,5 до 4 г/л, сульфатов - от 1 до 5 г/л, хлоридов - от 1 до 3 г/л. Кроме того, жидкие отходы содержат значительное количество моющих средств, а именно: ОП-7 - до 9 г/л и порошка "Новость" - до 7 г/л.

Радиоактивность жидких отходов почти во всех емкостях составляла $n \cdot 10^{-3}$ кюри/л и только в одной емкости была равна $4,7 \cdot 10^{-5}$ кюри/л. При этом радиоактивность жидкой части отходов была обусловлена в основном цезием-137. Кроме этого радиоизотопа, были обнаружены цезий-134, рутений-106, сурьма-125 и кобальт-60. Цезий-134, рутений-106 и сурьма-125 присутствовали, примерно, в 10 раз меньших количествах по сравнению с цезием-137, а кобальта-60 было в 100 раз меньше, чем цезия-137. Наиболее токсичный среди долгоживущих радиоизотопов стронций-90 не обнаружен в жидкой фазе отходов, что, вероятно, связано с его соосаждением с солями жесткости и практически полным переходом его в твердую фазу отходов.

Как показали исследования, проведенные с помощью ионного обмена и электрофореза, по своему химическому поведению в жидких отходах обнаруженные радиоизотопы резко отличаются друг от друга. Так, радиоизотопы цезия практически полностью находятся в катионной форме, рутений-106 и 50% кобальта-60 – анионной форме, и остаток кобальта-60, а также сурьма-125 присутствуют в виде нейтральных молекул. Следовательно, при загрязнении жидкими отходами почв и подстилающих пород радиоизотопы рутения, сурьмы и кобальта будут мигрировать со скоростью фильтрации растворов, и только радиоизотопы цезия будут поглощаться горными породами.

Миграция цезия будет определяться механизмами сорбции его породами. Цезий сорбируется частично ионообменно на поверхности глинистой и илстой фракций почв и пород и частично фиксируется глинистыми и слюдястыми минералами в межкристаллических пустотах /1, 2, 3, 4 и 5/. Миграция радиоизотопов цезия определяется соотношением между количествами его, сорбируемыми по этим двум типам поглощения. При фиксации значительных количеств цезия в межкристаллических пустотах он задерживается в основном слоями почвы или подстилающих пород, залегающими непосредственно под емкостями. При этом величина поглощения его зависит от количества в растворе тех катионов, которые также способны внедряться в межкристаллические пустоты глинистых и слюдястых минералов. По данным Ю. Л. Кокотова и др. /4/, эти катионы по их способности уменьшать величину сорбции цезия можно расположить в ряд:



Для расчета опасности загрязнения цезием пород и подземных вод необходимо было оценить роль каждого из механизмов сорбции. Проведение такой оценки в экспериментах по сорбции цезия породами из жидких отходов представляет большие трудности. Поэтому она была выполнена в эксперименте по десорбции цезия 0,1 н нейтральным раствором хлористого аммония из предварительно загрязненных образцов суглинков, обладающих различной катионообменной емкостью (от 12 до 43 мг-экв/г), имеющих большое количество слоистых материалов. На таких образцах должна преобладать сорбция путем фиксации цезия в межкристаллических пустотах.

Полученные данные показали, что величина десорбции фиксированного цезия примерно на два порядка ниже, чем для цезия, сорбированного ионообменно. Следовательно, фиксированный цезий будет в основном задерживаться поверхностными слоями почв и пород, а дальность распространения его будет определяться только тем количеством, которое сорбируется ионообменно. Кроме того, было обнаружено, что с течением времени десорбции фиксированный цезий постепенно переходит в ионообменный из-за нарушения кинетического равновесия.

При ионообменной сорбции миграция цезия определяется величиной катионообменной емкости пород, солевым составом и объемом жидких отходов, а также скоростью фильтрации через почву и подстилающие породы зоны аэрации. Как было показано выше, в жидких отходах, отобранных из емкостей на Нововоронежской АЭС, отсутствуют радиоизотопы стронция. Но, учитывая возможные изменения технологии очистки сточных вод и состава моющих средств, которые могут привести к появлению стронция в жидкой фазе, представляло интерес прогнозировать и его миграцию в горных породах.

Для расчета миграции радиоизотопов, поглощенных горными породами ионообменно, успешно применяются приближенные дифферен-

циальные уравнения ионообменной хроматографии /6/. Вследствие того, что радиоизотопы находятся в загрязненных поровых растворах в микроколичествах, то при постоянном химическом составе фильтрующихся жидких отходов поглощение изотопов происходит по линейной изотерме сорбции.

Применение одного из таких уравнений позволяет определить за время (t) расстояние ($x_{0,5}$), на которое распространится радиоизотоп с относительной концентрацией ($\varphi_{0,5}$), равной половине от его удельного содержания в исходных отходах.

$$x_{0,5} = \frac{hu}{1+h}t, \quad (1)$$

где t — продолжительность поступления жидких отходов в породы; u — действительная скорость фильтрации; h — распределительное отношение:

$$h = \frac{\chi p}{\delta K_p}, \quad (2)$$

где χ — плотность фильтрующейся через породы жидкости; δ — объемный вес породы; p — общая пористость породы; K_p — коэффициент распределения радиоизотопа между породой и жидкостью.

Коэффициент распределения обычно определяется в лабораторных экспериментах в статических или динамических условиях для образцов пород, отобранных в районе могильников.

Другое приближенное уравнение позволяет рассчитать за определенное время (t) расстояние x , на которое распространится радиоизотоп с любой заданной относительной концентрацией, меньшей, чем $\varphi_{0,5}$.

$$x = x_{0,5} + \frac{2wu}{1+h} \sqrt{\frac{ht}{\beta(1+h)}}, \quad (3)$$

где w — параметр, зависящий от заданной относительной концентрации радиоизотопа в фильтрующемся растворе. Приблизительно этот параметр может быть получен из уравнения $\Phi(w\sqrt{2}) \approx 1 - 2$ ($\Phi(w\sqrt{2})$ — интеграл вероятности); β — константа скорости сорбции. Величина β , имеющая размерность времени в степени минус единица t^{-1} , в условиях движения растворов в идеальных однородных сорбентах определяется скоростью сорбции. Но при движении загрязненных вод в породах, кроме времени, затрачиваемого на сорбцию, ею также учитываются и другие факторы, стремящиеся размазать фронт движения в воде сорбируемого катионита, а именно неоднородность водных, сорбционных свойств водоносных пород, неодинаковым обменом воды между породами, различной сорбционной способностью частиц, слагающих породы и т.д.

Приблизительно β может быть определена графически по кривым изменения концентрации радиоизотопа в воде или породе с расстоянием от места поступления жидких отходов. Такие кривые могут быть получены в лабораторных экспериментах, проводимых в динамических условиях с применением высоких разборных колонн (для песчаных пород) или специальных фильтрационных приборов, работающих под определенным давлением (для глинистых пород). На этих кривых устанавливаются ($x_{0,5}$) с относительной концентрацией изотопа ($\varphi_{0,5}$) и точка (x) с $\varphi < \varphi_{0,5}$. Затем определяется β по уравнению:

$$\beta = \frac{4w^2hu^2 t}{(1+h)(x - x_{0,5})^2} \quad (4)$$

Во все приведенные выше основные уравнения входит величина α , характеризующая действительную скорость движения подземных вод, определение которой в природных условиях представляет некоторые трудности. Поэтому в использованных уравнениях эта величина может быть заменена скоростью фильтрации или объемом фильтрующейся жидкости и активной пористостью пород района могильников.

С помощью приближенных уравнений и на основании коэффициентов распределения цезия и стронция, полученных в лабораторных экспериментах, проведенных с различными горными породами, были выполнены расчеты миграции этих радиоизотопов в различных геологических условиях зон аэрации. Коэффициент фильтрации, по которому может быть определена скорость фильтрации, и активная пористость исследуемых пород, определялись в полевых условиях.

Проведенные расчеты показали, что в однородных песчаных породах фронт движения радиоизотопов стронция и цезия определяется в большинстве случаев уравнением (1), т. е. участком с относительной концентрацией радиоизотопа в воде, равной половине от исходного удельного содержания его в жидких отходах.

Аналогичная зависимость распространения стронция и цезия была получена для зоны аэрации, сложенной преимущественно трещиноватыми базальтами, в толще которых залегали мощные слои крупно- и среднеобломочных вулканических пород с высокой фильтрационной способностью.

При миграции изотопов в глинистых породах наблюдается другая картина фронта их движения. Благодаря небольшой величине распределительного отношения и константы скорости сорбции изотопов стронция-90 и цезия-137 в глинистых породах, отмечается сильное размазывание фронта их распространения. Поэтому для расчета миграции этих радиоизотопов в зоне аэрации, сложенной суглинками и глинами, необходимо применять уравнение (3), так как расположение фронта с небольшой относительной концентрацией радиоизотопа будет далеко впереди от места нахождения исходной концентрации этих изотопов в жидких отходах.

Однако несмотря на значительную величину размазывания фронта движения радиоизотопа в глинистых породах, абсолютная глубина проникновения загрязнения в указанных породах на много меньше, чем в хорошо проницаемых песках и базальтах.

В районе с большим количеством атмосферных осадков возможна десорбция радиоизотопов с загрязненных пород, которая может приводить к проникновению их на большие глубины. Это явление может приводить к нежелательным санитарным последствиям, особенно на участках, сложенных с поверхности земли проницаемыми песчаными породами. При этом наибольшей подвижностью будет обладать стронций-90. В связи с этим был проведен полевой эксперимент по вымываемости стронция-90 из загрязненных песчаных пород зоны аэрации, мощность которых в исследуемом участке была равна 80 м. Наблюдение, проведенное в течение четырех лет, показало, что при количестве инфильтрующихся атмосферных осадков, равном в среднем 360 мм/год, первоначальный объем зоны, ограниченной удельной активностью песка $1 \cdot 10^{-9}$ кюри/кг, увеличился примерно в три раза.

Проведенные эксперименты и расчеты подтверждают целесообразность учета природных условий при выборе мест расположения могильников для хранения жидких радиоактивных отходов. Указанные могильники следует размещать выше уровня грунтовых вод, преимущественно в слабо проницаемых глинистых

породах. В аридных областях, где испарение значительно превышает количество атмосферных осадков, могильники следует располагать в участках, сложенных мощной зоной аэрации.

Отсутствие в районе расположения АЭС благоприятных гидрогеологических условий для хранения жидких радиоактивных отходов в емкостях требует осуществления дополнительных сложных инженерных устройств. На АЭС, построенных в таких районах, следует в первую очередь организовать отверждение этих отходов.

Непосредственное удаление жидких радиоактивных отходов в глубоко залегающие поглощающие горизонты возможно лишь при наличии пригодной для этого гидрогеологической структуры, что должно быть обосновано проведением широкого комплекса гидрогеологических, геохимических, санитарных и других исследований.

Литература

1. Юдин Ф. П., Пименов М. К., Назаров А. И. и др. Атомная энергия, 25, вып. 2, 1968.
2. Amphlett C. B. Ground Disposal of Radioactive Wastes. Atomic and Nuclear Energy, 9, 6, 1958.
3. Tamura T., Jacobs D. G. Health Physics, 2, 4, 1960.
4. Кокотов Ю. А., Попова Р. Ф. и др. Радиохимия, т. III, вып. 2, 1961.
5. Титлянова А. А. Почвоведение, № 3, 1962.
6. Белицкий А. С., Орлова Е. И. Охрана подземных вод от радиоактивных загрязнений. Изд-во "Медицина", М., 1968.