

СПОСОБ ЗАЩИТЫ ВОДНЫХ РЕСУРСОВ ОТ ЗАГРЯЗНЕНИЯ ПРИ РАЗМЕЩЕНИИ ЖИДКИХ РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ В ПРИПОВЕРХНОСТНЫХ ХРАНИЛИЩАХ БОЛЬШОГО ОБЪЕМА

THE METHOD OF WATER RESOURCES PROTECTION AGAINST CONTAMINATION DURING STORAGE OF LIQUID RADIOACTIVE WASTE IN NEAR-SURFACE LARGE VOLUME REPOSITORIES

СЕРГЕЕВ В.И.

Заведующий лабораторией охраны геологической среды геологического факультета Московского государственного университета им. М.В. Ломоносова, д.г.-м.н., профессор, г. Москва, bazismo@mail.ru

СТЕПАНОВА Н.Ю.

Инженер лаборатории охраны геологической среды геологического факультета Московского государственного университета им. М.В. Ломоносова, к.т.н., г. Москва, snonpay@mail.ru

ДАНЧЕНКО Н.Н.

Старший научный сотрудник Центра испытания функциональных материалов Московского физико-технического института, к.х.н., г. Москва, nataly_danch@mail.ru

КУЛЕШОВА М.Л.

Ведущий научный сотрудник лаборатории охраны геологической среды геологического факультета Московского государственного университета им. М.В. Ломоносова, к.г.-м.н., г. Москва, rita5715@mail.ru

ШИМКО Т.Г.

Ведущий научный сотрудник лаборатории охраны геологической среды геологического факультета Московского государственного университета им. М.В. Ломоносова, к.г.-м.н., г. Москва, shimko@geol.msu.ru

SERGEYEV V.I.

Head of the Laboratory of Geoenvironmental Protection, Faculty of Geology, Lomonosov Moscow State University, DSc (Doctor of Science in Geology and Mineralogy), professor, Moscow, bazismo@mail.ru

STEPANOVA N.YU.

Engineer of the Laboratory of Geoenvironmental Protection, Faculty of Geology, Lomonosov Moscow State University, PhD (Candidate of Science in Technology), Moscow, snonpay@mail.ru

DANCHENKO N.N.

Senior Research Scientist of the Center of Testing of Functional Materials, Moscow Institute of Physics and Technology, PhD (Candidate of Science in Chemistry), Moscow, nataly_danch@mail.ru

KULESHOVA M.L.

Leading Research Scientist of Laboratory of Geoenvironmental Protection, Faculty of Geology, Lomonosov Moscow State University, PhD (Candidate of Science in Geology and Mineralogy), Moscow, rita5715@mail.ru

SHIMKO T.G.

Leading Research Scientist of Laboratory of Geoenvironmental Protection, Faculty of Geology, Lomonosov Moscow State University, PhD (Candidate of Science in Geology and Mineralogy), Moscow, shimko@geol.msu.ru

Ключевые слова:

защита подземных вод; жидкие радиоактивные отходы; приповерхностные пульпохранилища; бентонит; геохимический барьер.

Key words:

ground water protection; liquid radioactive waste; near-surface repositories; bentonite; geochemical barrier.

Аннотация

В статье предлагается экологически- и пожаробезопасный, экономически доступный способ консервации жидких радиоактивных отходов (ЖРО), размещенных в приповерхностных хранилищах («банках»). Недефицитные природные материалы — бентонитовые глины — вводятся при перемешивании в емкость с ЖРО в качестве консерванта, что позволяет получить непосредственно в «банке» пастообразную пластичную массу низкой проницаемости. При этом радионуклиды из отходов практически полностью иммобилизованы на твердой фазе. При необходимости транспортировки пластичная масса может быть снова переведена в текучую суспензию с помощью приложения вибрационной нагрузки.

Введение

Развитие атомной промышленности сопровождается размещением жидких радиоактивных отходов (ЖРО) в геологической среде. Использовались различные варианты такого размещения, в том числе и приповерхностное размещение в пульпохранилищах большого объема, так называемых банках. Согласно современным требованиям допускается временное хранение радиоактивных отходов (РАО) в районах первоначального размещения в течение не более 100 лет, если принятые защитные мероприятия исключают отрицательное воздействие на окружающую среду за этот период.

До сегодняшнего дня значительные объемы жидких отходов хранятся в специальных бетонных или металлических емкостях большого объема, которые должны были исключить возможность фильтрации потенциальных радиоактивных загрязнителей через основание и боковые стенки емкости. Первые конструкции сооружались из бетона, коэффициент фильтрации которого лежит в пределах 0,001–0,07 м/сут, что не исключает возможности загрязняющего воздействия на подземные воды района их размещения. Металлические конструкции, исключая такое воздействие на первых этапах эксплуатации, со временем подвергаются коррозии.

Abstract

Ecologically benign, fire-safe and not expensive conservation method is proposed for near-surface liquid radwastes repository. The method consists in the introducing suitable amount of bentonite powder with agitation into the storage tank. As a result, total volume of liquid radwastes turn into impermeable plastic paste, while about all the radioactive elements become immobilized at the solid phase of paste. When required evacuation the plastic paste may be transformed into the pourable suspension under vibrational load.

Возможность инфильтрации ЖРО в приповерхностную грунтовую толщу определяется постоянным изменением уровня первого водоносного горизонта, или верховодки. Вследствие такого изменения появляется разница с уровнем ЖРО в емкости и, соответственно, градиент фильтрации, определяющий расход жидких отходов через стенки и дно бетонной конструкции. В засушливые летние сезоны при низком уровне первого водоносного горизонта в районе размещения емкости градиент фильтрации достигает максимальной величины, что и вызывает наибольший объем просачивания ЖРО из емкости.

В настоящее время нормы по допустимой техногенной нагрузке на окружающую среду ужесточились, что требует разработки мероприятий, исключающих загрязняющее влияние участков хранения и размещения отходов на окружающую среду и, прежде всего, на один из важнейших ее компонентов — водные ресурсы. В связи с этим остро актуальной задачей является разработка на базе накопленного опыта более надежных способов защиты водных ресурсов в местах хранения и размещения ЖРО. Значительные масштабы хранилищ отходов определяют необходимость поиска недорогих и эффективных решений. Учитывая тот факт, что хранение в емкостях разрешено в течение срока, не превышающего 100 лет, любой предлагаемый способ защиты водных ресурсов должен гарантировать возможность беспрепятственного изъятия радиоактивной массы и ее транспортировки к специально подготовленному месту постоянного размещения таких отходов. Авторами настоящей работы предлагается способ консервации приповерхностных хранилищ ЖРО большого объема, позволяющий приблизиться к решению описанных актуальных задач.

Существующий опыт

В мировой практике для защиты подземных вод от загрязнения в районах размещения токсичных и радиоактивных отходов традиционно используются противофильтрационные противомиграционные экраны. Наиболее надежным способом защиты является «стена в грунте», однако ее дорогостоящее сооружение не всегда оправдано с экономической точки зрения. Ограничения на реализацию подобных проектов накладывает необходимость прокладки рельсовых путей по периметру участка размещения экрана. Серьезные осложнения возникают при наличии каких-либо инженерных сооружений на участке выполнения работ.

К более приемлемым и менее затратным способам относится создание защитных экранов путем инъекции суспензионных или химических гелеобразующих растворов по периметру участка размещения отходов. На рисунке 1, а, б представлен стандартный вариант сооружения противофильтрационного противомиграционного защитного экрана в районе размещения бетонной емкости с ЖРО.

Высокая эффективность предлагаемого способа защиты подземных вод достигается лишь в случае, когда противофильтрационный экран соединяется с нижележащим водоупором (см. рис. 1, а). К сожалению, этот вариант защиты при определенных инженерно-геологических условиях не всегда дает планируемый результат: при отсутствии водоупора, с которым соединяется вертикальный противофильтрационный экран, основание емкости размещения отходов остается незащищенным (см. рис. 1, б). Процесс создания горизонтального защитного экрана инъекционным способом

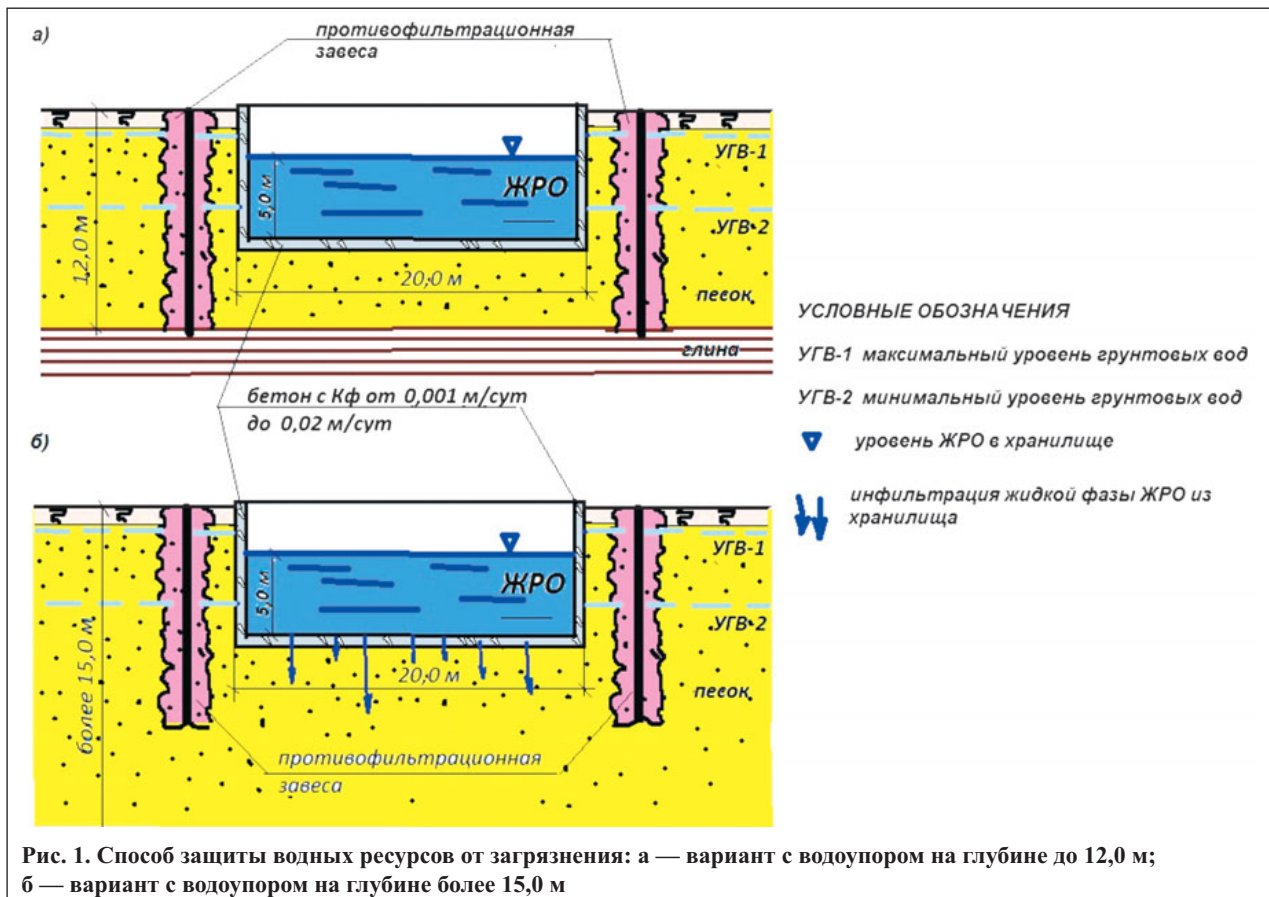


Таблица 1

Основные характеристики образцов бентонитовых глин			
Грунты	Удельный вес, г/см ³	Содержание глинистых фракций, %*	Общее содержание смектитов и смешанослойных минералов, %
Бентонит асканский	2,64	92,2	83
Бентонит зырянский	2,80	87,90	67
Бентонит дашуковский	2,45	95	72

* Пипеточный метод (ГОСТ 5180-84).

Таблица 2

Поглощающая способность грунтов по отношению к стронцию (Sr) и цезию (Cs)				
Грунты	Поглощающая способность			
	Sr		Cs	
	мг-экв/г	мг/г	мг-экв/г	мг/г
Бентонит асканский	0,89	39,0	0,42	55,3
Бентонит зырянский	0,47	20,5	0,29	39,0
Бентонит дашуковский	1,47	64,5	0,50	66,5

усложняется большим объемом буровых работ. При сооружении защитного экрана по периметру емкости с площадью основания 1000 м² и объемом 3000–5000 м³ потребуется пробурить не менее 150 скважин, а для создания экрана высокого качества — не менее 220 скважин. Практика показывает, что однорядная завеса не позволяет получить надежный в фильтрационном и сорбционном отношении защитный экран из-за процессов, сопровождающих распространение тампонажных растворов [6, 10]. Прежде всего это процессы гидродисперсии химических гелеобразующих растворов и водоотдача суспензионных растворов, закачиваемых в грунт.

Предлагаемое решение

С учетом сложности создания надежного защитного экрана на уже существующем участке размещения радиоактивных отходов акцент в исследованиях был смещен в сторону разработки способа консервации ЖРО непосредственно в емкости [8, 9]. Помимо обоснования принципиальных положений способа консервации ЖРО, исключая влияние на водные ресурсы района, перед авторами встала необходимость решения задач, связанных с вышеназванными требованиями о возможности беспрепятственного изъятия и транспортировки массы отходов на более безопасный участок.

Выполненный комплекс исследований стал экспериментальным основанием для разработки способа консервации, позволяющего непосредственно в емкости хранения преобразовать жидкие радиоактивные отходы в пастообразную массу, из которой радионук-

лиды не могут выйти под действием инфильтрации и, соответственно, остаются в пределах бетонных или железных ограничивающих конструкций.

В качестве преобразующего агента-консерванта был использован сухой порошок бентонитовой глины. Как известно, бентонитовые глины обладают уникальным сочетанием физико-химических свойств: способностью к сильному набуханию в водных растворах, низким коэффициентом фильтрации, а также высокой сорбционной емкостью по отношению к катионам радионуклидов.

В исследовании были использованы три образца бентонитовых глин, относящихся к двум различным генетическим типам [2, 4, 5]:

- 1) бентонит щелочной из Асканского месторождения (Грузия) палеогенового возраста (Pg₂), гидротермально-метасоматический тип;
- 2) бентонит щелочноземельный из Зырянского месторождения (Курганская обл., Россия) неогенового возраста (N₁), терригенно-коллоидно-осадочный тип, континентальный подтип; Зырянское месторождение формировалось в лагунно-морской слабощелочной среде;
- 3) бентонит щелочноземельный из Дашуковского месторождения (Черкасская обл., Украина) неогенового возраста (N₁), терригенно-коллоидно-осадочный тип, морской подтип [6]. Природный дашуковский бентонит кальциево-магниевый, но предоставленный образец был промышленно модифицирован за счет обработки раствором соды.

В таблице 1 представлены основные характеристики глин, использованных в экспериментальных работах.

Оценка поглощающей способности вводимого в ЖРО консерванта исследовалась в статических условиях для всех бентонитовых разновидностей в отношении стронция и цезия. В данном случае изучение поглощающей способности в статических условиях является вполне обоснованным решением, так как вся масса бентонита при введении ее в «банки» практически одновременно входит в контакт со всем объемом ЖРО. Результаты определения поглощающей способности представлены в табл. 2.

Из таблицы 2 видно, что поглощающая способность для данных бентонитов варьирует от 20,5 до 64,5 мг на 1 г грунта по Sr и от 39 до 66,5 мг на 1 г грунта по Cs. Это достаточно высокие значения, из которых следует, что при использовании в качестве консерванта любого из этих бентонитов основная часть данных радионуклидов будет не только включена в пластичную массу, но и сорбирована на бентоните, то есть иммобилизована прочно. Вместе с тем следует принимать во внимание тот факт, что как поглощающая способность, так и реологические свойства бентонитовых глин в значительной степени зависят от pH и химического состава ЖРО.

Сорбционная емкость бентонитов по отношению к радионуклидам в присутствии конкурирующих катионов падает, так как они блокируют активные центры на поверхности грунта и нейтрализуют поверхностный заряд глинистых частиц.

Степень набухаемости бентонитов и устойчивость образующейся пластичной пастообразной массы зависят от концентрации и химической природы катионов

в консервируемом растворе (ЖРО). Интервал концентраций солей, в котором поверхностный заряд и проводимость частиц суспензии практически не меняются и, соответственно, суспензия сохраняет способность переходить в пластичную массу, достаточно широк — от 10^{-6} до 10^{-1} моль [1]. Однако допустимая степень минерализации исходных ЖРО для разных видов бентонитов может быть различной и должна определяться экспериментально.

В ходе предварительного исследования было установлено, что увеличение концентрации электролита в модельном растворе от 0,01 до 0,05% приводит к повышению степени набухания и влажности набухания Na-монтмориллонита (дашуковский образец), тогда как в Са-монтмориллоните (зырянский образец) эти показатели несколько снижаются. По полученным в ходе выполнения НИР данным [7] такие количества солей соответствуют общей минерализации некоторых реальных ЖРО.

Что касается влияния возможной повышенной температуры, обусловленной остаточной радиоактивностью отходов, то из литературы [1] известно, что небольшое повышение температуры приводит к некоторому росту сорбционной емкости и набухаемости бентонитов.

Таким образом, вопрос о применимости данного способа консервации и выбора оптимального варианта для конкретных ЖРО должен решаться с помощью определения содержания макрокомпонентов в жидкой фазе ЖРО и путем лабораторных испытаний бентонитовых глин, доступных в районе размещения приповерхностных хранилищ РАО.

Основной задачей при выработке технологического решения для использования в качестве консерванта бентонитовой глины является определение ее оптимального количества для внесения на единицу объема жидкой фазы отходов, чтобы обеспечивались следующие условия:

- 1) возможность непрерывного перемешивания формирующейся суспензии на протяжении всего периода времени, необходимого для введения в ЖРО всей массы консерванта;
- 2) переход всего объема суспензии, сформированной в емкости хранения ЖРО, в пасту через 1–2 суток.

Экспериментальные исследования показали, что объем добавки бентонитового порошка составляет для испытанных бентонитов от 190 до 290 г на 1 л воды (табл. 3). Введение такого количества бентонита в емкости хранения ЖРО даст общий прирост объема радиоактивных отходов менее чем на 10%. В случае предельного заполнения хранилища к моменту консервации потребуется перед введением бентонитового порошка провести откачку и очистку менее 10% объема отходов, что в 10–30 раз меньше, чем при выполнении консервации хранилища ЖРО с помощью бетона [11]. При размещении хранилища ЖРО выше первого водоносного горизонта и неполном его заполнении вопрос об откачке и очистке ЖРО исключается.

Из всех изученных бентонитов минимальное количество добавки (190 г) потребовалось для асканского образца, что объясняется, вероятно, самым высоким содержанием в нем способных к набуханию минера-

Объем добавки бентонитовой глины, достаточный для образования устойчивой суспензии

Грунты	Объем добавки, г/л жидкости
Бентонит асканский	190
Бентонит зырянский	290
Бентонит дашуковский	200

лов и высоким содержанием глинистых частиц (см. табл. 1). Постепенное введение такого количества бентонита при непрерывном перемешивании быстроходной мешалкой позволяет получить неоседающую суспензию, вязкость которой в течение 8 часов возрастает от 2,5 до 100 спз. Через 10–14 ч после прекращения перемешивания суспензия переходит в пластичную пастообразную массу. Сформировавшаяся паста при ее перемешивании быстроходной мешалкой снова переходит в суспензию с вязкостью несколько выше исходной и не теряет этой способности после выдерживания в течение 5, 10 и 30 суток. Характер изменения вязкости во времени на примере асканского бентонита представлен на рис. 2.

Проницаемость пластичной массы ЖРО с бентонитовым консервантом близка к проницаемости исходного бентонита. Коэффициент фильтрации для паст, полученных из всех изученных литологических разновидностей, не превышает 10^{-6} м/сут, что в тысячу раз

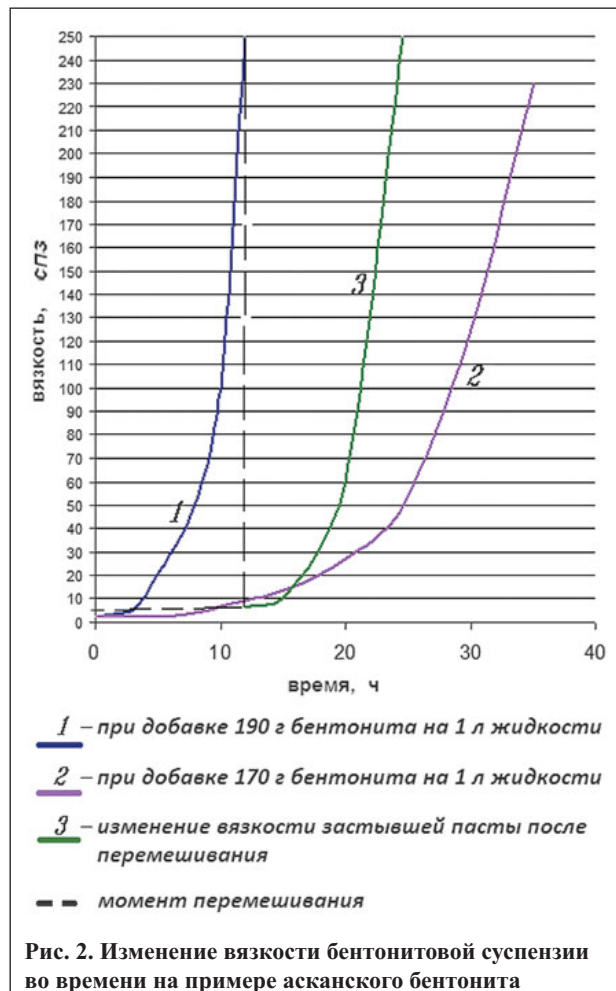


Таблица 4

Материалы и их стоимость при использовании различных способов защиты водных ресурсов от загрязнения для «банки» размером 20×50 м и высотой 5 м (объем 5000 м ³)							
Консервация ЖРО в «банке»			Создание защитного экрана по периметру «банки»				
Материал для консервации	Вес консерванта, т	Стоимость консерванта, млн руб.	Материал для экрана	Вес материала, т		Стоимость материала, млн руб.	
				2-рядный экран	3-рядный экран	2-рядный экран	3-рядный экран
Бентонит	1250	7,5	жидкое стекло, $\gamma = 1,46 \text{ г/см}^3$	645	946		
			+				
			серноокислый алюминий	27	39	8,83	12,86
			+				
			щавелевая кислота	27	39		

меньше коэффициента фильтрации слабопроницаемого бетона. Такое снижение проницаемости радиоактивного материала практически исключает вынос радионуклидов за пределы бетонных емкостей при любом изменении гидрогеологических условий за их пределами.

Для случая размещения ЖРО в металлических емкостях принципиальный подход к консервации отходов с использованием бентонитового порошка остается таким же. Вместе с тем в этом случае следует обратить внимание на состав и свойства грунтовой толщи, вмещающей емкость с ЖРО, так как в результате коррозии могут появиться значительные по площади незащищенные металлом участки. В этой ситуации состав вмещающей грунтовой толщи должен исключать возможность внедрения твердой фазы бентонитовой пасты в поровое пространство грунта. Подобное внедрение исключается, когда вмещающая грунтовая толща представлена глиной, суглинками или супесью [3]. В случае, когда эта толща сложена песчаными отложениями, возможность проникновения бентонитовых частиц в поровое пространство вмещающих отложений определяется критерием Кинга — Буша:

$$d_{10}/D_{95} > 8,$$

где d_{10} — диаметр частиц тампонируемого грунта, меньше которых по размеру в нем содержится 10% частиц, D_{95} — диаметр частиц твердой фазы суспензии, меньше которых по размеру в ней содержится 95% частиц. Если $d_{10}/D_{95} > 8$, песок по периметру емкости с ЖРО должен быть заменен мелкозернистым песком, исключаящим по критерию Кинга — Буша проникновение бентонитовых частиц, либо глинистым материалом. Однако, поскольку время схватывания бентонитовой суспензии в пасту невелико, а сформировавшаяся паста не может внедриться в такой грунт в отсутствие большого градиента фильтрации или приложенного внешнего давления, риск проникновения бентонитовых частиц во вмещающую грунтовую толщу и в этом случае практически равен нулю.

В случае, когда грунтовая толща с вмещающей емкостью с ЖРО представлена гравийно-галечниковыми отложениями, по периметру металлических емкостей должен быть уложен глинистый или песчаный материал, исключаящий возможность внедрения бентонитовых частиц в его поровое пространство, то есть такой, чтобы соблюдалось условие $d_{10}/D_{95} \ll 8$.

Оценка экономической целесообразности использования разработанного способа

Для оценки экономической целесообразности использования разработанного способа защиты водных ресурсов был проведен сравнительный анализ себестоимости материалов на его реализацию путем создания защитного экрана инъекционным способом. Расчеты проведены для емкости с ЖРО размером 50×20×5 м. Результаты сравнительного анализа представлены в табл. 4. Из таблицы следует, что разработанный способ консервации по стоимости материалов в 1,5 раза дешевле создания защитного экрана.


Заключение

Разработан способ консервации ЖРО, размещенных в приповерхностных пульпохранилищах («банках»), позволяющий перевести отходы из жидкого состояния в пастообразное путем постепенного введения в емкость оптимального, предварительно определенного в лабораторных экспериментах количества порошкообразной бентонитовой глины.

Соотношение твердой и жидкой фаз в исходной суспензии, то есть необходимое количество вносимого бентонита-консерванта, зависит от pH, состава и степени минерализации жидкой фазы отходов, а также от минерального и гранулометрического состава порошка бентонитовой глины. Для изученных образцов глин оно составило от 190 до 290 кг на 1 м³ ЖРО.

При правильно подобранном количестве консерванта весь объем сформировавшейся в емкости суспензии переходит в пластичную массу. Изменение вязкопластичных свойств этой массы через заданное время позволяет получить слабопроницаемую однородную пасту с высокой поглощающей способностью ее твердой фазы, что исключает выход радионуклидов за пределы емкости размещения отходов.

В условиях послойного приложения вибрационной нагрузки масса, содержащая радиоактивные отходы, из полученного пастообразного состояния снова переходит в суспензию, свободно перекачиваемую в емкости для последующей транспортировки к месту постоянного размещения.

Предлагаемый способ консервации имеет более низкую себестоимость по сравнению с известными вариантами защиты подземных вод от загрязнения радионуклидами путем создания экранов по внешнему контуру емкости. 

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Грунтоведение / под ред. В.Т. Трофимова. М.: Изд-во МГУ, 2005. 1024 с.
2. Закусин С.В., Крупская В.В., Мацкова Н.В. История осадконакопления в стешевское время (нижний карбон) в районе месторождения Дашковское (Серпуховский район Московской области) // Материалы Всероссийского литологического совещания, посвященного 100-летию Л.Б. Рухина. СПб., 2012. Т. 1. С. 185.
3. Ибрагимов М.Н. Закрепление грунтов цементными растворами // Основания, фундаменты и механика грунтов. 2005. № 2. С. 24–28.
4. Кирсанов Н.В., Сабитов А.А. Генетическая и промышленная классификация месторождений бентонитов СССР // Бентониты. М.: Наука, 1980. С. 17–24.
5. Кулешова М.Л., Данченко Н.Н., Сергеев В.И. и др. Свойства бентонитов как материалов для создания сорбционных барьеров // Вестник Моск. ун-та. Сер. 4. Геология. 2014. № 5. С. 87–95.
6. Сергеев В.И. Инженерно-геологические особенности создания противофильтрационных завес в основании гидротехнических сооружений: дис. ... канд. геол.-мин. наук. М., 1973. 356 с.
7. Сергеев В.И., Степанова Н.Ю., Кулешова М.Л. и др. Способ консервации затопленного хранилища большого объема с использованием бентонитов / Отчет НИР по теме: «Разработка и обоснование технологий создания противофильтрационных и противомиграционных экранов в районах размещения радиоактивных отходов ФГУП ПО «Маяк». 2013. 111 с.
8. Сергеев В.И., Степанова Н.Ю., Кулешова М.Л. и др. Способ консервации приповерхностного хранилища, содержащего радиоактивные отходы, и устройство для его реализации / Патент на изобретение № 2504850, заявл. 15.05.2012, опубл. 20.01.2014, бюл. № 2 G21F 9/24.
9. Сергеев В.И., Степанова Н.Ю., Кулешова М.Л. и др. Устройство для консервации приповерхностного хранилища, содержащего радиоактивные отходы / Патент на полезную модель № 123208, заявл. 15.05.2012, опубл. 20.12.2012, бюл. № 35 G21F 9/22, G21F 9/34.
10. Сергеев В.И., Тейшова И.П. Исследования диффузии компонентов шавелевоалюмосиликатного раствора при инъекционном уплотнении грунтов // Тезисы докладов научно-технического совещания «Инженерная геология Западного Урала». Пермь, 1982. С. 32–35.
11. Старченко В.А., Александров Н.И., Горбач В.Д. и др. Способ консервации подземного хранилища большого объема концентрированными солевыми осадками высокоактивных ЖРО / Патент на изобретение № 2388083, заявл. 20.03.2008, опубл. 27.09.2009, бюл. № 12 G21F 9/00.

Журнал «Инженерная геология»

стал одним из наиболее востребованных печатных изданий в нашем профессиональном сообществе. Сотрудники редакции постоянно работают над дальнейшим повышением качества журнала. Все статьи проходят рецензирование членами редакционной коллегии и рецензентами, научное и литературное редактирование. Вы, читатели, можете внести свой вклад в развитие журнала, присылая в редакцию свои статьи и подписываясь на «Инженерную геологию».

E-mail: info@geomark.ru