

УДК 556.388:621.039.7

© 1996 г.

## ЗАДЕРЖКА РАДИОНУКЛИДОВ ТВЕРДОЙ ФАЗОЙ ГЕОЛОГИЧЕСКОГО МАССИВА ВБЛИЗИ ОЗЕРА КАРАЧАЙ

*Е.Г. Дрожко, И.А. Иванов*

*Россия, Озерск, ПО "Маяк"*

*Л.М. Самсонова*

*Россия, Москва, ГГП Гидроспецгеология*

*Б.Г. Самсонов, В.И. Мальшев, А.Е. Бахур, Ю.П. Салмин, Л.А. Березина*

*Россия, Москва, Всероссийский Институт Минерального Сырья*

Представлены результаты исследований распределения техногенных радионуклидов в твердой фазе ореола загрязнения от водоема-хранилища жидких радиоактивных отходов - оз.Карачай (водоем-9) на основе комплексного изучения образцов и проб, отобранных из кернового материала буровой скважины.

Показано, что характер задержки и распределения долгоживущих радионуклидов в горных породах водовмещающего горизонта в районе водоема-9 определяется, в основном, проявленностью вторичных тектонических и геохимических процессов - степенью трещиноватости геологического массива, наличием и количеством определенных минеральных новообразований. Механизм задержки радионуклидов в породе определен, предположительно, как сорбционный.

На ПО "Маяк" в качестве поверхностного хранилища жидких радиоактивных отходов (РАО) используется естественное понижение рельефа - озеро Карачай (водоем-9). Озеро связано с подземными водами, и за период его эксплуатации с октября 1951 года по январь 1995 года в подземные воды поступило около  $3.5 \times 10^6$  м<sup>3</sup> промышленных растворов. Жидкие РАО являются сложными многокомпонентными растворами, которые содержат как стабильные компоненты в макроколичествах (натрий, кальций, нитрат-ион, нитрит-ион, ацетат-ион, сульфат-ион, хлор-ион и т.д.), так и радиоактивные компоненты в микроколичествах (церий-144, цезий-137, цезий-134, сурьма-125, рутений-106, рутений-103, цирконий-95, ниобий-95, стронций-90, кобальт-60, тритий, плутоний-239, америций-241, изотопы урана

и т.д.). Растворы имеют плотность 1.02 - 1.09 г/см<sup>3</sup>.

Распространение компонентов загрязнения от озера Карачай происходит в жидкой фазе геологического массива - в подземных водах. Поток компонентов загрязнения представляет собой фильтрационные потери водоема - техногенные растворы радиохимического производства. В качестве потока-носителя выступает поток подземных вод, естественная структура которого осложнена фильтрационными потерями водоема и повышенной плотностью техногенных растворов. Распространение компонентов загрязнения в геологическом массиве (миграция) происходит вследствие конвекции и определяется структурой потока-носителя и его действительной скоростью. Миграция растворенного вещества техногенных растворов с потоком-

носителем происходит по ореольной схеме, когда миграция сопровождается рассеянием, т.е. уменьшением концентрации компонентов загрязнения в направлении вектора скорости. В качестве факторов рассеяния здесь выступают фильтрационная дисперсия, радиоактивный распад и физико-химическое взаимодействие растворенного вещества с твердой фазой фильтрующей среды, в данном случае эффузивными трещиноватыми породами.

Миграционные способности отдельных компонентов, таким образом, определяются тем, насколько они подвержены влиянию указанных факторов рассеяния.

По этому признаку, т.е. по миграционной способности, компоненты техногенных растворов подразделяются на четыре группы.

I. К первой группе относятся стабильные анионы и нейтральные комплексы: нитрат-ион, нитрит-ион, ацетат-ион, сульфат-ион, хлор-ион. Основным и, по-видимому, единственным фактором рассеяния для компонентов этой группы является фильтрационная дисперсия.

Ореолы рассеяния компонентов этой группы отличаются наибольшей протяженностью. По этой причине представитель этой группы - нитрат-ион - избран в качестве трассера. Определяющим признаком этой группы является линейная корреляция концентраций компонентов и концентраций трассера. Линейная корреляция прослежена для пары нитрат-ион - ацетат-ион.

II. Ко второй группе относятся стабильные катионы: натрий, кальций, магний. Основными факторами рассеяния для этих компонентов являются фильтрационная дисперсия и физико-химическое взаимодействие с твердой фазой фильтрующей среды.

III. К третьей группе относятся радиоактивные элементы, мигрирующие в форме анионных и нейтральных комплексов:

а) с периодом полураспада менее 15 лет: тритий, рутений-106, кобальт-60;

б) с периодом полураспада более 15 лет: америций-241. Эффект распада радиоактивных элементов с периодом полураспада менее 15 лет на реальных путях миграции заметен, при периоде полураспада более 15 лет пренебрежимо мал.

Основные факторы рассеяния компонентов подгруппы IIIa - фильтрационная дисперсия и радиоактивный распад. Определяющим признаком этой подгруппы является корреляция концентраций радиоактивных элементов и трассера. Такая зависимость прослежена для пар  $\text{NO}_3^-$ - $\text{Ru}^{106}$ ,  $\text{NO}_3^-$ - $\text{Co}^{60}$  и т.д.

Основной фактор рассеяния компонентов подгруппы IIIб - фильтрационная дисперсия.

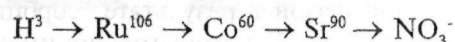
IV. К четвертой группе относятся радиоактивные элементы, мигрирующие в форме катионов и катионных комплексов:

а) с периодом полураспада менее 15 лет: церий-144, цирконий-95, ниобий-95, сурьма-125;

б) с периодом полураспада более 15 лет: стронций-90, цезий-137, плутоний-239, уран-238, нептуний-237.

Основные факторы рассеяния для компонентов подгруппы IVa - фильтрационная дисперсия, физико-химическое взаимодействие с твердой фазой массива, радиоактивный распад; для компонентов подгруппы IVб - фильтрационная дисперсия и физико-химическое взаимодействие с твердой фазой.

По результатам определения масштаба распространения загрязнения в подземных водах выявлена следующая последовательность увеличения размера ореолов основных компонентов-загрязнителей:



За исключением трития, этот ряд соответствует описанной группировке и набору действующих факторов рассеяния вещества. Аномально малая протяженность ореола трития связана с более поздним поступлением его в водоем-9.

Сопоставляя ореолы трассера  $\text{NO}_3^-$  и стронция-90 при равенстве вклада фильтрационной дисперсии и незначительном вкладе радиоактивного распада, замечаем несопоставимо меньшую протяженность ореола стронция-90. По этому факту следует признать существенную роль физико-химического взаимодействия как фактора уменьшения концентрации стронция-90 в растворе. Признавая заметную роль фактора рассеяния стронция-90 за счет физико-химического взаимодействия, по этой же причине мы должны признать и вероятность накопления компонентов четвертой группы, особенно долгоживущих компонентов (IVб), в твердой фазе фильтрующих пород.

Таким образом, анализируя закономерности рассеяния компонентов загрязнения в водном ореоле, мы обнаруживаем качественные предпосылки накопления их в твердой фазе.

Переход компонентов загрязнения и, в частности, радионуклидов из техногенных растворов в твердую фазу - в минеральные структуры и на поверхность пустот в фильтрующих горных породах - представляется, ввиду сложности процессов, обобщенно в виде явления задержки мигрирующих компонентов твердой фазой.

Механизм задержки можно представить в виде двух групп процессов:

а) задержки вместе с жидкой фазой как результат влияния непроточного порового объема, в частности, связанного с влиянием сил поверхностного натяжения в микротрещинах [1];

б) задержки радионуклидов непосредственно твердой фазой в результате сорбционных процессов, под которыми понимаются абсорбция, адсорбция, хемосорбция и ионный обмен [2].

Разделение этих процессов практически невозможно, поэтому для характеристики явления задержки используются обобщенные показатели: коэффициент межфазового

распределения, эффективная пористость и фактор задержки [2].

Однако, даже при помощи такого упрощения прогнозные расчеты накопления радионуклидов в твердой фазе были бы весьма неопределенны. Поэтому мы обращаемся к трудоемкому, но надежному способу непосредственного изучения распределения радионуклидов в керне скважин, пробуренных в пределах установленных водных ореолов рассеяния.

Предметом изучения послужил керновый материал скважины 5-190, пробуренной в 400 м к северу от водоема-9. Керновый материал представлен четырьмя кусками-монолитами с глубин 44.5, 65, 67 и 92 м. Кроме того имеются 14 небольших образцов с различных глубин. Керновый материал распилен по интересующим плоскостям, изготовлены шлифы и аншлифы. Исследования этого кернового материала состояли из петрографического описания горной породы, радиографического изучения шлифов и аншлифов, спектрометрических и радиохимических исследований.

По результатам исследований установлено, что до глубины 92 м прослеживаются пироксен-плагиоклазовые порфириды и их туфы, разбитые зонами брекчирования и милонитизации. Минеральный состав порфиридов: плагиоклаз, пироксен, хлорит, карбонат, эпидот. Порфириды изменены - ожелезнены, хлоритизированы, карбонатизированы, эпидотизированы.

В верхах разреза, в интервале 5 - 14 м, порфириды подверглись наиболее интенсивным гипергенным изменениям. Породы катаклазированы, измельчены и милонитизированы. К участкам катаклаза и милонитовым швам, состоящим из глинистого материала, приурочены прожилки оксидов железа, эпидота, хлорита. На глубине 24 м вскрываются плотные массивные порфириды, основная масса которых представлена вулканическим стеклом. В интервале 29-30 м отмечается зона катаклаза, брекчирования и

милонитизации. В интервале 38 - 92 м залегают плотные массивные пироксен-андезитовые порфириды.

Повышенная бета-активность образцов пород обнаруживается в интервале 5-38 м при наибольшем ее проявлении в интервале до 14 м. Это свидетельствует о приуроченности максимальной активности к зоне гипергенных изменений порфиритов в приповерхностной части разреза. Однако распределение бета-активности внутри керна не соответствует этой установленной зональности. Так, монолит с глубины 67 м оказывается более активным и показательным, нежели монолит с глубины 44.5 м.

Объектом основного внимания при изучении образца с глубины 67 м была отпрепарированная макротрещина, представленная

внутренней плоскостью-сколом (внешняя плоскость отсутствует), ориентированная под острым углом к оси керна. Поверхность скола покрыта коркой оксидов железа и карбонатами. След активности на радиографии отчетливо повторяет контуры ожелезнения. Наибольшая активность отмечается на темно-бурых корках гидроксидов железа. В местах их отсутствия порфирит неактивен, на карбонатных участках активность практически отсутствует.

Следы активности на радиографии (рис.1) при экспозиции 10 суток распределены неравномерно и носят очаговый характер.

Таким образом, характер распределения активности в плоскости скола и, в частности, приуроченность его к участкам ожелезнения

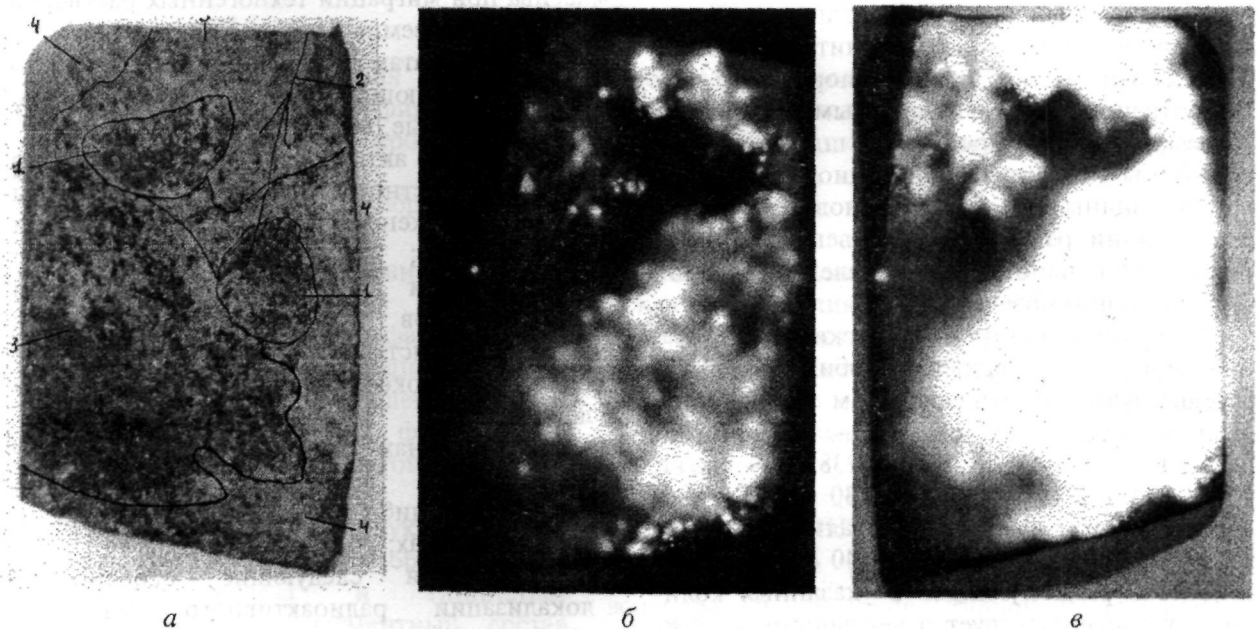


Рис.1. Результаты радиографического изучения скола керна с глубины 67 м по трещине (ум. 2<sup>x</sup>)  
 а) фотография скола (1-участки неизмененного порфирита, 2-тонкий прожилок с активностью, 3-корка оксидов железа и карбоната, темное на фото - плотные налеты оксидов железа, 4-корочки карбоната);  
 б) радиография (зеркальное отображение), экспозиция 10 суток;  
 в) радиография, экспозиция 30 суток.

рассматривается как признак сорбционной задержки.

Изучение этого образца продолжено радиографическим исследованием внутренней от плоскости скола области керна. Для этого произведен распил субпараллельно к плоскости скола.

Радиографии внутренней и внешней плоскости распила обнаруживают слабую активность, что свидетельствует о диффузионном проникновении радиоактивного вещества.

В поперечных сечениях монолита (верхний срез) заметны следы локализации активности в микротрещинах и отдельные очаги, приуроченные к раскристаллизованной массе породы, к выделениям лейкоксена, лейкоксенизированного сфена и бурым оксидам железа.

Характер распределения активности в кактаклазированном и милонитизированном пироксен-плагноклазовом порфирите с микротрещинами, заполненными оксидами железа, отчетливо проявлен в шлифе образца с глубины 13 м (рис.2). На радиографии этого шлифа видны не только основные участки локализации радиоактивного вещества, но и окаймления, напоминающие следы диффузионного проникновения.

Результаты спектрометрических исследований кернавого материала с глубины 67 м свидетельствуют о существенном накоплении радионуклидов: стронция-90 - 3470 Бк/кг, цезия-137 - 56 Бк/кг, урана-238 - 24 Бк/кг, урана-234 - 27 Бк/кг, тория-230 - 22 Бк/кг и других изотопов тория, кобальта-60 - 3.9 Бк/кг, а также плутония-239-240 - 1.1 Бк/кг.

Состав радионуклидов в указанных количествах свидетельствует о реальности задержки порфиритами прежде всего компонентов подгруппы IVб, т.е. долгоживущих радионуклидов, мигрирующих, предположительно, в катионной форме. Основными факторами рассеяния этой группы радионуклидов являются фильтрационная дисперсия и физико-химическое

взаимодействие с фильтрующей средой. Исходя из условий локализации активности, можно предположить, что основными факторами задержки указанных радионуклидов являются сорбционные процессы. Задержке в непроточном поровом объеме, т.е. задержке вместе с жидкой фазой, должны быть подвержены в равной степени все радионуклиды, за исключением короткоживущих. На это могло бы указывать наличие кобальта-60, однако вероятность нахождения его одновременно в анионной и катионной форме не исключается. Следовательно, реальность задержки по механизму непроточного порового объема, т.е. с водной фазой, сомнительна.

Выполненные исследования являются началом систематического изучения задержки радионуклидов твердой фазой геологического массива при миграции техногенных растворов с потоком подземных вод оз.Карачай.

По результатам этих исследований можно сделать следующие, пока только самые предварительные, выводы:

- основная активность сосредоточена в приповерхностной части разреза до глубины 30-40 м, сложенной наиболее измененными порфиритами;
- основными объектами задержки радионуклидов являются гидроксиды железа, глинистый материал в милонитовых швах, лейкоксенизированный сфен и лейкоксен;
- на глубинах ниже 40 м, в слабо измененных порфиритах, активность снижается, либо проявлена локально в макротрещинах;
- выделяются следующие особенности локализации радиоактивного вещества: наиболее активные проявления приурочены к трещинам разного порядка в ассоциации с гидроксидами железа, слабоактивные - к основной мелкозернистой массе, сложенной микролитами плагноклаза и пироксена, точечные - к локальным выделениям

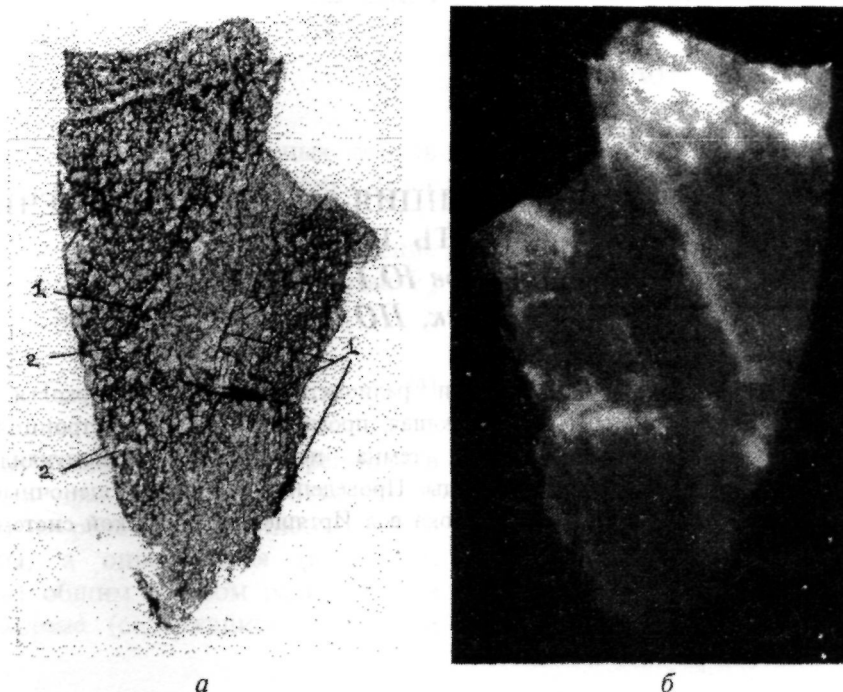


Рис.2. Характер распределения активности в катаклазированном и милонитизированном пироксен-плагиоклазовом порфирите с прожилками оксидов железа (шлиф 5-13, ув. 2<sup>х</sup>)  
 а) фотография шлифа (1 - прожилки оксидов железа, 2 - вкрапленники пироксена и плагиоклаза)  
 б) радиография (зёркальное отображение), экспозиция 10 суток.

лейкоксена, лейкоксенизированного сфена и оксида железа;

- основная бета- и альфа-активность обусловлена техногенными радионуклидами - стронцием-90, в меньшей степени цезием-137 и кобальтом-60, фиксируются повышенные содержания плутония-239(240) и урана-234(238);

- приуроченность радионуклидов к известным природным сорбентам - гидроксидам железа и глинистым минералам, а также элементный состав радионуклидов с вероятной катионной формой миграции позволяют предположить преимущественно сорбционный механизм задержки.

По местоположению скважины 5-190 не исключается влияние побочного (помимо водоема-9) источника радиоактивного загрязнения, поэтому дальнейшие исследования необходимо сосредоточить на керновом материале из южной части водного ореола рассеяния.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. Самсонов Б.Г., Самсонова Л.М. Миграция вещества и решение гидрогеологических задач. М."Недра", 1987 г.
2. Рыбальченко А.И., Пименов М.К., Костин П.П. и др. Глубинное захоронение жидких радиоактивных отходов. М. ИздАТ, 1994 г.

Поступила в редакцию в апреле 1996 г.