

Первые данные об эффективности консервации приповерхностного хранилища радиоактивных отходов бывшего радиевого промысла

© Н. Г. Рачкова*

Институт биологии Коми НЦ УрО РАН, 167892, Сыктывкар, ул. Коммунистическая, д. 28;

** e-mail: rachkova@ib.komisc.ru*

Получена 09.04.2018, после доработки 19.06.2018, принята к публикации 26.06.2019

УДК 546.44

На основе сравнительной динамики поступления ^{226}Ra в реку и грунтовые воды подтверждена эффективность консервации хранилища радиоактивных отходов (РАО) бывшего радиевого промысла в Республике Коми. Показано, что растворению сосредоточенных в РАО соединений загрязнителей способствовала высокая минерализация поверхностных и грунтовых вод на территории хранилища РАО. За счет притока растворенного в воде радионуклида и содержащих его взвесей с размерами частиц 0.45–3.5 и свыше 3.5 мкм в акватории техногенного влияния объемная активность ^{226}Ra повышалась в 1.3–3 раза по отношению к фоновым значениям. Изоляция РАО путем сооружения физических и геохимических (на основе бентонитовых глин) барьеров на пути миграции радионуклида позволила снизить поступление ^{226}Ra в гидрографическую сеть. После консервации РАО в районе исследования наблюдается тенденция к улучшению качества грунтовых вод по содержанию радионуклида и его химических аналогов, что подтверждается результатами экотоксикологической оценки дренажных вод объекта. Участки акватории с повышенным содержанием ^{226}Ra приурочены к местам слияния с рекой мелиоративных канав других промплощадок промысла.

Ключевые слова: радий-226, вода, донные отложения, формы нахождения, консервация радиоактивных отходов.

DOI: 10.1134/S0033831119020151

Природные изотопы Ra являются высокорadioактивными химическими аналогами щелочноземельных элементов и подобны им по интенсивности миграции в водных средах. Это сходство обуславливает активное включение радионуклидов в процессы трансформации и распределения макроэлементов в абиотических компонентах техногенно нарушенных экосистем и в метаболизм живых организмов, что определяет необходимость прогнозирования поведения и систематического контроля содержания Ra в объектах окружающей среды территорий радиоактивного загрязнения. Наиболее актуальна эта проблема для районов нефтедобычи, участков расположения отвалов горных выработок и неэксплуатирующихся месторождений, промплощадок действующих и бывших редкометалльных и радиохимических производств. Выбор способа реабилитации таких территорий осуществляется с учетом особенностей радиоактивного загрязнения – его уровня и радионуклидного состава, рельефа, площади и перспектив дальнейшего использования территории, ее удаленности от селитебной зоны, гидрогеологической обстановки.

Большинство методов дезактивации радиоактивно загрязненных почв и грунтов ориентированы на восстановление территорий небольшой площади или очистки незначительных объемов материала [1, 2], а эффективность такой реабилитации иссле-

дована преимущественно для искусственных радионуклидов и урана. Применительно к радию хорошо изучена результативность насыпного способа реабилитации, заключающегося в размещении чистого материала на поверхности радиоактивно загрязненного грунта. Установлено [3], что это позволяет ослабить радиационный фон, снизить миграционную способность радионуклида и тем самым ограничить его негативное воздействие на живые организмы. Однако положительный эффект продлевается лишь на 4–5 лет [4]. Известен также опыт ремедиации загрязнений ураном, радием и цезием на небольшой площади в НПО «Радон». В этом случае был успешно использован электрокинетический метод, для чего создана установка реагентной очистки грунтов с производительностью обработки 1.5 м³ исходного материала за смену. Использование метода позволило снизить активность загрязненных грунтов до 200 раз [5].

Целью настоящей работы является сравнительное исследование закономерностей поступления ^{226}Ra в речную экосистему (р. Ухта, Республика Коми) до и после консервации хранилища радиоактивных отходов (РАО) бывшего радиевого промысла, осуществленной путем сооружения геохимических барьеров на пути миграции радионуклида.

Объекты и методы исследований

Приповерхностное хранилище РАО радиохимического предприятия, занимавшегося добычей руды из минерализованных пластовых вод и урансодержащих руд с 1931 по 1956 гг., было расположено на таежном участке пойменно-террасового типа площадью около 4.5 га с перепадом высот между элементами ландшафта до 7 м. Верхняя терраса и ее склон преимущественно формировались за счет отсыпки поверхности радиоактивными материалами. На них с целью снижения радиационного фона и ограничения прямого контакта с живыми организмами в 1962 г. был насыпан слой песчано-гравийной смеси толщиной около 50 см (насыпной метод дезактивации), который с течением времени вследствие плоскостного смыва и других склоновых процессов, выноса радионуклидов растениями потерял эффективность и перестал выполнять защитные функции. Уровень γ -фона на дневной поверхности территории в преддверии консервации хранилища РАО достигал 3000 мкР/ч. Максимальная удельная активность ^{226}Ra в складированных низкоактивных РАО составляла около 300 Бк/г, U – до 1400 Бк/кг [6]. Нижний заболоченный элемент ландшафта, занимавший половину общей площади комплекса, стал очагом вторичного загрязнения прилегающей территории радием [7]. Ручьи, бравшие начало у основания верхней террасы, имели прямой сток в р. Ухта. Расстояние между рекой и границей участка складирования опасных отходов составляло не более 10 м. Такое несоответствие условий хранения РАО современным требованиям радиационной безопасности обусловило включение хранилища РАО в перечень объектов негативного наследия прошлой промышленной деятельности и проведение реабилитации его территории способом консервации.

Для оценки эффективности мероприятия до и после его проведения отбирали воду из поверхностной толщи временных водоемов промплощадки или с глубины 20–50 см речного потока, после чего образец последовательно пропускали через фильтры «белая лента» и «Владипор» ФМАЦ 0.45. Рассчитывали долевое распределение объемной активности Ra между крупной взвесью (дополнительно к валовому содержанию), взвешенным веществом (0.45–3.5 мкм) и водорастворенной компонентой [6].

Ниже перечислены пункты наблюдения на фоновом и импактном участках русла р. Ухта.

1 – фоновый участок на р. Ухта в 26 км выше по течению от импактного створа; 2 – участок русла р. Ухта в створе стоков из дренажных канав быв-

шего радиохимического завода, 1.2 км выше по течению от хранилища РАО; 3 – участок русла р. Ухта в створе стоков из дренажных канав бывшего радиохимического завода, 1 км выше по течению от хранилища РАО; 4 – участок русла р. Ухта в 0.5 км выше по течению от хранилища РАО (объекта консервации), сток мелиоративных канав одного из радиохимических заводов; 5 – импактный участок русла р. Ухта в 50 м выше по течению от объекта консервации; устье ручья у юго-западной окраины хранилища РАО; 6 – импактный участок русла р. Ухта напротив стока из дренажной системы объекта консервации хранилища РАО; 7 – импактный участок русла р. Ухта в 0.3 км ниже по течению от объекта консервации; 8 – импактный участок русла р. Ухта в 2 км ниже по течению от объекта консервации, сток из очистных сооружений поселка; 9 – импактный участок русла р. Ухта в 2.5 км ниже по течению от объекта консервации, напротив устья р. Ярега; 10 – импактный участок русла р. Ухта, в 4.5 км ниже по течению от объекта консервации, устье притока р. Чуть; 11 – импактный участок русла р. Ухта в 4.8 км ниже по течению от объекта консервации, устье ручья с территории бывшего радиохимического завода; 12 – импактный участок русла р. Ухта в 8 км ниже по течению от объекта консервации.

Донные отложения реки отбирали из слоев 0–10 и 10–20 см, высушивали при 25°C, просеивали через сито с размером ячеек 1 мм. Затем для оценки геохимической подвижности ^{226}Ra последовательно экстрагировали фракции соединений: «обменную» (1 моль/л $\text{CH}_3\text{COONH}_4$, pH 7), «карбонаты» (1 моль/л $\text{CH}_3\text{COONH}_4$, pH 5), «полупорные оксиды и гидроксиды» (0.1 моль/л $\text{NH}_2\text{OH}\cdot\text{HCl} + 25\% \text{CH}_3\text{COOH}$), «органическое вещество» (30% $\text{H}_2\text{O}_2 + \text{HNO}_3$ до pH 2), «аморфные силикаты» (0.2 моль/л NaOH) [8]. Рассчитывали долю каждой из них в удельной активности радионуклида.

Активность ^{226}Ra в вышеуказанных объектах окружающей среды определяли эманационным методом с пределом обнаружения 0.07 Бк при ошибке измерений ниже 15% [9, 10]. Токсичность воды, поступающей в реку из дренажной системы объекта консервации, оценивали по показателю смертности лабораторных тест-организмов *Daphnia magna Straus* за 96 ч [11].

Результаты и обсуждение

Ранее [12–14] было выявлено перераспределение активности ^{226}Ra по глубине загрязненных грунтов и между элементами ландшафта хранилища РАО, связанное с мобилизацией радионуклида

в циклах биогенной миграции, с денудационными процессами и вторичной сорбцией растворимых форм радиоактивных элементов грунтами нижней речной террасы. Тем не менее, к началу 2000-х гг. только в 1-метровом слое почвогрунтов запасы ^{226}Ra составляли 320, U – 6.6 ГБк [12]. Общий объем радиоактивно загрязненного материала (включая РАО), уровень эффективной удельной активности которого требовал изоляции от окружающей среды, составлял 168 тыс. м³. Каждый килограмм уран- и радийсодержащих рудных остатков дополнительно содержал до 1 г Cu, 0.7 г Ni, 3.5 г Pb, 2.5 г Mn, 80 г Fe, 20 г Al, 1.5 г Zn, 0.9 г ионов Hg, 0.4 г Co, Cd, V и Sr. Содержание Ba в РАО в 30 раз превышало соответствующее среднее значение для почв мира [15], что было обусловлено использованием его соединений для соосаждения Ra. Поэтому период до реабилитации характеризовался высокой вариабельностью таких показателей состава вод промплощадки, как концентрация ионов Ba, гидрокарбонат- и сульфат-ионов, а также значительной минерализацией водной среды ионами Na, Ca и Mg. Последнее обстоятельство, по имеющимся статистическим данным [6], стимулировало растворение сосредоточенных в РАО соединений радионуклидов. По концентрации Cu, Zn, As, Pb, Mo, V и Hg поверхностные и почвенно-грунтовые воды территории хранилища и речной акватории в зоне его влияния отвечали гигиеническим нормативам.

В этих условиях все опробованные поверхностные воды вне зависимости от их приуроченности к пункту наблюдения также соответствовали требованиям радиационной безопасности, однако объемная активность Ra в поверхностных водах из зоны техногенеза была кратно выше фонового содержания в речной сети (рис. 1, 2013 г.). Она превосходила его гидрохимический фон, равный 0.012 ± 0.008 Бк/л, в 1.3–3 раза. Так, в периоды повышения уровня грунтовых вод и в зимнюю межень объемная активность Ra в речных водах увеличивалась до 0.041 ± 0.003 Бк/л. В разные годы вынос Ra с поверхностными водами промплощадки осуществлялся как в составе раствора, так и с частицами взвесей разного размера. При поступлении в речную сеть водорастворенная фракция радионуклида сорбировалась взвесями. Доля объемной активности ^{226}Ra во взвешенном веществе для ручьев территории складирования РАО в июне 2013 г. составляла $65.0 \pm 1.1\%$, для импактной части русла р. Ухта – увеличивалась до $86 \pm 17\%$. Сравнение содержания радионуклида в речных осадках, отобранных с различной глубины или в разные годы до консервации РАО, свидетельствует о том, что, несмотря на заметную роль взвесей в гидрогенном транспорте Ra, радиоактивный элемент слабо кон-

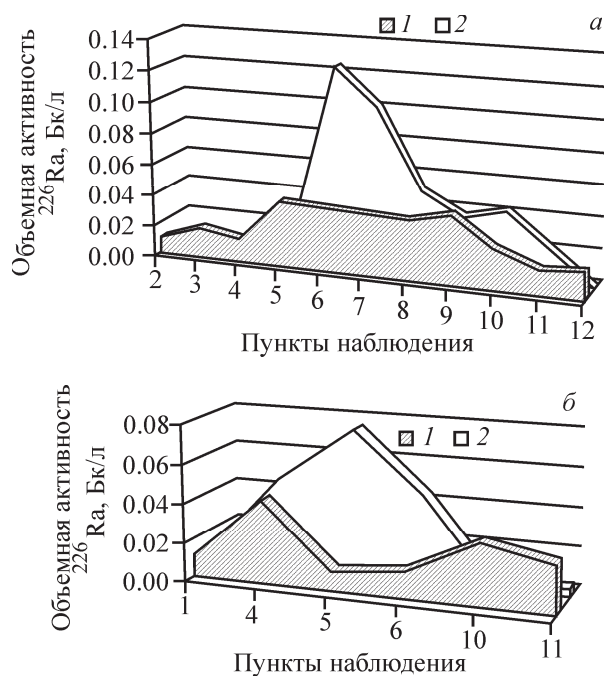


Рис. 1. Объемная активность ^{226}Ra в воде р. Ухта до (а) и после (б) проведения консервации РАО. На а: 1 – июнь 2013, 2 – июнь 2015 г.; на б: 1 – июнь 2016, 2 – июнь 2017 г.

центрируется в донном материале. При средней удельной активности ^{226}Ra в воздушно-сухих осадках фонового створа реки 0.02 Бк/г, в образцах из слоя 0–20 см импактного речного русла усредненное содержание Ra было невелико (0.07 Бк/г и менее). Долговременная динамика миграции ^{226}Ra с поверхностными водами, начиная с дезактивации насыпным способом, была обозначена трендом к повышению поступления радионуклида в реку. Так, в 1962 г. максимум объемной активности Ra в ручьях, дренирующих территорию хранилища РАО, отвечал 0.25 Бк/л, в период с 2009 по 2014 гг. – 0.4 Бк/л.

Реабилитационными мероприятиями, проведенными в 2014–2015 гг. в рамках Федеральной целевой программы, хранилище было переведено в пункт консервации особых радиоактивных отходов, для чего вокруг зоны захоронения были сооружены глинистые геохимические и физические барьеры. Они представляли собой слои разного состава и толщины, которые должны были препятствовать миграции радионуклидов и обеспечивать многоступенчатую безопасность объекта для окружающей среды. Для отвода и фильтрации поверхностных вод были обустроены верхний водоупорный слой из бентонитовых матов и система лучевого дренажа, выход из которой достигал реки за пределами пункта консервации. По стоку грунтовых вод была установлена укрепленная металлическими габионами противоточная завеса типа «стена в грунте» глубиной до первого водо-

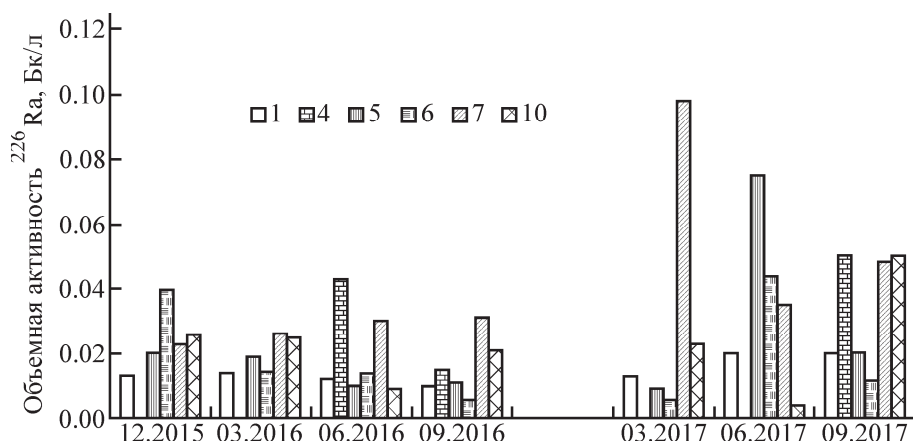


Рис. 2. Поквартальная динамика объемной активности ²²⁶Ra в речной воде в пунктах наблюдения 1, 4–7 и 10 после консервации PAO.

упорного слоя. Использованные в качестве геохимического барьера бентонитовые глины составлены глинистыми минералами смектитовой группы с частицами меньше 1 мкм и сохраняют свои уникальные свойства в геологических масштабах времени [16]. Их сорбционная способность, как правило, проявляется по отношению не только к радионуклидам, но и к другим токсикантам.

После подъема объемной активности радионуклида в речной воде до 0.12 Бк/л в начале консервации (июнь 2015 г.) по завершении работ (ноябрь 2015 г.) эта характеристика вернулась к уровню, соответствующему июню 2013 г., и варьировалась от 0.02 до 0.04 Бк/л. В 2016–2017 гг. концентрации Ва в грунтовых водах снизились в 2–3 раза по сравнению с периодом 2013–2015 гг., что объясняется самоочищением почв территории, прилегающей к инженерному сооружению. Поскольку источником поступления Ва и Ra в исследуемые природные воды являются их смешанные осадки техногенного происхождения, то уменьшение содержания химических аналогов в водной среде также можно рассматривать как важный косвенный признак ослабления гидрогенной миграции радия.

По данным пробоотборов 2016 г. (рис. 1), участки речной акватории с наиболее высоким содержанием ²²⁶Ra в воде соседствовали или принимали дренажные воды других промплощадок радиевого промысла. В частности, пункт наблюдения 4 представлен местом слияния вод мелиоративной канавы территории одного из бывших радиохимических заводов с рекой. В июне 2016 г. на отрезке речного русла в непосредственной близости от объекта консервации объемная активность ²²⁶Ra в водах снижалась до 0.01 Бк/л. В 2017 г., характеризующемся повышенным уровнем атмосферных осадков и грунтовых вод в теплый период, поступление радионуклида в импактные речные воды

усилилось, но ни в одном из отборов не достигало максимума 2015 г. (рис. 1).

Наибольшие содержания Ra были установлены в марте для пункта наблюдения 7 ниже по течению от объекта консервации (рис. 2). Для этого участка русла средняя объемная активность ²²⁶Ra в воде в 2016 г. составила 0.028 ± 0.002 , в 2017 г. – 0.060 ± 0.019 Бк/л. Состав грунтовых вод прибрежной полосы между рекой и объектом наблюдений после консервации изменился как по содержанию ²²⁶Ra и его химических аналогов, так и по ряду других показателей, хотя достоверное снижение удельной электропроводности грунтовых вод не прослеживалось. За период наблюдений 2016–2017 гг. в пробах из стока дренажной системы объекта в реку, а также из наблюдательной скважины, обустроенной на пути движения подземных вод от инженерного сооружения в гидрографическую сеть, объемная активность радионуклида не превысила уровень 0.12 Бк/л, соответствующий времени до консервации PAO. В среднем в образцах грунтовых вод в 2016–2017 гг. она составила 0.068 ± 0.010 Бк/л, в то время как в период времени, предшествовавший обустройству объекта консервации, достигала 0.7 Бк/л (рис. 3), что превосходило санитарно-гигиенические нормативы для вод хозяйственного назначения.

По результатам исследования гидрохимического состава с дренажными водами объекта консервации в гидрографическую сеть поступают ионы Zn, Mo и Ni в количествах, отвечающих нормативным требованиям. Проведенная на примере рачков *Daphnia Magna Straus* оценка воздействия этих вод на организмы показала отсутствие токсичности, что в сравнении с данными для поверхностных вод территории хранения PAO, опубликованными ранее [17], свидетельствует об улучшении радиационной и экологической обстановки в районе рас-

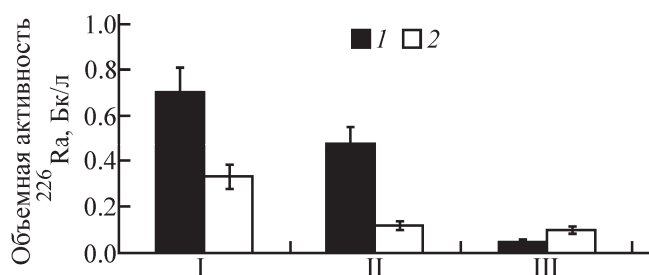


Рис. 3. Долгопериодная динамика объемной активности ^{226}Ra в грунтовых водах объекта консервации и в непосредственной близости от него. I – скважина на прибрежной полосе реки, 2 – сток из дренажной системы объекта в реку. I – до консервации РАО (2009–2013 гг.), II – период обустройства объекта консервации (2014–2015 гг.), III – после консервации РАО (2016–2017 гг.).

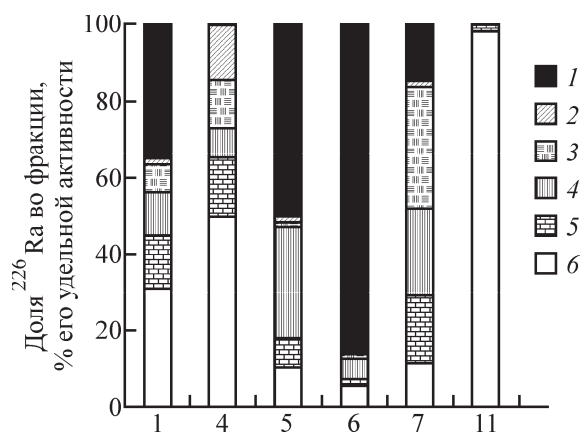


Рис. 4. Формы нахождения ^{226}Ra в донных отложениях р. Ухта на 5 км участке русла в зоне влияния объектов бывшего радиевого промысла (июнь 2016 г., после консервации). 1 – нерастворимый остаток, 2 – аморфные силикаты, 3 – органическое вещество, 4 – гидроксиды Fe и Mn, 5 – карбонаты, 6 – обменные.

положения хранилища РАО.

Результаты исследования форм нахождения ^{226}Ra в речных седиментах участка русла, принявшего воды с территории хранилища РАО (пункты пробоотбора 6 и 7), указывают на частичный механический вынос нерастворимых соединений радионуклида мелкими водотоками в период консервации РАО и в предшествовавший ей отрезок времени (рис. 4). Взвешенный материал с частицами более 3.5 мкм оседал вблизи устья ручьев, дренирующих территорию складирования РАО, что нашло отражение в высокой доле нерастворимых соединений Ra в донном иле и двукратном повышении его удельной активности по сравнению с данными, характеризующими период до проведения реабилитационных работ. Признаки седиментации взвешенного вещества высокой дисперсности (размер 0.45–3.5 мкм) наблюдались на удалении 4.5 км от объекта консервации в пункте наблюдения 10. Контрастность распределения Ra

по формам нахождения в донных осадках этого и соседнего (11) пунктов наблюдения может объясняться дополнительным притоком водорастворенных форм радионуклида в гидрографическую сеть и их последующей обменной сорбцией речными отложениями. Привнос Ra в реку в пункте наблюдения 11 осуществляется водами ручья, дренирующего расположенную в речной пойме радиоактивно загрязненную территорию. Преобладание в речном осадке из этой точки пробоотбора обменной формы нахождения радионуклида, а также близкие, но невысокие значения его валовой удельной активности в образцах 10 и 11 (0.04 и 0.05 Бк/г соответственно) еще раз подтверждают слабое концентрирование Ra в донных отложениях исследуемой речной акватории.

Таким образом, на основе сравнительной динамики поступления ^{226}Ra в речную экосистему (р. Ухта) и в грунтовые воды до и после консервации хранилища радиоактивных отходов (РАО) бывшего радиевого промысла в Республике Коми подтверждена успешность реабилитационных мероприятий, осуществленных в 2014–2015 гг. в рамках Федеральной целевой программы. Показано, что изоляция РАО от окружающей среды путем сооружения на пути миграции радионуклидов физических и геохимических (на основе бентонитовых глин) барьеров позволила снизить поступление в гидрографическую сеть как взвешенных, так и водорастворенных форм нахождения ^{226}Ra . Растворению сосредоточенных в РАО соединений загрязнителей способствовала высокая минерализация поверхностных и грунтовых вод на территории хранилища РАО, вследствие чего в акватории его влияния объемная активность ^{226}Ra повышалась в 1.3–3 раза по отношению к фоновым значениям. После консервации РАО в районе исследования наблюдается тенденция к улучшению качества грунтовых вод по содержанию Ra и его химических аналогов из группы щелочноземельных элементов. Экотоксикологическая оценка дренажных вод объекта консервации, изливающихся в реку, не подтверждает их токсическое воздействие на живые организмы, характерное для периода до проведения реабилитационных мероприятий.

Исследования выполнены в рамках проекта РФФИ и Правительства Республики Коми N 16-45-110051 p_a.

Список литературы

- [1] Поляков А. С., Рагинский Л. С., Науменко Н. А. и др. // Изв. Акад. пром. экологии. 2000. N 3. С. 16–21.
- [2] Рачкова Н. Г. // Вестн. Ин-та биологии Коми НЦ УрО РАН. 2010. N 5. С. 23–27.

- [3] Шапошникова Л. М., Шуктомова И. И. // Экология. 2015. N 3. С. 237–240.
- [4] Груздев Б. И., Маслов В. И., Маслова К. И. и др. // Материалы радиозоологических исследований в природных биогеоценозах. Сыктывкар, 1971. С. 77–90.
- [5] Наумова В. И. // Радиохимия. 2001. Т. 43, N 1. С. 96.
- [6] Рачкова Н. Г., Шуктомова И. И., Карманов А. П. // Бутлеровские сообщ. 2016. Т. 45, N 3. С. 60–67.
- [7] Рачкова Н. Г., Шапошникова Л. М. // Современные проблемы науки и образования. 2017. N 3. С. 1–8.
- [8] Klemt E., Spasova Y., Zibold G. // Environmental Radioactivity in the Arctic and Antarctic: Proc. 15th Conf. St. Petersburg, 2002. P. 67–70.
- [9] Старик И. Е. Основы радиохимии. Л.: Наука, 1969. 247 с.
- [10] Shuktomova I. I., Rachkova N. G. // J. Environ. Radioact. 2011. Vol. 102. P. 84–87.
- [11] Жмур Н. С. Методика определения токсичности воды и водных вытяжек из почв, осадков сточных вод, отходов по смертности и изменению плодовитости дафний. М.: АКВАРОС, 2007. 52 с.
- [12] Носкова Л. М. Динамика миграции U, Ra и Th в компонентах экосистем, нарушенных в результате радиевого производства: Автореф. дис. ... к.б.н. Сыктывкар, 2010. 25 с.
- [13] Евсеева Т. И., Белых Е. С., Майстренко Т. А. и др. // Радиационная биология. Радиозоология. 2011. Т. 51, N 6. С. 601–612.
- [14] Рачкова Н. Г., Шуктомова И. И. // Радиационная биология. Радиозоология. 2013. Т. 53, N 1. С. 84–94.
- [15] Иванов В. В. Экологическая геохимия элементов. М.: Недра, 1994. Кн. 2. 303 с.
- [16] Ковалев В. П., Мельгунов С. В., Пузанков Ю. М. Предотвращение неуправляемого распространения радионуклидов в окружающую среду (геохимические барьеры на смектитовой основе). Новосибирск: Изд-во СО РАН, 1996. 162 с.
- [17] Боднарь И. С., Чебан Е. В., Зайнуллин В. Г. // Изв. Коми НЦ УрО РАН. 2017. Т. 3 (31). С. 34–39.