

ОСОБЕННОСТИ ПОВЕДЕНИЯ РАДИОНУКЛИДОВ В БЛИЖНЕЙ ЗОНЕ ХРАНИЛИЩ РАО

RADIONUCLIDE BEHAVIOUR IN THE NEAR ZONES OF RADWASTE STORAGE FACILITIES

В.В. МАРТЬЯНОВ, к.т.н.
(ГУП МосНПО «Радон»)



V.V. MARTYANOV, *Candidate of Technical Science*
(SUE SIA Radon Moscow)

■ За годы существования предприятий, эксплуатирующих хранилища радиоактивных отходов приповерхностного типа, был накоплен достаточный научный и практический опыт по обращению с РАО, изучению поведения радионуклидов в окружающей среде.

■ Over the operation years of near-surface radioactive waste storage facilities, sufficient scientific and practical experience was acquired of radwaste management and studies of radionuclide behaviour in the environment.

Участки для размещения приповерхностных хранилищ радиоактивных отходов были определены в начале 1960-х годов. При их выборе в основном руководствовались принципом предотвращения попадания радионуклидов через зону аэрации в первый от поверхности водоносный горизонт за счет вертикального инфильтрационного потока. Исходя из этого критерия, большинство приповерхностных хранилищ было приурочено к вмещающим породам, в основном глинистым, обладающим низкой водопроницаемостью и большой сорбционной емкостью. Таким образом, данным породам отводилась роль природного защитного барьера. До сих пор, по истечении 50 лет эксплуатации хранилищ РАО, они достаточно надежно выполняют эту функцию.

На большинстве площадок объем хранящихся отходов постепенно достигает 80-90% от проектных значений. Очевидно, что в ближайшие 10-20 лет часть из них должна вступить в стадию вывода из эксплуатации.

МОНИТОРИНГОВЫЕ ИССЛЕДОВАНИЯ

Значительная роль при выводе из эксплуатации хранилищ РАО отводится проведению мониторинговых исследований, то есть изучению поведения радионуклидов в окружающей среде и принятию корректирующих решений для устранения или предотвращения их избыточного выхода в окружающую среду на основе полученных данных. В частности, в НП 069-06 и НП 055-04 отмечается, что в случае выявления отступлений от конечного состояния площадки размещения РАО, приводящих к снижению уровня безопасности, должны быть выполнены все практически осуществимые мероприятия, направленные на обеспечение безопасности, в том числе меры по снижению миграции радионуклидов, дезактивация грунта, очистка поверхностных и подземных вод и т.д. В конечном итоге, от характера и особенностей распределения радионуклидов во вмещающих породах будет зависеть объем и продолжительность рекультивации.

Locations for near-surface radioactive waste storage facilities were chosen in the early 1960s. These were primarily selected following the principle of prevention of radionuclides ingress through the aeration zone to the aquifer closest to the surface by vertical hydrodynamic flow. Based on that criterion, most near-surface storage facilities were located in areas with mostly clayey host rock, which is weakly permeable and has a high sorption capacity. Thus, the rock was expected to act as a natural protection barrier. And even after 50 years of operation of the radwaste storage facilities it still acts in this function with sufficient reliability.

The capacities of most of these sites, however, are now about 80-90% full. Obviously, some of them will have to go into decommissioning within the nearest 10-20 years.

MONITORING RESEARCH

A prominent role in the decommissioning process on radwaste storage facilities is played by monitoring research, i.e. studies of behaviour of radionuclides in the environment, and implementation of corrective measures to remedy or prevent excessive release of radionuclides into the environment on the basis of collected data. In particular, NP 069-06 and NP 055-04 note that should there be indication of deviation from the prescribed end state of the radwaste site potentially leading to a compromise of safety, all practically feasible measures must be implemented to ensure safety, including measures to reduce migration of radionuclides, decontamination of soil, treatment of surface and ground waters, etc. Ultimately, it is the pattern and specific features of the distribution of radionuclides in host rock that will define the scope and duration of the clean-up effort. Natural and climatic factors largely influence the behaviour of radionuclides.

Many years of experience with operation of near-surface radwaste storage facilities have demonstrated that the most important process resulting in the release of radionuclides into the environment is transfer by liquid phase during surface and underground (filtration and infiltration) flows. Transfer by gas and dust is not significant and is usually only considered for those cases when storage facilities

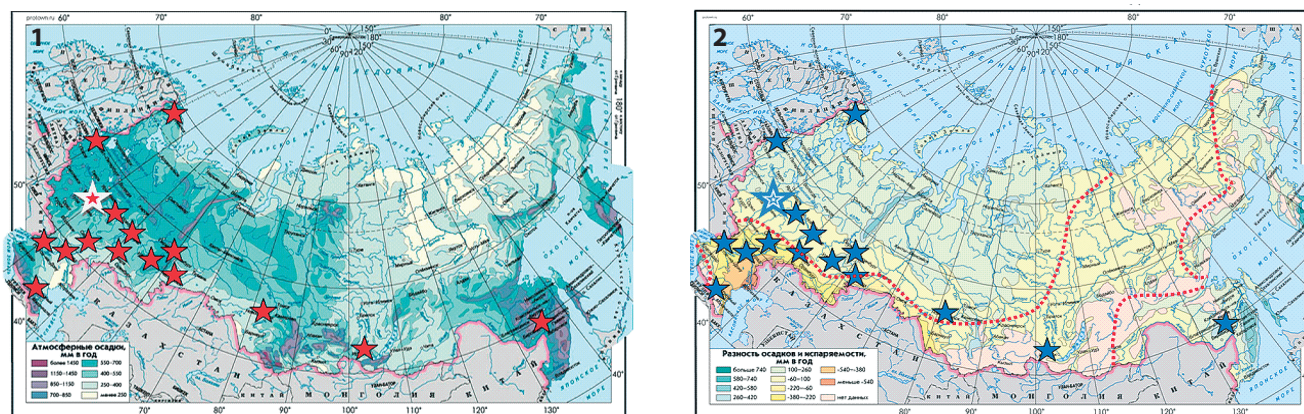


Рис. 1. Карты выпадения (1) и дефицита (2) атмосферных осадков (красной пунктирной (балансовой) линией отмечено примерное среднегодовое равенство выпадения и испарения атмосферных осадков) / Fig. 1. Maps of atmospheric precipitation fall-out (1) and deficit (2) (the red dashed (balance) line denotes the approximate boundary at which average annual atmospheric precipitation approximately equals evaporation)

онных работ. В значительной степени на поведение радионуклидов повлияют природно-климатические факторы.

Многолетний опыт эксплуатации приповерхностных хранилищ РАО показал, что наиболее значимым путем выхода радионуклидов в окружающую среду является их перенос с жидкой фазой в процессах поверхностного и подземного (фильтрационного и инфильтрационного) стоков. Перенос с газом и пылью не является существенным и обычно рассматривается для случаев, когда участки размещения хранилищ территориально находятся в природно-климатических зонах с дефицитом выпадения атмосферных осадков. На рисунке 1 на фоне карт распределения и дефицита выпадения атмосферных осадков показаны площадки размещения приповерхностных хранилищ РАО.

Рассмотрим поведение радионуклидов во вмещающих породах для природно-климатических условий, характеризующихся преобладанием выпадения атмосферных осадков над испарением.

Очевидно, что характер фильтрационного или инфильтрационного потока, переносящего радионуклиды, определенным образом должен сказаться и на перераспределении радионуклидов в толще вмещающих пород. Логично предположить, что длина перемещения ореола радионуклидов по хорошо проницаемым прослоям должна преобладать над перемещением в слабопроницаемых породах.

Для определения особенностей формирования ореолов распространения радионуклидов специалисты ГУП МосНПО «Радон» провели исследования по изучению изменения удельной активности и ее распределения в толще вмещающих пород ближней зоны хранилищ РАО.

Информация об изменении удельной активности была получена при проведении буровых работ, которые сопровождались отбором проб вмещающих пород (шаг отбора – 0,25 м) и жидкой фазы.

По полученным результатам строились эпюры распределения радионуклидов по вертикали (по глубине). Учитывая то, что более 90% радиоактивных отходов в хранилищах представлено ^{137}Cs , основное внимание было уделено распределению во вмещающих породах именно этого радионуклида.

are located in climatic areas with scarce atmospheric precipitation. Figure 1 illustrates the locations of near-surface radwaste storage facilities against the background maps of atmospheric precipitation distribution and deficit.

Consider the behaviour of radionuclides in host rock for the climatic conditions whereby atmospheric precipitation prevails over evaporation.

Obviously, the patterns of filtration or infiltration flows that carry the radionuclides must also produce a certain impact on the re-distribution of radionuclides inside host rock. It would be logical to assume that the distance travelled by radionuclides through well-permeable layers must be greater than that through weakly-permeable.

In order to study the specifics of how radionuclide distribution 'haloes' are formed, specialists of Radon Moscow performed research of variations in specific activity values and their distribution through host rock in the near zones of radwaste storage facilities.

Information about changes of specific activity levels was collected by drilling and subsequent collection of samples of host rock (sampling pitch 0.25 m) and liquid phase.

The results were used to build diagrams representing vertical (through-depth) distribution of radionuclides. Considering that more than 90% of radioactivity in the storage facilities is represented by ^{137}Cs , the focus of studies was on the distribution of this radionuclide in host rock.

ROCK PERMEABILITY AND RADIONUCLIDE ACTIVITY

As indicated by data that has been collected (over 800 measurements), the vertical pattern of host rock contamination with ^{137}Cs is very non-uniform. But in general, the following trend of recurrence of minimal significant specific activity excess was observed.

For practically every storage facility, the trend was to observe most of ^{137}Cs contamination within the upper measurement interval (0-1 m), which characterises the periodic re-surfacing of radionuclide-containing phase that occurred in the 1970s-1990s [1, 2, 3] (the so-called Bath Flooding effect). Also, numerous cases were observed of radionuclides surfaces through well-permeable rock, as well as in contact between the storage facilities and surrounding rock, between the bottom of the storage facilities and host rock.

ПРОНИЦАЕМОСТЬ ПОРОД И АКТИВНОСТЬ РАДИОНУКЛИДОВ

Как следует из полученных данных (более 800 определений), загрязнение вмещающих пород ¹³⁷Cs с глубиной носит весьма неравномерный характер. Но в целом можно отметить следующую тенденцию повторяемости значений превышения уровня минимально значимой удельной активности (МЗУА).

Практически для каждого хранилища отмечена приуроченность загрязнения ¹³⁷Cs к верхнему интервалу опробования (0-1 м), что характеризует периодически повторявшийся в 1970-1990 годах [1, 2, 3] выход нуклидсодержащей жидкой фазы на поверхность (эффект Bath Flooding). Отмечены также многочисленные выходы радионуклидов через хорошо проницаемые породы, а также на участках сочленения блоков хранилищ и контактной зоны, между днищем хранилищ и вмещающими породами.

В целом, учитывая послойный характер перемещения жидкой фазы во вмещающих породах, можно отметить, что пики загрязнения приурочены к наиболее хорошо водопроницаемым участкам ближней зоны хранилищ.

В подтверждение к вышесказанному на рисунке 3 приведен профиль распределения мощности экспозиционной дозы (МЭД) в ближней зоне по направлению от хранилища в сторону ближней зоны, построенный по четырем скважинам.

Из полученных данных следует, что распределение МЭД носит неравномерный характер. Часть активности приурочена к верхнему интервалу (0-1 м), о чем было сказано выше. Другие ореолы – к различным интервалам, соответствующим прослоям с повышенной водопроницаемостью. Как следует из рисунка 3, расстояние проникновения ореола загрязнения в ближней зоне достигает нескольких метров.

ИЗМЕНЕНИЕ ЗНАЧЕНИЙ pH КАК КРИТЕРИЙ ВЫХОДА РАДИОНУКЛИДОВ В ОКРУЖАЮЩУЮ СРЕДУ

Жидкая фаза также анализировалась для определения особенностей формирования ореолов загрязнения ¹³⁷Cs.

При проведении многолетних мониторинговых исследований изменения удельной активности жидкой фазы (более 400 замеров) обнаружено, что повышение величин pH до щелочных значений (с pH=7 до pH=9-13) в ближней зоне хранилищ некоторым образом связано с увеличением значений удельной активности жидкой фазы.

Причина увеличения значений pH в ближней зоне хранилищ РАО хорошо известна, она связана с процессами разрушения и выщелачивания бетона и цементной матрицы хранилищ [4]. Изменения, происходящие в бетоне и матрице, выражены в карбонатизации, то есть растворении Ca(OH)₂ и кристаллогидратов с последующим образованием кальцита (CaCO₃).

Карбонатизация – типичная причина разрушения бетона. Обычно одновременно протекает сразу два коррозионных процесса: механическое разрушение из-за растворения Ca(OH)₂ слабо минерализованными водами (он имеет максимальную растворимость по сравнению с другими продуктами твердения цемента), а так-

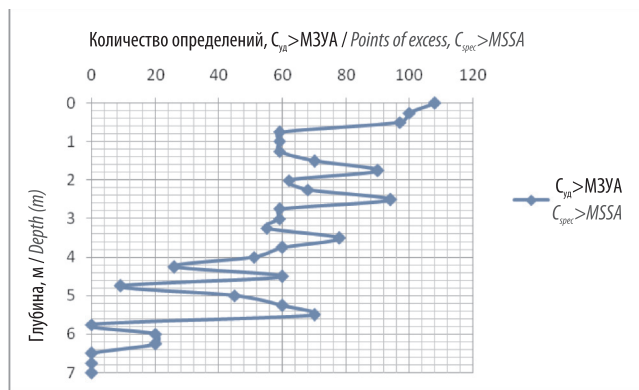


Рис. 2. Повторяемость значений превышения МЗУА по глубине ближней зоны хранилищ РАО / Fig. 2. Recurrence of minimal significant specific activity excess across vertical section of the radwaste storage facility near zones

In general, considering the layered nature of liquid phase movement through host rock, it should be noted that peak values of contamination were observed in the best-permeable rock within the near zones of storage facilities.

To further reinforce the above conclusion, figure 3 illustrates exposure dose rate distribution profile in the near zones away from the storage facilities and toward the near zone, built using information from four test wells.

As follows from acquired data, the distribution of exposure dose rate is non-uniform. Some of the activity is found in the top interval (0-1 m), as mentioned above. Other contamination haloes were observed within different intervals, which correspond to layers with higher water permeability. As seen from figure 3, the distance to which the contamination halo propagates to the near zones is within a few metres.

pH VARIATION AS A PARAMETER OF RADIONUCLIDE ESCAPE INTO ENVIRONMENT

Liquid phase was also analysed to study the specific features that lead to formation of ¹³⁷Cs contamination haloes.

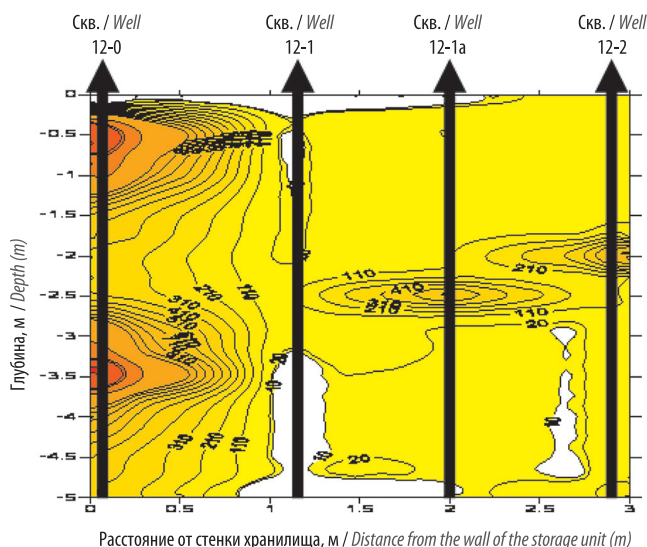


Рис. 3. Распределение МЭД в ближней зоне хранилища ТРО / Fig. 3. Distribution of exposure dose rate in the near zones of solid waste storage facilities

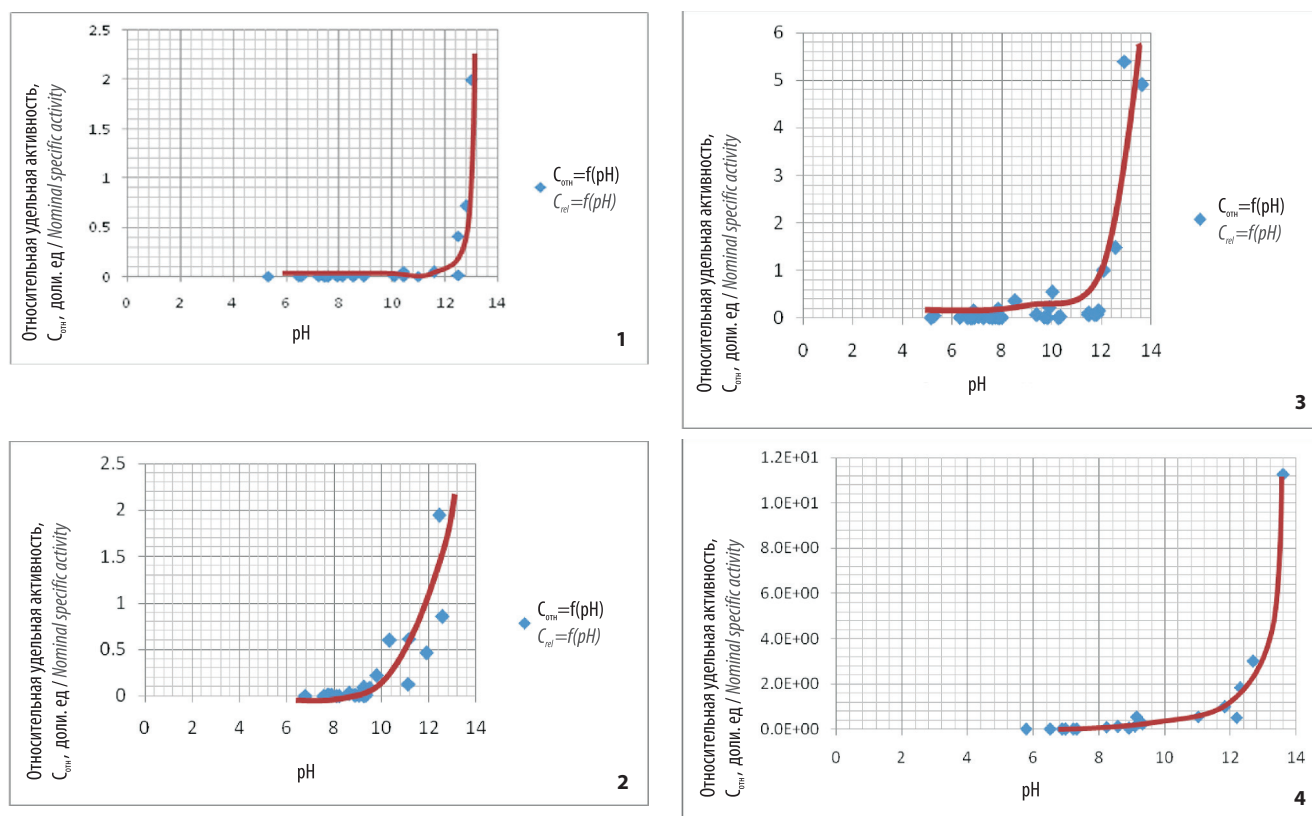


Рис. 4. Графики зависимостей $C_{отн} = f(pH)$ для хранилищ, введенных в эксплуатацию в 1961 (1), 1975 (2), 1981 (3) и 1993 (4) годах
 Fig. 4. Diagrams showing the function of $C_{отн} = f(pH)$ for waste storage facilities commissioned in 1961 (1), 1975 (2), 1981 (3) and 1993 (4)

же разрушение цементного камня углекислыми водами. Природные воды часто насыщены углекислотой в количестве 15-20 мг/л, что увеличивает скорость растворения бетона и способствует переходу в жидкую фазу растворимого бикарбоната кальция ($Ca^{2+} + 2HCO_3^-$) по цепочке: $Ca(OH)_2 + CO_2 = CaCO_3 + H_2O$, $CaCO_3 + CO_2 + H_2O = Ca(HCO_3)_2$. В этих условиях значение pH водного раствора, заполняющего поры цементного камня, составляет 12-13.

Таким образом, появление щелочных растворов в ближней зоне хранилищ РАО является сигналом их разрушения, активизации процессов выщелачивания и формирования условий для выхода радионуклидов в окружающую среду.

Взаимосвязь изменения pH и появления радионуклидов (^{137}Cs) в ближней зоне каждого хранилища выражалась по-разному. В частности, при одних и тех же значениях повышения pH, например, до pH=12, в разных объектах удельная активность жидкой фазы составляла от единиц и десятков до нескольких тысяч Бк/л.

Для оценки указанной взаимосвязи были построены графики, по которым определялось изменение удельной активности в зависимости от значений pH. Учитывая различные сроки ввода объектов в эксплуатацию, а также разные значения удельной активности жидкой фазы, сформировавшейся в хранилищах и ближней зоне, строились графики изменения относительной удельной активности отдельно для хранилищ, введенных в эксплуатацию в 1960-х, 1970-х и 1980-1990-х годах.

Относительная удельная активность $C_{отн}$ рассчитывалась как частное от деления значений удельной ак-

Over many years of monitoring research to track any changes in specific activity of liquid phase (more than 400 measurements), it was established that alkaline pH values (pH=7 to pH=9-13) in the near zones of storage facilities were related in some way to increased levels of liquid phase specific activity.

The reasons for growing pH values in the near zones of radwaste storage facilities are well-known: they are associated with the deterioration and leaching processes occurring in concrete and cement matrix of the storage facilities [4]. The changes that occur in concrete and matrix are manifesting themselves through carbonatisation, which means dissolution of $Ca(OH)_2$ and crystallohydrates with subsequent formation of calcite ($CaCO_3$).

Carbonatisation is a typical cause for deterioration of concrete. Usually, two corrosion processes occur at the same time: mechanical deterioration as a consequence of dissolution of $Ca(OH)_2$ in low mineralised waters (it has the highest solubility as compared to other products of cement solidification), as well as deterioration of cement stone by carbonic acid waters. Natural waters are often saturated with carbon dioxide, to 15-20 mg/litre, increasing the rate of concrete dissolution and facilitating transfer of soluble calcium bicarbonate to liquid phase ($Ca^{2+} + 2HCO_3^-$) following this chain of events: $Ca(OH)_2 + CO_2 = CaCO_3 + H_2O$, $CaCO_3 + CO_2 + H_2O = Ca(HCO_3)_2$. In such conditions, the pH value of the water solution that fills the pores in cement stone becomes 12-13.

Thus, appearance of alkaline solutions in the near zones of radwaste storage facilities signals that deterioration processes are occurring and leaching is going on, creating

тивности жидкой фазы, сформировавшейся в ближней зоне хранилищ, на значения удельной активности жидкой фазы в хранилище РАО.

На рисунке 4 приведены графики зависимостей $C_{отн} = f(pH)$ для хранилищ, пущенных в эксплуатацию в разные десятилетия XX века.

Как следует из построенных графиков, зависимости $C_{отн} = f(pH)$ представляют собой экспоненты, имеющие отчетливые приращения (резкое увеличение значений) – от значений $pH=11-12$ и до $pH=14$.

Таким образом, значение $pH=11-12$ является своеобразным «маркером», характеризующим момент выхода радионуклидов ^{137}Cs в окружающую среду. Это имеет важное прикладное значение. Отбор проб воды, их подготовка, проведение спектрометрического и радиохимического анализов – достаточно длительные и трудоемкие мероприятия, затрудняющие оперативное реагирование на изменение геохимической и радиометрической обстановки. Наличие критерия изменения pH позволяет сократить количество отбираемых проб и уделить внимание только имеющим значение $pH > 11$. Процесс определения значений pH (лакмусовая бумага, электронный pH -метр) не занимает много времени, что дает возможность быстро реагировать на происходящие изменения.

Помимо этого, данный критерий показывает конкретные участки выхода радионуклидов в окружающую среду по хорошо проницаемым слоям, показывая, тем самым, направление основного фильтрационного потока, что может упростить процесс моделирования и прогнозирования миграции радионуклидов.

В данной статье приведены результаты только незначительной части исследований, предшествующих выводу из эксплуатации пунктов захоронения радиоактивных отходов. Эти исследования связаны с изучением поведения радионуклидов в естественном геологическом барьере, который, в отличие от большинства инженерных барьеров, к моменту вывода из эксплуатации выполняет свои заявленные защитные функции. Но даже этой части исследований достаточно, чтобы в общих чертах определить основные направления рекультивации площадки: очистка поверхности или недр, регулирование подземного или поверхностного стока и т.д. Конечно, приоритет выбора тех или иных мероприятий будет зависеть от начальных природно-климатических условий размещения площадок хранилищ РАО.

Литература / References:

1. Соболев И.А. Охрана окружающей среды при обезвреживании радиоактивных отходов / И.А. Соболев, И.П. Коренков, Л.М. Хомчик, Л.М. Проказова. – М.: Энергоатомиздат, 1989.
2. Мартыанов В.В. Формирование фильтрационных полей вблизи размещения приповерхностных хранилищ радиоактивных отходов / В.В. Мартыанов // – Атомная энергия. – 2008. – Т. 105, вып. 6 – С. 334-338.
3. Мартыанов В.В. Сценарии возможной миграции радионуклидов на участках размещения приповерхностных хранилищ радиоактивных отходов / В.В. Мартыанов // Обращение с радиоактивными отходами: Проблемы и решения: сб. ст. – Сергиев Посад, 2010. – С. 74–79.
4. Илюхина Н.С. Оценка состояния отвержденных форм РАО / Н.С. Илюхина, В.В. Мартыанов, Е.И. Веселов, Т.Н. Лащенко, С.В. Юдинцев // Обращение с радиоактивными отходами: Проблемы и решения: сб. ст. – Сергиев Посад, 2010. – С. 47-52.

the conditions for radionuclides to escape into the environment.

The exact relation between variation in pH and release of radionuclides (namely, ^{137}Cs) within the near zone of each storage facility was different. In particular, with the same elevated pH value, for example, $pH=12$, specific activity of liquid phase on various sites ranged from several or several dozens to thousands of Bq/litre.

In order to assess the relationship, graphs were built to showing variation in specific activity as a function of pH . Considering the different dates of commissioning, as well as different values of specific activity in liquid phase that have occurred in the storage facilities and their near zones, graphs of specific activity variation were built separately for storage facilities commissioned in the 1960s, 1970s and 1980s-1990s.

Relative specific activity C_{rel} was calculated as the fraction obtained by dividing the value of specific activity in liquid phase that has occurred in the near zones by the value of specific activity in liquid phase inside the waste storage facility.

Figure 4 illustrates dependency of $C_{rel} = f(pH)$ for storage facilities commissioned in the different decades of the XX century.

As evident from the charts, the $C_{rel} = f(pH)$ functions are exponential, with clear and sharp increases from $pH=11-12$ to $pH=14$.

Thus, pH value of 11-12 is a marker of sorts that signals the beginning of radionuclides (^{137}Cs) release into the environment. This conclusion is of particular applied value. Collection of water samples, their preparation, spectrometry and radiochemical analysis are rather lengthy and labour-consuming processes that make it difficult to respond promptly to changes in geochemical and radiological conditions. Availability of a pH -based criterion allows reducing the number of samples to be collected and focus on only those of them that have the pH reading over 11. The pH measurement process (by litmus paper or electronic pH -meter) does not take a lot of time, meaning that steps can be taken rapidly to respond to changes as they occur.

In addition, this criterion can be used to identify exact locations where radionuclides escape into the environment through well-permeable layers, thus indicating the direction of the main filtration flow, which simplifies the process of modelling and predicting radionuclides migration.

This article only covers the results of a small fraction of research that precedes decommissioning of radioactive waste storage locations. The research is associated with studies of radionuclide behaviour in a natural geological barrier, which, unlike most engineered barriers, still fulfils its protection function by the time of decommissioning. Furthermore, even this research is sufficient to identify in general the main directions for the performance of suite remediation activities: clean-up of surfaces or sub-soil, control of surface and underground water flows, etc. Of course, the precise selection of priority measures will depend on the initial climate conditions at the specific radwaste storage sites.