

7. Тарасюк Н.В., Стелингис К.И., Гудялис А.Ю. О проявлениях механизма поверхностного самоочищения водоемов после аварии на ЧАЭС. — В сб.: Радиационные

аспекты чернобыльской аварии. СПб: Гидрометеоздат, 1993, т. 1, с. 399—404.

Поступила в Редакцию 18.02.11

УДК 621.039.014

ЭКОЛОГИЧЕСКИЕ АСПЕКТЫ ЛОКАЛИЗАЦИИ ЖИДКИХ РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ В ГЛУБИННОМ ХРАНИЛИЩЕ «СЕВЕРНЫЙ»

Сафонов А.В., Косарева И.М., Ершов Б.Г. (Ин-т физ. химии и электрохимии им. А.Н. Фрумкина РАН, г. Москва), Ревенко Ю.А., Понизов А.В., Леконцева А.А. (Горно-химический комбинат, г. Железногорск)

Глубинное захоронение жидких радиоактивных отходов является одной из немногих в мире промышленно реализованных технологий окончательного удаления радионуклидов из среды обитания человека, которая осуществляется в течение 45 лет на полигонах подземного захоронения Сибирского химического и Горно-химического комбинатов, НИИАРа, а также Кирово-Чепецкого химического комбината. К настоящему времени в подземных хранилищах этих предприятий локализовано около 50 млн м³ отходов [1].

Количество отходов, их состав и токсические свойства оказывают существенное влияние на выбор геологических структур и оценку их пригодности для захоронения. При захоронении жидких радиоактивных отходов в результате распада радионуклидов формируются тепловые и радиационные поля, что приводит к разложению компонентов отходов, образованию газов и является наиболее важным в обеспечении безопасной эксплуатации подземных хранилищ [2].

Экологическая безопасность полигонов глубинного захоронения жидких радиоактивных отходов определяется гарантированной локализацией контролируемых токсичных компонентов (радионуклидов и стабильных токсичных элементов) в пределах установленного горного отвода и предотвращением физико-химических процессов, которые могут привести к их выбросу из нагнетательных скважин. Среди категорий отходов, удаленных в глубинный пласт-коллектор, самый большой объем составляют низкоактивные, поэтому их локализация требует комплексной оценки техногенного воздействия на подземную экосистему [3].

С начала эксплуатации полигонов проводятся исследования в целях изучения взаимодействия отходов с породами и подземными водами поглощающих горизонтов, сорбции и миграции

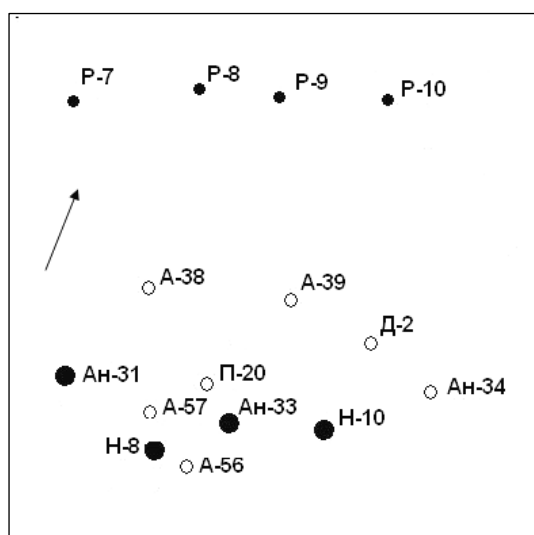
радионуклидов по пласту-коллектору, технологической подготовки отходов к захоронению, газовыделения, а также поведения микроорганизмов в пласте и оценки их влияния на условия захоронения и др. Многолетние наблюдения за эксплуатацией полигонов захоронения низкоактивных отходов показали, что температура в месте их локализации увеличивается на 2—3 °С. Для низкоактивных отходов Горно-химического комбината характерен следующий состав:

α-Излучающие радионуклиды, Бк/дм ³ . . .	<10 ⁴
β-Излучающие радионуклиды, Бк/дм ³ . . .	<10 ⁶
Нитрат натрия, г/дм ³ . . .	<10
Сульфат натрия, г/дм ³ . . .	<2
Ацетат натрия, г/дм ³ . . .	<5
Трибутилфосфат, мг/дм ³ . . .	<2
Гексахлорбутадиен, мг/дм ³ . . .	<2
Поверхностно-активные вещества, мг/дм ³ . . .	<20
pH . . .	8—10

Радиоактивность отходов обусловлена преимущественно ⁹⁰Sr и ¹³⁷Cs, но основная токсичность определяется их солевым составом — нитратными (до 10 г/дм³), ацетатными (до 5 г/дм³) и сульфатными натриевыми солями (до 2 г/дм³).

Водоносный горизонт хранилища жидких низкоактивных отходов «Северный» расположен на глубине 180—220 м. Скорость движения подземных вод составляет 5—10 м/год. Естественная разгрузка полигона осуществляется в сторону рек Канн и Большая Телль, которые впадают в Енисей. Породы полигона сложены слабоцементированными среднезернистыми песчано-глинистыми юрскими породами и изолированы от выше- и нижележащих слоев слабопроницаемыми глинистыми породами. Соле-содержание пластовых вод составляет не более 0,3 г/дм³ [2].

На схеме полигона «Северный» отмечены четыре ныне действующие нагнетательные



Р и с. 1. Схема второго горизонта хранилища радиоактивных отходов «Северный»: Н, Ан — нагнетательные скважины, А, Д, П — наблюдательные, Р — разгрузочные скважины (→ — направление движения пластовой жидкости)

скважины — Н-8, 10, Ан-31, -33 (рис. 1). Через них отходы под давлением поступают в водоносный горизонт, вытесняют пластовую воду из порового пространства и занимают определенный объем, образуя собственно подземное хранилище отходов, по границам которого появляется зона смешения с пластовой жидкостью. Наблюдательные скважины находятся на удалении от контура нагнетания отходов и позволяют контролировать пластовые воды. По ходу естественного движения пластовой жидкости на удалении 800—900 м от нагнетательного контура расположены разгрузочные скважины. С 1998 г. из наблюдательных скважин второго горизонта полигона «Северный» отобрали 110 проб пластовой жидкости и исследовали

радиохимическими, физико-химическими и микробиологическими методами, что позволило получить комплексные данные для моделирования техногенного воздействия низкоактивных отходов на вмещающее пространство пласта-коллектора [4]. Радиохимический анализ выполняли методом γ -спектрометрии на низкофоновом многодетекторном гамма-спектрометре с блоком детектирования на основе полупроводникового детектора GL3830 (США) и β -спектрометрии на спектрометре фирмы RFT-Robotron (Германия). Содержание катионов и анионов определяли аналитическими методами, а также с использованием жидкостной хроматографии и атомно-абсорбционной спектроскопии. Молекулярный азот и углекислый газ измеряли газохроматографическим методом.

Численность микроорганизмов определяли путем посева пластовой воды в жидкие среды методом десятикратных разведений [5]. Рост клеток оценивали по появлению характерных для каждой группы метаболитов, а также микроскопическим методом.

Из табл. 1 видно, что только пробы из скважины А-56 содержали техногенные радионуклиды. Концентрация радионуклидов во всех пробах других скважин не превышала уровня вмешательства.

В табл. 2 приведены результаты анализа нерадиоактивных компонентов отходов в пластовой жидкости, а также усредненный состав подземных вод до начала использования полигона [6]. Данные свидетельствуют о том, что в 2004 г. нитрат-ионы были обнаружены в скважинах А-56, -57 и П-20, при этом в первых двух, которые расположены на расстоянии 45 и 65 м от

Т а б л и ц а 1. Содержание радионуклидов в пробах пластовой жидкости, Бк/дм³

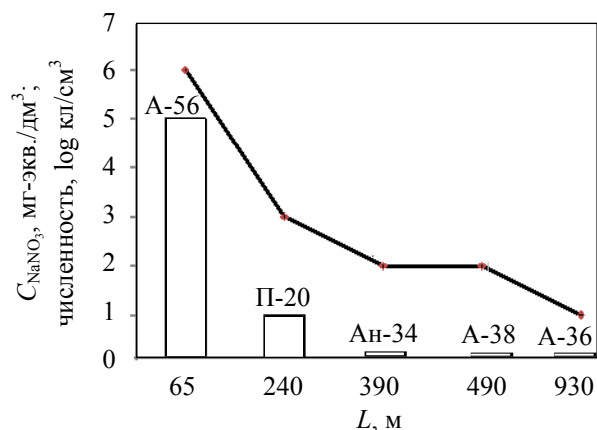
Скважина	Год	$\Sigma\beta$	^{90}Sr	^{137}Cs	^{60}Co	^{144}Ce	^{106}Ru	^{40}K	^{226}Ra	^{232}Th	^{238}U
А-56 (65 м)	2004	82	28,6	6,9	0,17	0,1	1,4	0,36	0,08	0,06	0,08
	2007	93	31,2	7,2	0,17	<0,1	1,4	0,32	0,08	0,06	0,08
П-20 (240 м)	2004	1,5	0,15	0,5	0,12	0,1	1,4	0,32	0,04	0,08	0,07
	2007	1,5	0,14	0,5	0,12	<0,1	1,4	0,32	0,04	0,08	0,07
А-38 (420 м)	2004	1,5	0,15	0,5	0,12	0,1	1,4	0,32	0,06	0,04	0,08
	2007	1,5	0,14	0,5	0,12	0,1	1,4	0,32	0,06	0,04	0,08
А-36 (930 м)	2004	1,5	0,12	0,5	0,12	0,1	1,4	0,36	0,08	0,08	0,06
	2007	1,5	0,11	0,5	0,12	0,1	1,4	0,36	0,08	0,08	0,06
Уровень вмешательства			5	11,1	41	27	20	22	0,5	0,6	3

Т а б л и ц а 2. Компоненты низкоактивных отходов в пробах пластовой жидкости на разном расстоянии от нагнетательного контура в 2004 г., г/дм³

Скважина	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻
А-56	0,13	0,85
А-57	0,24	1,44
П-20	0,09	0,09
Ан-34	0,05	Не обнаружено
А-38	0,03	>>
А-36	0,03	>>
Пластовая вода	0,03—0,05	>>

нагнетательных скважин, в концентрации, сопоставимой с разбавленными низкоактивными отходами. В скважине, расположенной в 200 м, концентрация нитрат-ионов составила 0,06 г/дм³. В пробах из скважин, находящихся на дальнем расстоянии, нитрат-ионов не обнаружено. Превышение содержания сульфат-ионов определено только в скважинах А-56, -57 и П-20. Гексахлорбутадиена, трибутилфосфата и поверхностно-активных веществ в пробах не обнаружено. Таким образом, можно сказать, что основные изменения в пластовой жидкости полигона связаны с увеличением концентрации нитрат- и сульфат-ионов в близлежащих к нагнетательному контуру скважинах.

Попадание нитрат-ионов в пластовую жидкость может приводить к интенсификации процессов микробиологической денитрификации. Микробиологические исследования показали, что количество денитрифицирующих бактерий в пластовой жидкости разных скважин отличается и зависит от удаленности от нагнетательного контура [4, 6]. На рис. 2 видно, что наибольшая



Р и с. 2. Концентрация нитрат-ионов (□) и численность денитрифицирующих микроорганизмов (—) в пробах, отобранных в 2004 г.

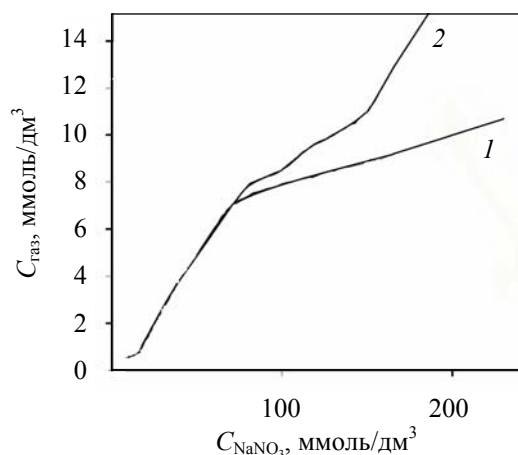
численность бактерий (10⁶ клеток/см³) наблюдается в пробах из скважины А-56, где концентрация нитрата натрия составляла 5,7 мг-экв/дм³ (484 мг/дм³). В пробе из скважины П-20 в 2004 г. концентрация нитрата натрия составила 0,8 мг-экв/дм³ (68 мг/дм³), численность денитрифицирующих микроорганизмов соответствовала 10³ клеток/см³. Наименьшая концентрация нитрат-иона обнаружена в пробах из скважин, расположенных на расстоянии более 300 м от нагнетательного контура (Ан-34, А-38, -36), где число бактерий составляло 10—100 клеток/см³. Это характерно для незагрязненных подземных вод.

Изменение численности денитрифицирующих микроорганизмов в пробах пластовой жидкости, отобранных из горизонта хранилища «Северный», свидетельствует о том, что этот параметр находится в тесной взаимосвязи с концентрацией нитрат-ионов и может быть использован как дополнительный маркер для определения движения отходов в пласте.

При мониторинге хранилища «Северный» обнаружено, что наибольшее техногенное воздействие отходы оказывают на вмещающую среду пласта-коллектора в районе нагнетательных скважин. В пробах из скважин, расположенных на удалении от нагнетательного контура, изменения радиохимических, химических и микробиологических параметров были либо временные, либо минимальные, что в целом свидетельствует о незначительном воздействии низкоактивных отходов на подземную экосистему. Динамика численности денитрифицирующих бактерий выявляла прямую корреляцию с динамикой концентрации нитрат-ионов в пробах пластовой жидкости в тот же период.

Уменьшение концентрации нитрат-ионов за счет микробиологических процессов приводит, с одной стороны, к снижению удельной токсичности отходов, с другой, к образованию газообразных метаболитов, выделение которых может привести к нежелательным процессам — изменению проницаемости пласта, газовой закупорке скважин, выбросу радиоактивной жидкости на поверхность [3].

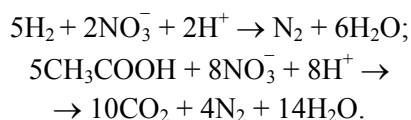
На рис. 3 приведены результаты моделирования процессов биогенного газообразования при поступлении отходов в хранилище. Для этого в изолированные пробы пластовой жидкости



Р и с. 3. Зависимость образования азота (1) и Σ газов (2) сообществом микроорганизмов от концентрации добавленного в пластовую жидкость скважины А-38 нитрата натрия

вносили в разной концентрации нитрат и ацетат натрия — основные макрокомпоненты низкоактивных отходов. Обогащение пробы пластовой воды ацетат- и нитрат-ионами стимулировало жизнедеятельность микроорганизмов и образование газов, в том числе молекулярного азота. При концентрации NaNO_3 до 60 ммоль/дм^3 в составе газов преобладал молекулярный азот, при более высокой концентрации нитрата и ацетата натрия появлялся CO_2 . Денитрификацию наблюдали при содержании нитрата натрия до $1,6 \text{ моль/дм}^3$ (10 г/дм^3), что соответствует неразбавленным отходам. Можно ожидать, что при поступлении органических веществ с отходами в пласт за счет денитрификации токсичность низкоактивных отходов, обусловленная нитрат-ионами, будет снижаться с образованием молекулярного азота.

Денитрификация может осуществляться различными авто- и гетеротрофными микроорганизмами согласно уравнениям [7]



При жизнедеятельности гетеротрофных денитрифицирующих бактерий образованию азота сопутствует также выделение углекислого газа, объем которого примерно в 2—3 раза больше объема азота.

Ранее было установлено, что физико-химические условия хранилища (дозовые нагрузки, температура, pH и содержание нитратов) не препятствуют росту микроорганизмов и образованию газов [8, 9]. Активность биогенного газообразования зависит от поступления нитрат-ионов и органических субстратов с отходами в пласт.

В табл. 3 приведена концентрация нитрат-ионов в пробах пластовой жидкости и количество молекулярного азота, которое может образоваться в результате денитрификации. Оценка сделана в предположении полного разложения присутствующего в отходах нитрата, фиксируемого в данное время и в данном месте. Из расчетов следует, что внутри нагнетательного контура возможно пересыщение пластовой воды образующимися биогенными газами. При повышенном давлении на глубине около 200 м возможно пересыщение по азоту, тогда как содержание углекислого газа, скорее всего, не будет превышать границу пересыщения вследствие большей растворимости и возможности химической фиксации на минералах.

Вследствие смешения и перемещения водных потоков и газов в пласте-коллекторе происходит постепенное перераспределение газов и значительного повышения общего давления не наблюдается. На это указывает анализ растворенного и выделившегося газа из проб пластовой воды на разных участках вне контуров распространения низкоактивных отходов (табл. 4). Для сравнения использованы данные, полученные при освоении полигона в 1968 г. [8]. С начала нагнетания низкоактивных отходов в подземные горизонты (1968—1969 гг.) преобла-

Таблица 3. Расчетное образование молекулярного азота из нитрат-ионов

Скважина	NO_3^- в пробе, г/дм^3				N_2 расчетное, ммоль/дм^3			
	1972 г.	1975 г.	2000 г.	2006 г.	1972 г.	1975 г.	2000 г.	2006 г.
А-56	0,47	0,30	0,33	0,34	3,7	2,4	2,7	2,7
А-57	0,63	0,63	0,87	0,87	5	5	7	7
П-20	0,42	0,29	0,051	0,002	3,3	2,28	0,38	0,001
А-38	0,002	0,002	0,002	0,002	0,001	0,001	0,001	0,001

Таблица 4. Состав газов, растворенных в пробах пластовой жидкости, ммоль/дм³

Скважина	Год	N ₂	CO ₂
А-56	2006	1,8	37,5
П-20	2005	0,37	10,4
А-38	2005	0,3	17,7
А-39	1968	Нет данных	4,58
	2005	0,42	15,6
Д-3	2005	0,51	14,3
Д-4	2005	0,57	13,9
С-6	1963	Нет данных	8,4
	2005	0,38	10,6

дающая часть указанных компонентов трансформировалась в молекулярный азот и углекислый газ. Пространственное распространение газов в подземных горизонтах в направлении движения пластовой жидкости заметно опережает распространение нитратов, и это позволяет предполагать, что постепенная миграция газа за пределы контура нахождения основной части отходов приводит к снижению его содержания до безопасного уровня.

В связи с изменениями в технологическом режиме после 2005 г. происходит значительная корректировка химического и радиохимического состава удаляемых отходов, поэтому для успешного продолжения эксплуатации глубоких хранилищ данная работа требует продолжения.

Радионуклиды техногенного происхождения мигрируют на расстояние не более 200 м от зоны нагнетания. В подземных горизонтах полигона «Северный» обнаружено разнообразное микробное сообщество, в состав которого входят представители рода *Pseudomonas*, известные способностью к денитрификации. Численность микроорганизмов в природных пластовых водах была низка и возрастала в зоне дисперсии жидких отходов. Денитрифицирующие бактерии, выделенные из глубоких горизонтов, были способны переводить основную массу нитрат-ионов в молекулярный азот в интервале рН, минерализации, температуры и уровня радиоактивности, характерных для хранилища низкоактивных отходов. Уменьшение концентрации нитрат-иона снижает опасность локализации жидких радиоактивных отходов. Появление локальных участков пласта-коллектора с повы-

шенным содержанием растворенных газов биогенного происхождения не представляет опасности при эксплуатации полигонов глубинного захоронения низкоактивных отходов вследствие их равномерного распределения по пласту.

Авторы выражают благодарность Т.Н. Назиной (Институт микробиологии им. С.Н. Виноградского РАН) за помощь в микробиологических исследованиях и сотрудникам Горнохимического комбината за помощь в отборе проб и химических исследованиях.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Рыбальченко А.И., Пименов М.К., Костин П.П. и др. Глубинное захоронение радиоактивных отходов. М.: ИздАТ, 1994. 256 с.
2. Rybal'chenko A.I., Pimenov M.K., Kostin P.P. et al. Deep Injection Disposal of Liquid Radioactive Waste in Russia. Richland: Battelle Press, 1998. 206 p.
3. Косарева И.М., Савушкина М.К., Кабакчи С.А. и др. Оценка безопасности жидких радиоактивных отходов при долговременном нахождении в глубоких хранилищах. — Атомная энергия, 2006, т. 100, вып. 2, с. 86—92.
4. Косарева И.М., Сафонов А.В., Савушкина М.К. и др. Физико-химический и микробиологический контроль полигонов глубинного удаления жидких радиоактивных отходов. — Там же, 2007, т. 103, вып. 2, с. 106—112.
5. Koch A. Estimation of the most probable number with a programmable pocket calculator. — Appl. Environ. Microbiol., 1982, v. 43, p. 488—490.
6. Косарева И.М., Сафонов А.В., Ершов Б.Г. и др. Вопросы оценки биогенного преобразования состава РАО, инкорпорированных в глубокий пласт-коллектор. — Вопросы радиационной безопасности, 2007, № 3, с. 50—57.
7. West J., McKinley I., Chapman N. Microbes in deep geological systems and their possible influence on radioactive waste disposal. — Rad. Waste Management Nuclear Fuel Cycle, 1982, v. 3, p. 1—15.
8. Сафонов А.В., Косарева И.М. Прогностическая оценка возможности биогенного газообразования в глубоких хранилищах РАО. Тезисы докл. конф. «Радиохимия'2009», с. 341—342.
9. Назина Т.Н., Сафонов А.В., Косарева И.М. и др. Микробиологические процессы в глубоком хранилище жидких радиоактивных отходов «Северный». — Микробиология, 2010, т. 79, с. 551—561.

Поступила в Редакцию 21.01.11