

УДК 502.52

ПРОВЕДЕНИЕ ПРОГНОЗНОЙ ОЦЕНКИ ЭКОЛОГИЧЕСКОЙ БЕЗОПАСНОСТИ СИСТЕМЫ ХРАНЕНИЯ ТВЕРДЫХ РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ

А.Е. Богуславский, О.Л. Гаськова

Институт геологии и минералогии СО РАН, Новосибирск, E-mail: boguslav@mail.ru, gaskova@igm.nsc.ru

В работе проведена оценка влияния на окружающую среду проектируемого хранилища твердых радиоактивных отходов. Из анализа химических свойств отходов, геологических и геохимических свойств участка, термодинамической оценки возможных форм миграции урана сделан вывод об отсутствии условий выноса урана за контуры залежи. Факторами, препятствующими распространению урана, являются перекрывающие сверху и снизу слои глин, отсутствие контакта с грунтовыми и атмосферными водами, наличие в отходах металлического железа и алюминия.

Ключевые слова: захоронение радиоактивных отходов, перенос урана, геохимические барьеры, прогноз миграции, термодинамическое моделирование, формы миграции элементов.

DOI: 10.24411/2410-1192-2019-15412

Дата поступления 31.08.2019

Захоронение радиоактивных отходов (РАО) является одной из основных проблем, тормозящих развитие ядерной энергетики. Период, на который необходимо изолировать отходы в зависимости от изотопного состава, измеряется в сотнях и тысячах лет. Очевидно, что возведение могильника, гарантированно сохраняющего свойства в течение тысяч лет, сталкивается с множеством сложностей научного, технологического, а также и экономического характера. Не простой задачей является даже формирования перечня параметров и сценариев, которые необходимо учитывать при проектировании, а какие можно оставить за границами рассмотрения. С одной стороны, подход, связанный с реализацией максимальной устойчивости и надежности возводимых хранилищ, кажется привлекательным, однако его осуществление вынуждает трату несоизмеримого количества ресурсов на предотвращение сценариев, реализация которых крайне маловероятна.

Многоуровневая перестраховка, когда дело доходит до проектирования и

строительства, на порядки увеличивает стоимость самых простых сооружений. И нужно отметить, что далеко не всегда это оправдано. Например, бетонный саркофаг выглядит прочным и надежным, однако бетон становится водонепроницаемым уже через десятки лет, а прочностные характеристики, по современным представлениям, сохраняются 200-300 лет.

При выборе подхода к проектированию отдельного объекта необходимо учитывать и изотопный состав РАО. В категорию радиоактивных отходов попадают совершенно различные вещества: от распространенных повсеместно урана и тория до продуктов ядерного синтеза (плутоний, америций и пр.). Их воздействие на человека даже в следовых количествах способно вызвать необратимые последствия. В данной работе показан пример проведения оценки экологической безопасности, выполненный для проектируемого хранилища твердых радиоактивных отходов (ТРАО) на одном из Сибирских предприятий топливно-ядерного цикла.

Основная масса твердых радиоактивных отходов, которые планируется размещать в пункте долговременного хранения, представляют водонерастворимые, трудновоспламеняемые или негорючие твердые осадки и изделия, состоящие преимущественно из металлического алюминия и железа. Также в составе присутствует остаточное количество урана, которое из них невозможно удалить без полного растворения. Изотопный состав радиоактивных загрязнений представлен изотопами урана: ^{238}U , ^{235}U , ^{234}U и дочерними продуктами их радиоактивного распада: ^{231}Th , ^{234}Th , $^{234\text{m}}\text{Pa}$. Химические формы нахождения изотопов урана: четырех- и шестивалентные окислы.

Учитывая внушительный объем, предполагается приповерхностное траншейное размещение отходов (ТРО). Для уменьшения риска проникновения к отходам воды и предотвращения попадания загрязненных растворов в грунтовые воды предусмотрено создание хемосорбционного экрана из местной глины толщиной 1,0 м по дну траншеи. Для отвода поверхностных вод заполненные траншеи перекрываются сверху полуметровым слоем местных суглинков, поверх него укладывается слой щебня разной крупности и плодородным слоем для посадки травянистой растительности.

Для исключения фильтрации поверхностных вод через отходы по завершению их загрузки выполняется гидроизоляция траншеи: заполненная отходами на две трети глубины траншея засыпается слоем глины (толщина до 1,5 м) и утрамбовывается, затем сверху укладывается дренажный слой из гравийно-песчаной смеси (толщина 0,2 м), далее идет защитный слой (толщина 0,5 м) из наброски (крупность – 70-100 мм), а затем слой грунта (толщина 0,2 м). Поверхность участка планируется с целью максимального отвода поверхностного стока за границы участка.

Для определения надежности такого подхода для данного типа отходов на конкретном участке проводилось изучение буферных характеристик вмещающих пород. Включающее в себя: изучение характеристик участка проектирование; определение условий выщелачивания урана из РАО; моделирование условий миграции и осаждения урана в проектируемом объекте.

Геологическая характеристика участка

Геологическое строение участка представлено чередованием субгоризонтальных русловых и пойменных отложений четвертичного возраста, которые подстилаются юрскими глинами камалинской свиты (рис. 1). Под почвенно-растительным слоем (мощность ~ 50 см) расположен суглинок малой степени водонасыщения: от полутвердого до тугопластичного, ожелезненный, карбонатизированный. Он прослеживается до глубины 4,0-8,0 м.

Мощность слоя изменяется от 3,1 до 7,8 м (ИГЭ-2). Под ним расположен суглинок средней степени водонасыщения мягкопластичный с линзами крупнозернистого песка, с примесью органического вещества. Кровля слоя вскрыта в интервале глубин 4,0-8,0 м, подошва – 12,7-14,5 м, мощность слоя составляет 6,3-10,0 м (ИГЭ-3). Ниже расположены пойменные отложения: песок крупнозернистый насыщенный водой, залегает под слоем суглинков, вскрыт до глубины 14,1-17,1 м (ИГЭ-4); галечниковый грунт с глинистым заполнителем, насыщенный водой, вскрыт скважиной № 2 в интервале глубин 17,5-21,5 м (ИГЭ-5); глина тугопластичная средней степени водонасыщения, вскрыта одной из скважин с глубины 21,5 м (ИГЭ-6).

Поскольку толща суглинков в верхней части разреза не является однородной и включает в себя маломощные прослои супесей и песков, то она не является надежным водупором, а представляет, скорее всего, слой с затрудненной фильтрацией. Этим объясняется

подъем уровня водоносного горизонта над подошвой слоя суглинков. Локально в нем распространена верховодка, которая пересекается отдельными скважинами. Гидродинамические слои верховодки и первого водоносного горизонта связаны между собой и обладают сходным химизмом. Водоупором первого (четвертичного) водоносного горизонта является горизонт серых глин камалинской свиты юрского возраста.

В минералогическом составе суглинков этой пачки преобладают смектит и иллит-смектит, массовая доля которых доходит до 70-80 %. Из примесей присутствуют кварц 5-10 %, плагиоклаз и кпш <5 %, несколько процентов слюды, хлорита, каолинита. При переходе от суглинков к супесям количество кварца и плагиоклаза постепенно увеличивается, в песчаных прослойках эти элементы выходят на первое место. Интервал зоны аэрации между дном проектируемого хранилища и поверхностью грунтовых вод на период изысканий составляет не менее 1,8 м.

Поскольку проницаемость вмещающих отложений выше нормативно установленной величины $1 \cdot 10^{-5}$ м/сут, то было принято решение в нижней части траншей создать дополнительный гидродинамический и геохимический барьер из местной глины Компановского месторождения. Минеральный состав образцов вмещающих грунтов и материала дополнительного барьера представлен в таблице 1. Как видно в образцах камалинской глины преобладает смектит и иллит-смектит, в Компановских глинах на первое место выходит каолинит.

Таким образом, хранилища будут представлять собой объекты, миграция из которых загрязняющих элементов в окружающую среду даже гипотетически возможна только с грунтовыми водами в растворенном виде. Изоляция, возведенная над ними сверху, полностью исключает появление других агентов миграции, например, поверхностный снос, эоловый перенос и т.д.

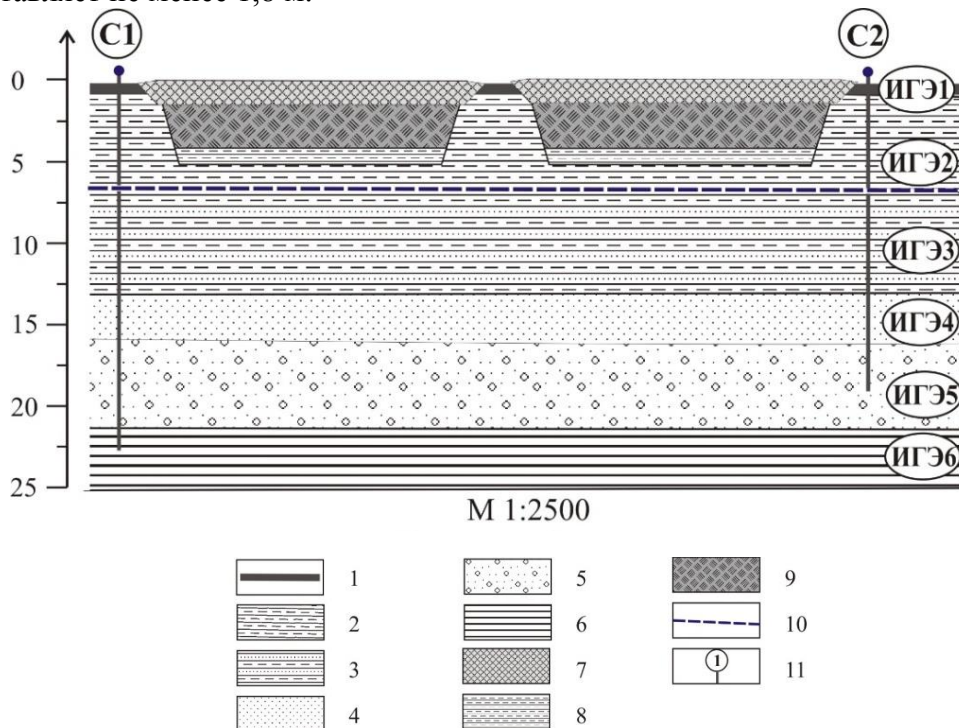


Рис 1. Схематический геологический разрез района размещения траншей ТРАО:
 1 – почвенно-растительный слой; 2 – суглинки; 3 – суглинки с прослойками песка; 4 – песок крупнозернистый, водонасыщенный; 5 – гравийно-галечниковый грунт с глинистым заполнителем;
 6 – глина тугопластичная; 7 – верхний гидроизолирующий экран; 8 – нижний противодиффузионный слой; 9 – ТРАО; 10 – водоносный горизонт; 11 – разведочные скважины (м-б 1:2500).

Результаты рентгенографического анализа проб образцов глин

Наименование	Минеральный состав
Камалинская глина	разупорядоченный смектит и иллит-смектит ~ 70-80 %, кварц ~ 5-10 %, плагиоклаз и кпш <5 %, несколько процентов слюды, хлорита, каолинита
Компановская каолиновая глина	основная каолинит низкой степени кристалличности ~ 80-90 %, присутствуют разупорядоченная слюда ~ 10%, несколько процентов кварца и следы цеолита
Компановская огнеупорная глина	каолинит ~ 40-50 %, смектит ~ 30-40 %, кварц ~ 5-10 %, несколько процентов слюды и следы магнетита

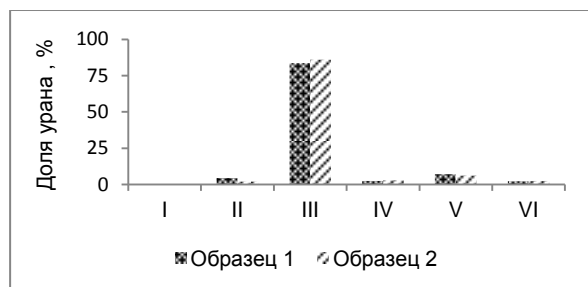


Рис 2. Распределение урана по фракциям в образцах шлама:

I – водорастворимая; II – обменная; III – карбонатная; IV – связанная с гидрооксидами железа и марганца; V – связанная с органикой; VI – силикатная.

Учитывая то, что сооружение находится выше уровня грунтовых вод, на днище траншей сформирован дополнительный барьер из метрового слоя компановских глин, а также перекрыты сверху от инфилирующих атмосферных осадков, то можно утверждать, что данные объекты полностью изолированы от окружающей среды

Определение условий выщелачивания урана

Для определения доли урана, которая потенциально способна перейти в раствор при контакте РАО с грунтовыми водами была использована методика ступенчатого выщелачивания. Для трансурановых элементов наиболее распространена схема, предложенная Клемтом [1], которая является видоизмененным вариантом схемы Тессье [2]. В этой схеме водорастворимую и обменную фракции можно отнести к легкоподвижным; карбонатная форма составляет ближайший резерв, вводимый в действие при изменении физико-

химических условий в почве [3]; фракции, связанные с оксидами и гидрооксидами железа и марганца, органикой и силикатами отнесены к устойчивым в условиях зоны гипергенеза.

Суть методики сводится к тому, что образец донного осадка последовательно выщелачивается реагентами при различной температуре и продолжительности выщелачивания, после каждой стадии жидкая фаза отделяется и в ней анализируется содержание урана. Обменная форма отделяется при реакции с 1 молярным раствором $\text{CH}_3\text{COONH}_4$ (рН=7; перемешивание в течение 24 часов); уран, связанный с карбонатами, выщелачивается при помощи смеси 1 молярных уксуснокислого аммония и азотной кислоты (1 М $\text{CH}_3\text{COONH}_4$ + 1 М HNO_3 , рН=5; перемешивание – 8-10 час.); уран, связанный с оксидами и гидроксидами железа и марганца отделяется смесью 0,2 М солянокислого гидроксиламина в 25 % уксусной кислоте ($\text{NH}_2\text{OH}\cdot\text{HCl}$ в CH_3COOH (25 %); перемешивание – 3 час.) и наконец, органика выжигается смесью перекиси водорода и азотной кислоты. H_2O_2 (35 %) + 1 М HNO_3 до 0,05моль/л; нагрев до 850°C , перемешивание – 3 час.).

Потенциально доступный резерв урана для выноса в приповерхностных условиях показывает сумма водорастворимой и обменной фракции. Это то содержание, которое может перейти в раствор при условии, что весь слой осадка будет в течение длительного времени непрерывно промываться большим объемом воды с небольшой концентрацией урана. Результаты показаны на рисунке 2. Как видно, основная доля урана >

80 % находится в карбонатной форме. Однако самый важный результат данного эксперимента состоит в том, что в обменной форме находится не более 4,4 % урана. Остальной уран даже в условиях контакта с грунтовыми водами не сможет перейти в раствор.

Изучение сорбционных параметров вмещающих грунтов

Для проведения динамических оценок миграции загрязнений исследовались процессы иммобилизации урана в подстилающих хранилище грунтах. Основными сорбционными барьерами в проектируемом хранилище будут глины Компановского месторождения, которые используются для формирования дополнительного барьера на дне траншей. Они выступают, с одной стороны, как противотриационный барьер с коэффициентом фильтрации $\sim 1 \times 10^{-5}$ м/сут, с другой стороны, как сорбционный, принимающий на себя растворенный уранил-ион. Второй барьер безопасности – это вмещающие четвертичные аллювиальные суглинки.

Для оценки способности природного материала отобранных образцов поглощать и удерживать уран из жидкой фазы проводилось определение его сорбционной емкости. Под сорбцией в данном случае понимается вся совокупность процессов, приводящих к осаждению урана: физическая и химическая сорбция, ионный обмен, осаждение твердых фаз и т.д. Сорбционная емкость в образцах компановских глин составила 110-120 г/т; вмещающих суглинков камалинской свиты – 94 г/т.

Кроме емкости насыщения, не менее важной характеристикой является надежность удержания элементов. Для оценки удерживающей характеристики грунтов проводились эксперименты по моделированию вымывания уранила из образцов растворами, аналогичными составу грунтовых вод района исследования и дистиллированными водами (аналоги дождевых и талых вод). Растворы, имитирующие природные воды: Na – 36,20 мг/л, Mg – 1,80, Ca – 40,40, Cl^- – 40, HCO_3^- – 300, SO_4^{2-} – 14 мг/л.

Кинетика данного процесса изучалась в течение 1 и 2 часов на магнитных мешалках с последующим отделением фаз, центрифугированием и анализом содержания урана в растворе. Продолжительность проведения выщелачивания на магнитных мешалках была установлена ранее экспериментально. Было показано, что скорость выщелачивания максимальна в течение первых 1,5-2 час. эксперимента, далее она резко снижается. Следует отметить, что в течение 60 минут не наблюдается значительного диспергирования частиц, и процесс выщелачивания аналогичен вымыванию в природных условиях. Далее усиливаются процессы диспергирования частиц за счет механических сил, при этом выщелачивание происходит интенсивнее за счет резкого увеличения поверхности контакта минеральной матрицы с раствором. После двух часов начинает развиваться обратный процесс: сорбция десорбированного урана из раствора вследствие изменения поверхностной энергии твердых частиц одновременно с продолжающейся десорбцией. Соотношение твердой и жидкой фаз составляло 1:50.

В экспериментах по выщелачиванию урана природными водами из насыщенных грунтов в течение двух часов наблюдаются более высокие концентрации урана в растворе (в среднем на порядок), т.к. при активном процессе перемешивания происходит диспергирование твердой фазы с увеличением поверхности контакта с раствором (табл. 2). Уран, находящийся в межзерновом, поровом пространстве, из объемного положения переходит в поверхностное и взаимодействует с молекулами воды.

Несмотря на некоторые отличия в характере взаимодействия природных и дождевых вод с матрицей, содержащей уран, в целом отмечается низкий уровень выщелачиваемости (до 0,06 %) – растворами, аналогами природных вод, что объясняется преобладающими ионообменными и хемосорбционными механизмами связывания и удержания урана.

Таблица 2

Содержание урана в растворах после двухчасового эксперимента по выщелачиванию образцов природными водами

Образец	Исходное содержание, г/т	Уран, мкг/л	Выход, %
C ₁	2,7	1,8	0,003
C ₂	3,4	3,0	0,004
C ₃	2,7	5,0	0,009
C ₄	2,2	2,9	0,007
C ₅	2,8	32	0,058
C ₆	3,6	28	0,039
C ₇	2,1	11	0,026
Фоновые суглинки	3,1	4,9	0,008

Физико-химическое моделирование поведения урана

Для моделирования потенциального выноса урана грунтовыми водами было проведено термодинамическое моделирование их взаимодействия с РАО и вмещающими породами. Для построения теоретической модели концептуальными являются следующие моменты, которые должны быть подтверждены с помощью термодинамических расчетов:

– поведение окисленной формы урана U(VI), поскольку восстановленная его форма U(IV) практически не вносит вклада в образование повышенных урановых концентраций в растворах на территориях складирования радиоактивных отходов; возможность восстановления U(VI) до U(IV);

– роль устойчивых карбонатных комплексов U(VI), поскольку воды района являются слабощелочными и именно в них могут накапливаться высокие содержания гидрокарбонат-ионов (известно, что присутствие во вмещающей породе Fe-содержащих минералов, таких как биотит, хлорит и магнетит, очень важно, поскольку они служат источником природного неорганического восстановителя, т.е. Fe(II), которое высвобождается при взаимодействии «вода-порода»; особым случаем техногенных процессов является взаимодействие

урансодержащих вод с металлическими РАО);

– возможность процессов сорбции урана (VI) на глинистых минералах, оксидах и карбонатах [4], поэтому необходимо определение минерального состава суглинков, что позволит оценить вклад процессов, протекающих на минеральных поверхностях, в сдерживании миграции урана в окружающую среду (вплоть до ее полного ограничения).

Согласно расчетам в фоновых грунтовых водах 88, при pH 7,3 относительно невысокие концентрации HCO_3^- (268 мг/л) и Ca (38,30 мг/л) подразумевают близкое равновесие с доломитом (из литра раствора выпадает 0,39 ммоль твердой фазы). Конечно, в природных условиях это может быть твердый раствор Ca-Mg карбоната со структурой кальцита, а не доломит. Уран в этих условиях находится в растворе в виде карбонатных комплексов U(VI), преимущественно $\text{Ca}_2\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3$ и $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_2^{-2}$. Высокая роль карбонатных и гидрокарбонатных комплексов урана объясняется устойчивостью этих комплексов.

Взаимодействие раствора с металлическими РАО, которые в модели приняты как Fe_(мет) и Al_(мет), рассчитывалось при минимальном их количестве, поскольку точные отношения «вода-порода» неизвестны. В присутствии 0,5 мг Fe на 1 л раствора, окислительно-восстановительный потенциал снижается до Eh = -0,209 вольт. При 0,5 мг Al на 1 л раствора, окислительно-восстановительный потенциал также снижается до Eh = -0,213 вольт. В твердой фазе вместе с доломитом появляются уранинит $\text{UO}_2(\text{тв.})$ и другие сульфиды. Если даже в силу динамических причин (образование пленки гидроксидов железа или алюминия, что еще более вероятно) реакция затормозится на данном этапе, то она все равно очень эффективно отразится на удержании урана в твердой фазе.

Даже в слабо восстановительных условиях при отрицательных Eh в равновесии с уранинитом находятся карбонатные комплексы шестивалентного урана, т.е. образование устойчивых комплексов типа $UO_2(CO_3)_2^{-2}$ смещает редокс-потенциал восстановления U(VI) до U(IV) в область более низких значений, что необходимо учитывать при создании геохимических барьеров в техногенных зонах. Снижение Eh до $-0,2$ вольт ведет к падению общих концентраций урана, а преобладающей формой нахождения его оказывается нейтральный гидроксокомплекс U(IV)- $U(OH)_4^0$.

Естественно, что по сравнению с алюминием (постоянновалентный элемент) более чувствительным к понижению Eh оказывается железо, которое меняет валентность и форму нахождения уже при Eh = $-0,2$ вольт, т.е. вместо гидроксокомплекса $Fe(OH)_3^0$ появляется аквагидратированный катион Fe^{+2} и гидрокарбонатный комплекс Fe(II). Обратим внимание, что при снижении Eh резко повышается содержание железа в растворе, а содержания алюминия остается постоянным. Еще раз подчеркнем, что железо оказывает ключевую роль на поведение урана в грунтовых водах. Закисная форма Fe(II) восстанавливает его до устойчивого в твердой фазе U(IV), а окисная форма Fe(III), выпадая в слабощелочных грунтовых водах в виде разнообразных оксидов и гидроксидов, интенсивно сорбирует U(VI).

Таким образом, модель демонстрирует резкое снижение концентраций урана в U-содержащих грунтовых водах при реакции с металлическими РАО, являющимися активным восстановителем U(VI) до U(IV). Если же наоборот, предположить, что формирование условий, при которых будет происходить процесс растворения U-содержащих Fe-конструкций с кислородными, углекислыми водами, то в зависимости от степени протекания реакции и соотношения $Fe_{(мет)}/O_{2(p-p)}$ в каждый момент времени уран будет сорбироваться образу-

ющимися гидроксидами железа и алюминия или восстанавливаться, в том и другом случае оставаясь на месте. Накапливающиеся дочерние элементы урановых рядов являются еще более слабыми мигрантами. Как показывают исследования, миграция для тория и радия на порядки отстает от миграции урана. В результате чего наблюдается повсеместное (для автономных ландшафтов) превышение концентраций урана, вычисленного по содержанию радия над истинным значением урана [5].

Дополнительно были рассмотрены ситуации критического или экстремного характера. В частности, рассчитано взаимодействие с грунтовыми водами, содержащими до 50 мкг/л урана (выше ПДК более чем в 5 раз). Оказалось, что ситуация не изменяется, в растворе остается столько же урана, только возрастает количество твердой фазы (уранинита). Иными словами, при попадании в грунтовые воды высоких концентраций растворенного урана, он будет тут же *in situ* оставаться в ближайшей зоне хранилища, обогащая вмещающие грунты на контакте.

Характеристика защитных функций конструктивных элементов

Проектируемые траншеи хранилища располагают комплексом защитных барьеров, препятствующих выходу загрязнителя за пределы сооружений, главными из которых будут являться верхний и нижний противодиффузионные барьеры, а также подстилающие аллювиальные четвертичные суглинки.

Нижний противодиффузионный экран из глины Компановского месторождения. Толщина экрана – 1,0 м, коэффициент фильтрации слоя Kf – менее 1×10^{-5} м/сут. Благодаря низкому коэффициенту фильтрации этот слой препятствует как подтоплению хранилища снизу, так и миграции метеорных вод в основании траншеи. Кроме того, он является хемосорбционным барьером.

Хемосорбционная способность глины по отношению к урану ~ 120 г/т породы.

Подстилающие аллювиальные четвертичные суглинки. Дополнительно усиливает нижний противofильтрационный и хемосорбирующий экран. Мощность слоя ~ 2-4 м до водоносного горизонта, в обводненных суглинках – 4-6 м. Коэффициент фильтрации – $K_f = 0,05$ м/сут. Препятствует миграции радионуклидов в водоносный горизонт. Хемосорбционная способность суглинков ~ 90 г/т породы.

Верхний гидроизолирующий экран из глины. Толщина экрана – 1,5 м. Коэффициент фильтрации K_f – не более 1×10^{-5} м/сут. Экран препятствует проникновению атмосферных осадков внутрь траншеи, экранирует излучение от появляющихся гамма-излучателей.

Как было отмечено в соответствующих разделах, в настоящий момент условия для миграции урана фактически отсутствуют. Это связано с размещением РАО над уровнем грунтовых вод; нахождением большей части урана в формах, недоступных для выщелачивания грунтовыми водами; отсутствием физико-химических условий, способных привести к выщелачиванию и переносу урана из отходов в прилегающие ландшафты.

Для того, чтобы обоснованно ответить на вопрос, возможно ли появление условий благоприятных для миграции урана в будущем, нужно рассмотреть три варианта развития событий: понижение базиса эрозии (и как следствие, выветривание и размывание перекрывающих отходы грунтов); сохранение существующих условий; подъем базиса эрозии (результате будет происходить подъем уровня грунтовых вод и подтопление хранилища). Разновидностями третьего сценария являются подтопление хранилища вследствие либо изменения климатических условий, либо антропогенного воздействия.

Очевидно, что при сохранении существующих условий (нахождение хра-

нилища над уровнем грунтовых вод и отсутствие инфильтрации сверху атмосферных осадков) миграция не возникнет. В случае изменения базиса эрозии необходимо учитывать скорости, с которыми происходят новейшие вертикальные тектонические движения. По опыту изучения движений Западной Сибири, можно отметить, что скорости находятся в пределах от –6 до 2 мм/год [6]. При таких скоростях ожидать усиления эрозионной деятельности в обозримом будущем не приходится. Необходимо учитывать, что эрозионные процессы будут сопровождаться многократным перемешиванием с алюмосиликатным материалом окружающих грунтов, которые будут разрушаться вокруг отстойника. При этом произойдет многократное разбавление отходов и падение содержания урана до концентраций, незначительно превышающих фоновые. Поскольку отстойник расположен на пологом водоразделе и снабжен системой отвода атмосферных осадков, можно не учитывать возможность развития линейной эрозии (канавы, промоины, овраги).

Остается рассмотреть набор сценариев, связанный с возможным подъемом уровня грунтовых вод и подтоплением хранилища. Как показано выше, сейчас грунтовые воды представляют собой низкоминерализованные нейтральные растворы. При контакте этих растворов с отходами прежде всего начнется окисление содержащегося в отходах железа, являющегося активным восстановителем U(VI) до U(IV). При этом будет происходить резкое снижение концентраций урана в U-содержащих грунтовых водах. Растворение U-содержащих Fe-конструкций с кислородными углекислыми водами, то в зависимости от степени протекания реакции и соотношения $Fe(мет)/O_2(p-p)$ в каждый момент времени, уран будет сорбироваться образующимися гидроксидами железа или восстанавливаться, в том и другом случае, оставаясь на ме-

сте. Уран, который по той или иной причине не успеет прореагировать с образующейся гидроокисью железа, будет накапливаться на сорбционном глинистом барьере.

Активная миграция урана возможна только при появлении радикалов сильных кислот, например, SO_4^{2-} , F^- , Cl^- . Однако в конкретных условиях захоронения ТРО трудно ожидать появления радикалов сильных кислот (ни в отходах, ни во вмещающих породах нет соответствующих продуктов), а также растворов сильных оснований. Следовательно, химия системы будет определяться слабоуглекислыми (в основном) и слабобоксидными (в локальных участках) водными растворами.

Вполне очевидно, что в проектируемом могильнике ТРО просачивающиеся поверхностные воды могут насыщаться HCO_3^- как за счет углекислого газа воздуха, так и за счет окисления углерода, входящего в состав погребенных материалов (древесина, ткань, резина, пленка, пластмасса и пр.). Этот последний источник CO_2 , однако, является малозначимым, поскольку приток кислорода воздуха к органическому веществу будет медленным, и процесс окисления углерода составит многие десятилетия. Этот приток будет уменьшаться с глубиной и сходиться на нет в зоне оглеения, залегающей ниже ложа могильника. В целом можно предполагать, что содержание HCO_3^- в воде вряд ли будет когда-либо заметно превышать тот уровень, который характерен для гидрокарбонат-кальциевых подземных вод участка. В подобных пресных водах с $\text{pH} = 6-7$ и с содержаниями HCO_3^- , уравновешенного с Ca^+ , от 92,2 до 531 мг/л, представляющих, по сути, сильно разбавленные растворы, экстракция урана из отходов, где он в основном присутствует в прочно связанных формах, будет в единицу времени крайне незначительной и сопоставимой с природной миграцией урана в фоновых участках. Для почв и почвообразу-

ющих грунтов лесостепной зоны Западной Сибири, по данным наших работ, он составляет $\sim 90-100$ мкг/год из почвенного разреза объемом 1 м^3 [5]. Даже при переходе в лесостепные и степные ландшафты, если допускать такой радикальный сценарий изменения климата, содержание гидрокарбонат иона увеличится лишь в 1,5-2 раза. Слабокислые и нейтральные поровые воды здесь будут пересекать две зоны, разделенные переходом: зону окислительного и зону восстановительного выщелачивания (реликтовую глеевую). И в той, и в другой возможно и растворение, и осаждение урана, но в разных формах и в ничтожных количествах.

Резюмируя вышесказанное, можно отметить, что для любых реалистичных сценариев изменения ландшафтно-климатических и геолого-тектонических параметров миграция урана будет находиться на уровне фоновых обстановок. Даже возможное подтопление хранилищ не приведет к каким-то негативным эффектам ни в настоящее время, ни в обозримом будущем. В текущий момент в условиях нахождения хранилищ над уровнем грунтовых вод и отсутствия вертикальной инфильтрации атмосферных осадков, отходы способны сохраняться неопределенно долго. Единственный процесс, который может в них происходить – накопление дочерних элементов вследствие радиоактивного распада. Однако и эти процессы протекают весьма медленно. Вековое равновесие устанавливается в течение 2,5 млн. лет, поэтому в ближайшую сотню лет ожидать заметного накопления дочерних гамма-излучателей не приходится.

Заключение

При проектировании хранилища РАО неизбежно возникают вопросы, связанные с неопределенностями оценки его воздействия на окружающую среду в долгосрочной перспективе. Поэтому любой прогноз имеет вероят-

ностный характер, достоверность которого зависит от степени изученности объекта.

Для данного случая можно констатировать, что траншеи хранилищ представляют собой объекты, вынос загрязняющих веществ из которых возможен только с грунтовыми водами. Созданная на поверхности система дренажа, а также изоляция, возведенная над ними сверху, полностью исключает появление других агентов миграции. Днища траншей находятся над поверхностью водоносного горизонта. Учитывая распространение с поверхности толщи слабопроницаемых суглинков, которые одновременно являются сорбционным барьером, «сухое» состояние хранящихся отходов и наличие изолирующего перекрытия толщиной 1,5 м над хранилищем, можно говорить о надежной защищенности подземных вод от воздействия ТРО.

Оценка процессов, которые будут развиваться при попадании в тело залежи грунтовых или атмосферных вод, должна строиться с учетом химического состава отходов и геохимических характеристик участка захоронения. В рассмотренном случае сформировавшиеся гео- и гидрохимические условия в сооружениях препятствуют появлению мобильных форм урана, которые способны мигрировать сквозь вмещающие супеси и суглинки. Шлаки, которые будут составлять основную часть захораниваемых РАО, отличаются высокой устойчивостью к грунтовым водам. Как показали эксперименты по определению форм нахождения урана, основная его

часть (> 80 %) находится в карбонатной форме. В водорастворимой и обменной формах находится не более 4,4 % урана, остальной уран даже в условиях контакта с грунтовыми водами не сможет перейти в раствор.

Дополнительным благоприятным фактором является нахождение в отходах алюминиевого и железного лома, которые при окислении резко снижают окислительно-восстановительный потенциал системы, что способствует переходу урана из шести- в четырехвалентную форму, при этом его подвижность падает на несколько порядков, а появляющиеся гетит и гиббсит способны эффективно адсорбировать уран из раствора.

Необходимо отметить и природные аналоги урановых депозиторий. В пределах Алтае-Саянской складчатой области и Енисейского кряжа работами Березовской экспедиции было выявлено 30 месторождений (запасы урана в которых превышают 1000 т) и свыше 150 рудопоявлений урана (с запасами десятки-сотни т) [7]. Глубина залегания отдельных рудных тел изменяется от нескольких километров до выхода на поверхность. Некоторые из них активно размываются в настоящее время, например, месторождение Приморское, расположенное на берегу Красноярского водохранилища. Следствием выхода на поверхность руд являются геохимические и гидрогеохимические урановые аномалии, концентрация урана в которых существенно ниже уровней, установленных нормативными документами.

Работа выполнена по государственному заданию ИГМ СО РАН при поддержке гранта РФФИ № № 17-05-00707.

Список литературы

1. Klemt E., Spasova Y., Zibold G., Bolsunovsky A. Environmental Radioactivity in the Arctic & Antarctic. – Norwegian Radiation Protection Authority (Norway), 2002. – P. 67-70.
2. Tessier A., Campbell P.G.C., Bisson M. Sequential Extraction Procedure for the Speciation of Particulate Trace Metals // Analytical chemistry. – 1979. – Vol. 51. – № 7. – P. 844-851.
3. Кузнецов В.А., Шимко Г.А. Метод постадийных вытяжек при геохимических исследованиях. – Минск: Навука і тэхніка, 1990. – 88с.

4. Qafoku N.P., Icenhower J.P. Interactions of aqueous U(VI) with soil minerals in slightly alkaline natural systems // *Rev Environ Sci Biotechnol.* – 2008. – № 7. – P. 355-380.
5. Богуславский А.Е., Ковалев В.П. Перераспределение естественных радиоактивных элементов в голоценовых ландшафтных зонах Приобского плато и Восточной Кулунды // *Химия в интересах устойчивого развития.* – 2003. – № 6. – С. 227-234.
6. Колмогоров В.Г., Колмогорова П.П. Применение методов корреляционной картографии в геодинамических исследованиях Западно-Сибирской плиты // *Геодезия и картография.* – 2000. – № 11. – С. 30-38.
7. Рубинов И.М., Шевцова Н.А. Ураноносность центральной Сибири: аналитический обзор по материалам исследований Сибирского филиала ФГУГП «Урангеологоразведка» «Березовгеология». – Новосибирск, 2008. – 88 с.

References

1. Klemt E., Spasova Y., Zibold G., Bolsunovsky A. Environmental Radioactivity in the Arctic & Antarctic. – Norwegian Radiation Protection Authority (Norway), 2002. – P. 67-70.
2. Tessier A., Campbell P.G.C., Bisson M. Sequential Extraction Procedure for the Speciation of Particulate Trace Metals // *Analytical chemistry.* – 1979. – Vol. 51. – № 7. – P. 844-851.
3. Kuznetsov V.A., Shimko G.A. Metod postadynykh vytyazhek pri geokhimicheskikh issledovaniyakh. – Minsk: Navuka i tekhnika, 1990. – 88s.
4. Qafoku N.P., Icenhower J.P. Interactions of aqueous U(VI) with soil minerals in slightly alkaline natural systems // *Rev Environ Sci Biotechnol.* – 2008. – № 7. – P. 355-380.
5. Boguslavsky A.E., Kovalev V.P. Pereraspredeleniye estestvennykh radioaktivnykh elementov v golotsenovykh landshaftnykh zonakh Priobskogo plato i Vostochnoy Kulundy // *Khimiya v interesakh ustoychivogo razvitiya.* – 2003. – № 6. – S. 227-234.
6. Kolmogorov V.G., Kolmogorova P.P. Primeneniye metodov korrelyatsionnoy kartografii v geodinamicheskikh issledovaniyakh Zapadno-Sibirskoy plity // *Geodeziya i kartografiya.* – 2000. – № 11. – S. 30-38.
7. Rubinov I.M., Shevtsova N.A. Uranonosnost tsentralnoy Sibiri: analitichesky obzor po materialam issledovaniy Sibirskogo filiala FGUGP «Urangeologorazvedka» «Berezovgeologiya». – Novosibirsk, 2008. – 88 s.

PREDICTIVE ESTIMATION OF ENVIRONMENTAL SAFETY OF THE SRW STORAGE SYSTEM

A.E. Boguslavsky, O.L. Gaskova

Sobolev Institute of Geology and Mineralogy SB RAS, Novosibirsk

E-mail: boguslav@mail.ru, gaskova@igm.nsc.ru

The work presents an assessment the environmental impact of the designed solid radioactive waste storage facility. It is concluded that there are no conditions for uranium removal beyond the deposit boundaries from the analysis of chemical properties of wastes, geological and geochemical properties of the site, and thermodynamic estimation of possible uranium migration forms. Factors that inhibit uranium distribution are the clay layer covers from above and below, absence of contact with ground and meteoric waters, and presence of metallic iron and aluminium in the wastes.

Keywords: RW disposal, uranium migration, geochemical barriers, migration prediction, thermodynamic modeling, migration forms of elements.

Received August 31, 2019