

М.Т. Бакка, д.т.н., проф.
Житомирський державний технологічний університет
С.О. Жуков, д.т.н., проф.
Криворізький технічний університет

МОЖЛИВОСТІ ТА ОПТИМАЛЬНІ ФОРМИ ЗАХОРОНЕННЯ РАДІОАКТИВНИХ ВІДХОДІВ У ГЕОЛОГІЧНИХ ФОРМАЦІЯХ СЛОВЕЧАНСЬКО-ОВРУЦЬКОГО ПІДНЯТТЯ

Визначена перспективність використання Словечансько-Овруцького підняття для спорудження сховищ захоронення радіоактивних відходів і встановлена також їх геохімічна сумісність в стверділій формі з кварцитами і пірофілітовими сланцями цього регіону. Запропоновані оптимальні форми ствердіння радіоактивних відходів, які забезпечують тривалу і надійну ізоляцію радіоактивних елементів від довкілля.

Однією з найактуальніших проблем людства на сучасному етапі є захоронення високоактивних і середньоактивних радіоактивних відходів. Це пов'язано з масштабним розширенням використання радіоактивних елементів в різних сферах народногосподарського виробництва, науки, оборони і накопиченням величезної кількості відходів. Великий обсяг накопичення радіоактивних відходів забезпечує гірничо-промисловий комплекс України. В зв'язку з цим вибір і обґрунтування ділянок в земній корі найбільш сприятливих для захоронення в них радіоактивних відходів, а також встановлення найбільш раціональних і оптимальних форм поховання відходів являє собою надзвичайно актуальну проблему.

Вивченням проблеми підземного захоронення радіоактивних відходів, як високоактивних так і середньоактивних, займалися і займаються багато вітчизняних і зарубіжних вчених. Роботи науковців були присвячені вирішенню таких проблем: атмогеоміграціям радіонуклідів зі сховищ [7], [8]; обґрунтуванню способів і технологій підземного захоронення переважно високоактивних відходів [1], [9], [11], [12], [13], [14], [15]; мінералогічним дослідженням осередків земної кори, призначених для захоронення відходів [6], [18], [19], [23], [26]; розробці технології ствердіння відходів, яке забезпечує надійне і тривале захоронення [4], [9]; обґрунтуванню умов локалізації радіоактивних відходів та відпрацьованого ядерного палива [7], [9]; взаємодії радіоактивних відходів, що знаходяться у стверділому і безпечному для середовища стані з породами, в яких здійснено їх поховання [3], [5], [16], [18]; розробці і обґрунтуванню технологій поховання [4], [9]; методиці визначення вмісту радіонуклідів в будівельній мінеральній сировині [20], [21], [22], [24]; радіологічним умовам Українського кристалічного щита [16], [18], [24]; радіаційно-токсикологічним властивостям декоративно-виробних, напівкоштовних і коштовних каменів [17]. Невелика кількість робіт присвячена дослідженням геологічних формацій, які передбачаються проектами як локальні осередки надр для поховання радіоактивних відходів. Враховуючи, що складування радіоактивних відходів виконується в Київському державному міжобласному спецкомбінаті (КДМСК), в Дніпропетровському ДМСК та інших, то і зусилля науковців спрямовані на вивчення геологічних формацій розміщення цих спецкомбінатів. Але рано чи пізно географію розміщення таких спецкомбінатів прийдеться розширювати, а відповідно виникає нове завдання, яке полягає у виявленні й вивченні нових геологічних формацій в межах України, які могли б слугувати надійним, довготривалим, екологічно і економічно обґрунтованим укриттям радіоактивних відходів на найближчу і віддалену перспективу.

Метою даної роботи є здійснення наближеної оцінки можливості розміщення сховищ високоактивних і середньоактивних радіоактивних відходів в надрах Словечансько-Овруцької височини. Відомо, що надійність і тривалість ізоляції радіоактивних відходів забезпечується фізико-хімічною стійкістю інженерних бар'єрів і збереженням геохімічної рівноваги в загальному обсязі гірничого масиву. До локальних осередків надр, в яких планується здійснювати захоронення радіоактивних відходів висуваються такі вимоги: розміщення сховищ у глибинних геологічних формаціях нижче зони активного водообміну, відділеної від неї запобіжним шаром; породи геологічних формацій у сполученні з фізико-хімічними і фізико-механічними властивостями відходів повинні гарантувати безпеку і давати змогу доволі точно

передбачати стан різних ділянок літосфери впродовж тривалого часу і оцінювати можливість виходу радіонуклідів у біосферу під дією геолого-геохімічних чинників; вибір і обґрунтування найбільш оптимальних технологій ствердіння радіоактивних відходів. Існують і міжнародні вимоги щодо захоронення відходів у глибині геологічної формації. Так, згідно з вимогами МАГАТЕ обов'язковим є застосування багатобар'єрного захисту під час захоронення відходів ВАР і САВ, який передбачає: вибір наймонолітніших і найменш доступних для підземних вод осередків гірського масиву для розміщення в них сховищ для захоронення; переведення радіоактивних відходів до твердої стійкої форми; капсулювання ствердих відходів у стійкі металеві оболонки; застосування сорбційно-ізолюючих матеріалів у найближчій зоні розміщення капсульованих радіоактивних відходів. Чільне місце в наукових дослідженнях поховання радіоактивних відходів посідає проблема визначення матеріалу матриці для іммобілізації радіоактивних відходів, оскільки її властивості значною мірою визначають подальшу поведінку шкідливих компонентів радіоактивних відходів у навколишньому середовищі. Обґрунтований вибір матриці обумовлює також і вибір технології переробки радіоактивних відходів. Іммобілізація радіоактивних відходів повинна здійснюватись з дотриманням таких вимог: забезпечення диференційованої іммобілізації відходів за фракціями, що може гарантувати їх безпечне зберігання та захоронення протягом необхідного часу; вибір матеріалів для іммобілізації радіоактивних відходів повинен здійснюватись з урахуванням економічних критеріїв і можливостей застосування цих матеріалів в існуючих технологіях; для іммобілізації довгострокових за розпадом радіоактивних відходів необхідне використання стійких кристалічних матеріалів, здатних забезпечити їх надійне поховання в умовах геологічної формації протягом тривалого часу (більше 10^5 років); геохімічна сумісність кристалічних матеріалів з гірськими породами осередку надр вибраного під могильник.

Іммобілізація радіоактивних відходів здійснюється давно напрацьованими технологіями: склування у боросилікатне та фосфатне скло, але такі матриці мають низьку стійкість до α -випромінювання протягом тривалого часу; використання кристалічних матриць у вигляді кераміки, створення якої засновано на загальновідомому явищі ізоморфізму – спроможності хімічних елементів заміщувати один одного в мінералах; застосування металічних матриць з рідкоземельних елементів.

На сьогодні найперспективнішим вважається зберігання радіоактивних відходів у вигляді скла і кристалічних матриць. Словечансько-Овруцька височина, що розміщена на півночі Житомирської області вважається досить перспективною ділянкою для сховища відходів. У сучасному рельєфі Овруцький палеорифт контрастно вирізняється у вигляді кряжа висотою 150–160 м над навколишньою денудаційно-аккумулятивною рівниною. Цей кряж простягається у широтному напрямку до 110 км і має ширину до 20 км. Придатність цієї геологічної формації для захоронення радіоактивних відходів пояснюється такими чинниками: геологічною будовою формації; соціально-екологічним станом території, що зазнала радіоактивного забруднення від катастрофи на ЧАЕС і до того ж малозаселеної та природньо географічних і техногенно виниклих екологічних умов. Звичайно ж, переважаючим фактором слід вважати геологічну будову формації. У геологічному розрізі Словечансько-Овруцької височини виділяються дві автономні формації: нижня вулканогенно-гравуакова потужністю 300–400 м, так звана збраньківська світа; верхня, моласова з потужністю рифу від 950 м в центрі до 1400 м на заході, так звана товкачівська світа.

В будові вулканогенної формації, яка підстиляється рапаківіподібними гранітоїдами Коростенського плутону, вирізняються лужні базальтоїди та ігнібрیتی, майже повністю перетворені метаморфічними процесами в серицит-хлоритові сланці. Але переважаюче практичне значення для захоронення радіоактивних відходів має верхня частина кряжу – кварцитопісковикова товкачівська світа. Кварцитопісковики цієї світи є однорідними як за мінеральним складом, так і в хімічному відношенні. За своїми петроструктурними характеристиками ці породи також одноманітні, які являють собою рівномірнотзернисті, дрібнозернисті аж до зливних з діаметром зернинок 0,04–0,3 мм породи псамітової структури з контактово-поровим серицитовим та регенераційним кварцовим цементом. Майже у всьому розрізі прослідковуються прошарки пірофілітових сланців потужністю від декількох сантиметрів до 60 метрів.

Незважаючи на те, що тріщинуватість кварцитопісковиків значна, формація в своїй загальній масі має унікальну фізичну і хімічну стійкість. Це пояснюється тим, що існуюча тріщинуватість є закритого типу, тріщини усіх напрямків заліковані серицитом, пірофілітом, жилами біло-молочного кварцу. Наявність же пірофіліту та серициту як цементувального матеріалу зумовлює необмежені сорбційні властивості гірничої маси. За своїми теплофізичними, геохімічними, фізико-механічними та інженерно-геологічними характеристиками кварцитопісковики товкачівської світи Словечансько-Овруцького підняття необхідно вважати геологічною формацією, яка повною мірою відповідає спецефічним вимогам щодо спорудження сховища для захоронення високоактивних, середньоактивних і низькоактивних радіоактивних відходів. Звичайно ж для розміщення могильників потрібно ще здійснювати пошук найменш водопроникних і найменш порушених блоків цієї формації, що можна забезпечити комплексними геологічними і геофізичними дослідженнями. Разом з цим необхідно зазначити, що для розміщення могильників радіоактивних відходів у Словечансько-Овруцькій геологічній формації; необхідно знати також взаємодію відходів із гірською породою, яка відбувається безпосередньо на рівні індивідуальних породотвірних мінералів. І особливо ці породи мають бути вивченими з точки зору збереження ізотопних систем як в основних породоутворених так і акцесорних мінералах. При цьому потрібно чітко усвідомлювати, що максимальне збереження ізотопних систем у мінералах є сприятливим критерієм для вибору масиву як майданчика для розміщення сховища радіоактивних відходів. Доведено також, що найбільшу міграційну властивість в умовах могильника радіоактивних відходів у геологічній формації мають радіонукліди, які у складі гірської породи не мають хімічних аналогів. Матриці ствердіння відходів необхідно вибирати такі, які утримуючи радіовідходи у стверділому стані, можуть розглядатись як аналоги природних радіоактивних мінералів геологічної формації, яка вибрана як осередок для спорудження сховища захоронення. Важливим критерієм безпечного захоронення радіоактивних відходів в надрах певних геологічних формацій є сорбційна ємність гірських порід, що визначається вмістом мінералів-сорбентів: цеолітів, аморфізованих різновидів SiO_2 , гідрослюд, гідроокислів заліза. Наявність пірофіліту і серициту як цементувального матеріалу у геологічних формаціях Словечансько-Овруцького підняття забезпечує цю умову. Тим паче, що іонізувальне випромінювання порушує кристалічну решітку мінералів, а це в свою чергу обумовлює зростання їх сорбційної здатності, хоч механічна міцність цих мінералів знижується.

І нарешті, важливим критерієм, що визначає придатність формацій для поховання радіоактивних відходів, є стійкість гірських порід до теплового впливу, яка залежить не тільки від їх мінерального складу, а й від концентрації та хімічного складу флюїдних включень в матриці породотвірних мінералів. Для того, щоб забезпечити досить тривале захоронення радіоактивних відходів в глибинних сховищах геологічних формацій, необхідно, щоб кристалічні масиви, вибрані для будівництва таких споруд, мали майже рівнозначні геохімічні системи, що забезпечить існування таких сховищ впродовж мільйонів років. Повинна існувати тривала геохімічна рівновага, яка забезпечується тоді, коли формою ствердіння радіоактивних відходів будуть матеріали з тотожною щодо вмісних порід хімічною та термодинамічною "поведінкою". А тому форма ствердіння відходів (склування, кераміка та інші) повинна відповідати певній фракції радіоактивних відходів. Наприклад для радіоактивних відходів цезій-стронцієвої фракції найбільше прийнятним є склування.

Загалом же підготовлені до захоронення в гірських породах стверділі радіоактивні відходи повинні відповідати таким вимогам:

- висока механічна, хімічна, радіаційна та термічна стійкість;
- обов'язкова кристалічна структура матричної композиції;
- тотожний хімічний склад іммобілізуючої матриці, що не суперечить складу вмісних порід.

Висновок

Породи товкачівської світи Словечансько-Овруцького кряжу за своїми структурно-тектонічними, геоморфологічними, гідрологічними, петроструктурними, геохімічними, інженерно-геологічними умовами цілком відповідають умовам для спорудження в них сховищ із захоронення високоактивних, середньоактивних і низькоактивних радіаційних відходів;

збранківська світа більш придатною є для захоронення середньоактивних і низькоактивних радіаційних відходів у могильниках шахтного чи свердловинного типу.

ЛІТЕРАТУРА

1. Лаверов Н.П., Величкін В.Н., Омеляненко Б.Н., Петров В.А., Тарасов Н.П. Новые подходы к подземному захоронению высокоактивных отходов в России // Геоэкология. – 2000. – № 1. – С. 3–12.
2. Крылова Н.В., Соломатина Р.Н., Шаврук В.В., Юзикова М.А. Исследование возможного выщелачивания компонентов из фосфатных стекол в пластовую воду гранитных формаций // Атомная энергия. – 1990. № 1. – Т. 69. – Вып. 5. – С. 303–306.
3. Бухарев В.П., Скаржинський О.В., Семенюк М.П., Ніколаєнко В.І. До проблеми поховання РАВ в геологічних формаціях докембрію України. – 3 б.: Актуальні проблеми екології України. – Київ: Геологічний інститут Київського університету, 1997. – С. 27–28.
4. Стельников А.В., Кольчева Т.Н., Коварская Е.Н., Старченко В.А. Разработка процессов отверждения трансплутониевых и редкоземельных элементов в керамику и металлокерамику: Международная конференция “Радиоактивные отходы”. Хранение, транспортировка, переработка”. – Санкт-Петербург. – 1996. – С. 1–7.
5. Иванов Н.П., Котова Н.П., Плясунов А.В. Исследование фазовых равновесий субсолидуса в системе $(\text{Na}_2\text{Cs})_2\text{O}-\text{SrO}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{P}_2\text{O}_5$ в связи с проблемами остекловывания и глубинного захоронения радиоактивных отходов // Геохимия. – 1994. – № 10. – С. 1424–1436.
6. Лаверов Н.П., Омеляненко Б.Н., Юдиндицев С.В., Никонов Б.С. Задачи минералогических исследований в связи с проблемой захоронения радиоактивных отходов. Минералогические исследования в решении экологических проблем. – М.: РАН, 1998 – С. 5–36.
7. Кедровский О.Л., Шишиц Н.Ю., Гупало Т.А. и др. Обоснование условий локализации высокоактивных отходов и отработавшего ядерного топлива в геологических формациях // Атомная энергия – 1991. – Т. 70. – Вып. 5. – С. 294–297.
8. Пушкарьов О.В., Пушкарева Р.В., Приймаченко В.М., Яковлев Є.Ю., Колтунов Р.О. Атмосфероміграція трітійу зі сховищ радіоактивних відходів і його розподіл у ґрунтово-рослинному комплексі // Мінеральні ресурси України. – Київ, 2004. – № 1. – С. 39–40.
9. Шабалін Б.Г. Бухарев В.П., Скаржинський О.В. Пошук найоптимальніших форм захоронення високоактивних відходів у кварцитах Словечансько-Овручської височини. Мінеральні ресурси України. – Київ, 2001. – № 3. – С. 29–32.
10. Zyrynov V.N., Vance E.R. Comparisons of sodium phosphate-structured NLW forms and synroc for high-level nuclear waster immobilization // Mat. Res. Soc. Symp. Proc. – 1997. – V. 465. – P. 623–629.
11. Criteria for underground disposal of solid radioactive wastes // TRN 216 – № 60 – IAEA. – Vienna. – 1983.
12. Dacheux N., Podor R., Chassineux B., Brandel V., Genet M. Actinides immobilization in new matrices based on solid solutions: $\text{Th}_4\text{X}^{\text{IV}}(\text{PO}_4)_4\text{P}_2\text{O}_7$ ($\text{M}^{\text{IV}}=^{238}\text{U}, ^{239}\text{Pu}$) // J. of alloys and compounds. – 1998. – V. 271. – P. 236–239.
13. Brandel V., Dacheux N., Pichot E., Genet M. Chemical conditions of synthesis of $\text{Th}_4(\text{PO}_4)_4\text{P}_2\text{O}_7$. Preparation of thorium phosphate – hydrogenphosphate precursor // Chemistry of Materials. – 1998. – 10. – № 1. – P. 345–350.
14. Heimann R.B., Vandergraaf T.T., Cubic zirconia as a candidate of waste form for actinides: dissolution studies // Journal of Material Science. – 1988. – V 7. – P. 583–586.
15. Burakov B.E. et al. Synthesis of Actinide-doped Zirconia by Plasma Calcination // MRS'97. – Switzerland. – P. 160.
16. Chemical durability and related properties of solidified high-level waste forms. Technical reports. Series № 257 // International atomic energy agency. – Vienna. – 1985. – P. 168.

17. *Бакка М.Т., Барабаш О.М.* Радіогеологічні і радіогідрогеологічні умови як показник екологічного стану геологічного середовища (на прикладі Українського кристалічного щита). Мінерали міжнародної науково-практичної конференції за результатами Об'єднаного європейського проекту ІЕР 10435-38 "Науки про навколишнє середовище в частині впливу радіації на здоров'я людини". – Житомир: ЖІТІ. – 2002. – С. 40–46.
18. *Бакка М.Т., Барабаш О.М.* Радіаційно-токсикологічні властивості декоративно-виробних, напівкоштовних і коштовних каменів // Вісник ЖІТІ / Технічні науки. – Вип. № 22. – 2002. – С. 131–135.
19. Радіологічні умови кристалічного щита як показник екологічного стану геологічного середовища // Вісник ЖІТІ / Технічні науки. – Вип. № 22. – 2002. – С. 144–146.
20. *Бакка М.Т., Барабаш О.М.* Аспекти можливого використання відпрацьованих кар'єрів для поховання радіоактивних та токсичних відходів.
21. *Бакка М.Т., Барабаш О.М.* Методика визначення рівнів радіації в гранітних кар'єрах // Вісник ЖІТІ / Технічні науки. – Вип. № 24. – 2003. – С. 199–206.
22. *Бакка М.Т., Барабаш О.М.* Аналіз методів визначення вмісту радіонуклідів в будівельній мінеральній сировині // Сборник научных трудов Национального горного университета. – № 15. – Т. 2. – Днепропетровск. – 2002. – С. 190–196.
23. *Бакка М.Т., Барабаш О.М.* Аналіз способів радіаційно-гігієнічної оцінки будівельної мінеральної сировини на стадіях розвідки родовищ // Сборник научных трудов Национального горного университета. – № 15. – Т. 1. – Днепропетровск. – 2002. – С. 242–249.
24. *Lutze W.* Silicate glasses // Radioactive waste forms for the future. Amsterdam: Elsevier Sci. Publ., 1988. – P. 1–160.
25. *Mendel I.E., ed.* Final report of the defence high – level waste leaching mechanisms program. – Richland: Battle Pacific Northwest laboratories, 1982. – Report NPPL – 5157.
26. *Weber W.J., Wald J.W. and Matzke Hj.* Effects of self-irradiation damage in Cm-doped $Gd_2Ti_2O_7$ and $CaZrTi_2O_7$ // Journal of Nuclear Materials. – 1986. – V. 138. – P. 196–209.
27. *Ewing R.S., Lutze W., Weber W.J.* Zircon: A host-phase for the disposal of weapons plutonium // Journal of Material Research. – 1995. – V. 10. – P. 243–246.

БАККА Микола Терентійович – доктор технічних наук, професор, завідувач кафедри геотехнологій та промислової екології Житомирського державного технологічного університету.

Наукові інтереси:

- гірництво;
- радіоекологія.

ЖУКОВ Сергій Олександрович – доктор технічних наук, професор, завідувач кафедри будівничих конструкцій Криворізького технічного університету.

Наукові інтереси:

- гірництво;
- радіоекологія.

Подано 24.03.2004