

ВЫЩЕЛАЧИВАНИЕ ЦЕЗИЯ И СТРОНЦИЯ ИЗ ИМИТАТОРОВ РАСПЛАВА, ОБРАЗОВАННОГО КАМУФЛЕТНЫМ ЯДЕРНЫМ ВЗРЫВОМ

В.Н. Бондаренко, А.В. Гончаров, А.А. Мазиллов, А.В. Мазиллов, Б.Н. Разукованный, М.В. Сосипатров, А.Е. Сурков, В.И. Сухостаевец, А.Г. Толстолицкий
Национальный научный центр «Харьковский физико-технический институт», г. Харьков, Украина

Рассматривается изготовление имитаторов стеклокерамического расплава, образованного ядерным взрывом мощностью 0,3 кт (произведен в 1979 г. в Украине на шахте в г. Енакиеве Донецкой области на глубине 903 м в толще песчаника) и исследуется их химическая устойчивость (растворимость) методом выщелачивания цезия и стронция. Определение элементного состава образцов и концентрации цезия и стронция в растворе проводилось с помощью ядерно-физических методов анализа на выходных устройствах электростатического ускорителя «СОКОЛ». Полученные результаты позволили определить концентрацию ^{137}Cs и ^{90}Sr в шахтной воде, омывающей полость взрыва, и прогнозировать радиационные последствия в случае затопления горных выработок шахты.

1. ВВЕДЕНИЕ

Известно, что одним из негативных последствий подземных камуфлетных (без выброса грунта) ядерных взрывов является возможность попадания в водоносные горизонты радионуклидов – радиоактивных веществ, являющихся продуктами взрыва, и непрореагировавшего ядерного горючего. Основными радионуклидами, определяющими активность продуктов ядерного взрыва спустя несколько лет после его проведения, независимо от типа ядерного горючего, являются ^{137}Cs и ^{90}Sr , заключенные в образовавшемся в результате высокотемпературного воздействия на окружающую породу стеклокерамическом расплаве [1]. Образование первичного расплава при мощности взрыва 1 кт [2] происходит путем первоначального испарения породы в радиусе 1...2 м, т.е. в количестве 50...100 т, и смешения его с породой, расплавленной вследствие прохождения ударной волны. Смесь инъецируется в трещины горного массива, образуя жилы застывшего радиоактивного расплава. Инъекция расплава в массив является относительно длительным процессом, связанным как с перемешиванием расплава, так и с дополнительным плавлением стенок трещин. Характерными образованиями подземного камуфлетного ядерного взрыва после остывания расплава являются полость (устойчивая или частично обрушенная) с линзой застывшего расплава (дифференциально или относительно гомогенного), системой заполненного расплавом радиальных и поперечных трещин, покровами застывшего расплава на стенках полости и вытянутыми вверх ореолами рассеяния короткоживущих газообразных и летучих радионуклидов.

Процесс миграции радионуклидов с грунтовыми водами может несколько исказить первоначальное

строение зоны взрыва. Если длительная утечка газов из полости практически не оказывает влияния, так как ореол рассеяния уже сформировался в первые минуты, то попадание воды в полость приводит как к изменению макрофазы (например, растворению), так и к выщелачиванию радионуклидов из горного массива с последующим их переносом.

Целью данной работы было изготовление имитаторов расплава, образованного одним из таких взрывов, произведенных в Украине на шахте в г. Енакиеве Донецкой области в толще породы, представленной песчаником [3], и исследование их химической устойчивости (растворимости) методом выщелачивания цезия и стронция.

2. ИССЛЕДОВАНИЕ ЭЛЕМЕНТНОГО СОСТАВА ПЕСЧАНИКА

Образцы песчаника были отобраны из района шахты, прилегающего к зоне взрыва. Исследование элементного состава этих образцов проводилось с помощью ядерно-физических методов анализа (ЯФМА), таких как: резерфордовское обратное рассеяние (RBS), спектрометрия характеристического рентгеновского излучения, возбужденного протонами (PIXE), спектрометрия мгновенного гамма-излучения из ядерных реакций (PIGE). Методы ЯФМА применялись комплексно, что позволило экспрессно проанализировать исследуемые образцы песчаника сразу по 19-ти элементам.

Измерения выполнялись на выходных устройствах электростатического ускорителя «СОКОЛ». Результаты исследований приведены в табл. 1 и 2, а также на рис. 1.

Таблица 1

Результаты исследования элементного состава песчаника

Элемент	C	O	Na	Mg	Al	Si	S	Cl	K	Ca
Содержание, мас. %	2,19	54,23	1,55	0,36	4,1	32,61	0,09	0,008	2,11	0,99
Элемент	Ti	Cr	Mn	Fe	Zn	Rb	Sr	Zr	U	-
Содержание, мас. %	0,41	0,01	0,03	1,25	0,01	0,01	0,02	0,004	0,001	-

Таблица 2

Состав песчаника из зоны объекта «Кливаж» в пересчете на окислы

Окисел	SiO ₂	TiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃ (с FeO)	MnO	MgO	CaO	Na ₂ O	K ₂ O
Содержание, мас. %	69,76	0,60	8,71	1,78	0,042	0,59	1,39	2,09	2,53
Окисел	CO ₂	SO ₃	Cl	H ₂ O	ZrO ₂	SrO	ZnO	Cr ₂ O	UO ₂
Содержание, мас. %	8,02	0,21	0,21	4,61	0,005	0,018	0,012	0,013	0,001

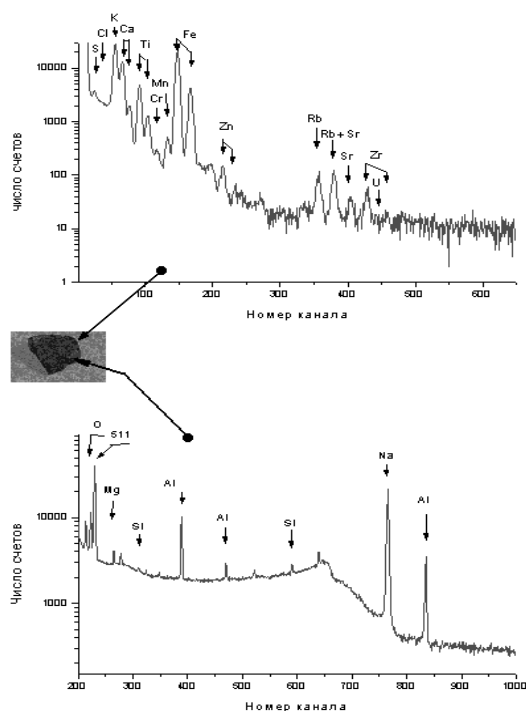


Рис. 1. Спектры PIXE и PIGE от образца песчаника. Энергия анализирующего пучка протонов 1,7 МэВ

3. ИЗГОТОВЛЕНИЕ ИМИТАТОРОВ РАСПЛАВА

Изготовление имитаторов выполнено на базе исследованного песчаника. Процесс изготовления образцов-имитаторов состоял в следующем (см. рис. 2).

Песчаник вначале дробили и измельчали. Полученные фрагменты размером 5...7 мм размалывали на вибромеханической мельнице с жерновами из твердосплавного материала ВК-7 и получали порошок шихты (размер частиц порошковой фракции шихты <40 мкм).

Образцы-имитаторы, содержащие Cs или Sr, получали введением в порошок материал карбоната стронция (SrCO₃) или соли CsI с последующим

перемешиванием до удовлетворительной гомогенизации смеси. Количество вводимого Cs и Sr составляло по 1 г вводимых компонент на 100 г порошкового материала. Из полученной шихты брались навески и помещались в пресс-форму.

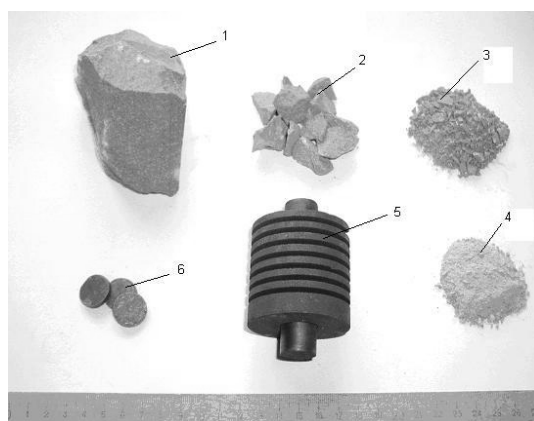


Рис. 2. Схема приготовления образцов для выщелачивания:

1 – проба песчаника; 2 – фрагменты пробы после дробления; 3 – измельченный материал пробы перед помолотом; 4 – порошок шихты; 5 – снаряженная пресс-форма; 6 – синтезированные образцы-имитаторы, используемые для испытаний на химическую устойчивость

Пресс-форма и пуансоны были изготовлены из графита АРВ. С целью устранения влияния графита на порошок материал внутренняя поверхность пресс-формы и торцы пуансонов изолировались молибденовой фольгой толщины 50 мкм. Затем порошок материал, содержащийся в пресс-форме, виброуплотняли на вибростенде ВЭДС-10 и прессовали под давлением 40 МПа без нагрева (при комнатной температуре). Спекание под давлением проводили способом прямого пропускания электрического тока через пресс-форму. Параметры прессования: T = 1200°C; P = 40 Мпа; время выдержки 5 мин. Полученные образцы-имитаторы имели цилиндрическую форму диаметром 18,0 мм, толщиной 4,0...5,0 мм,

плотность синтезированного материала составляла 2,25...2,33 (~2,3 г/см³).

4. МЕТОДИКА ПРОВЕДЕНИЯ ИСПЫТАНИЙ НА ВЫЩЕЛАЧИВАНИЕ

Для проведения испытаний на выщелачивание образец помещали в емкость из тефлона и заливали контактным раствором, в качестве которого использовали дистиллированную воду (pH=6,6). Через определенный интервал времени образец извлекали из контактного раствора и заливали свежим раствором (схема испытаний изготовленных имитаторов на выщелачивание показана на рис. 3).

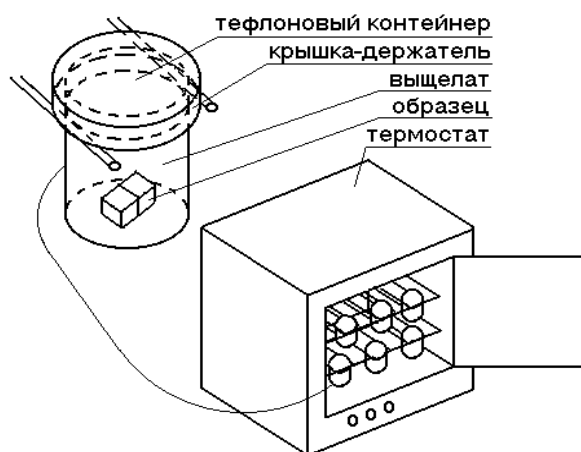


Рис. 3. Схема проведения испытаний образцов на выщелачивание

Температура раствора поддерживалась на уровне 25°C, использованный контактный раствор выпаривался на подложке. Измерение концентраций выщелоченных нуклидов проводилось ядерно-физическими методами анализа на выходных устройствах ускорителя «Сокол». Устойчивость к выщелачиванию определялась в соответствии с [4,5].

5. РЕЗУЛЬТАТЫ ИССЛЕДОВАНИЯ ХИМИЧЕСКОЙ УСТОЙЧИВОСТИ ИМИТАТОРОВ РАСПЛАВА

На рис. 4-8 и в табл. 3-4 приведены полученные результаты исследований химической устойчивости

(растворимости) имитаторов стеклокерамического расплава, включающих в себя цезий и стронций.

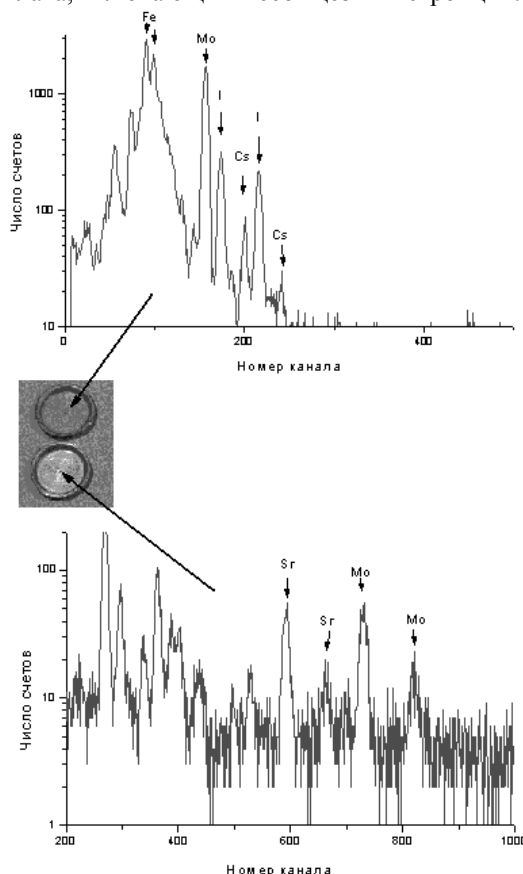


Рис. 4. Спектры PIXE от осадка контактного раствора. Верхний спектр получен от осадка контактного раствора (таблетки имитатора, в состав которых был введен цезий), нижний – от осадка (таблетки имитатора, в состав которых был введен стронций)

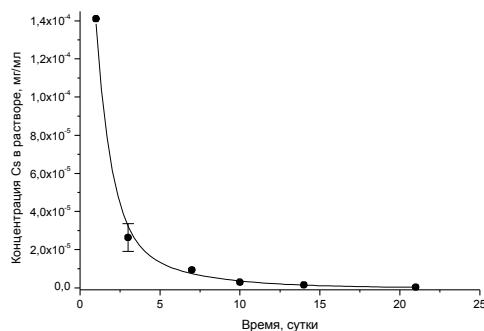


Рис. 5. Зависимость концентрации цезия в растворе от времени выщелачивания

Скорость выщелачивания цезия

Дни	1	3	7	10	14	21
Скорость, мг/(см ² ·сут)	$2,6 \times 10^{-3}$	$1,6 \times 10^{-4}$	$2,43 \times 10^{-5}$	$5,3 \times 10^{-6}$	$1,9 \times 10^{-6}$	$2,4 \times 10^{-7}$

Таблица 3

Скорость выщелачивания стронция

Дни	1	3	7	14	21	28
-----	---	---	---	----	----	----

Таблица 4

Скорость, мг/(см ² ·сут)	$1,6 \times 10^{-4}$	$2,9 \times 10^{-5}$	$1,9 \times 10^{-5}$	$8,1 \times 10^{-6}$	$4,4 \times 10^{-6}$	$4,2 \times 10^{-6}$
--	----------------------	----------------------	----------------------	----------------------	----------------------	----------------------

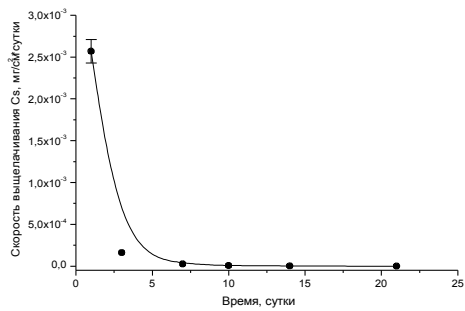


Рис. 6. Зависимость скорости выщелачивания цезия от времени

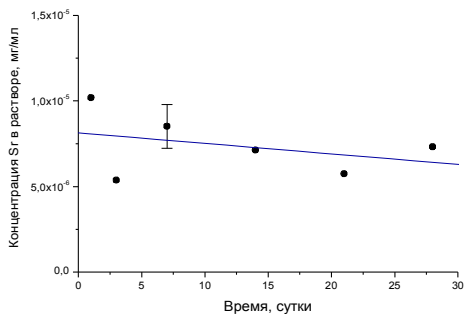


Рис. 7. Зависимость концентрации стронция в растворе от времени выщелачивания

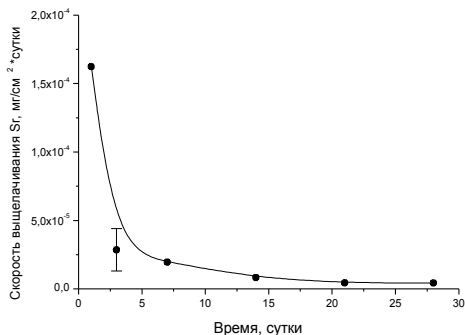


Рис. 8. Зависимость скорости выщелачивания стронция от времени

6. ВЫВОДЫ

Скорости выщелачивания цезия и стронция из имитаторов расплава, полученные в настоящей работе, соответствуют опубликованным данным по

выщелачиванию радионуклидов грунтовыми водами из стекловидных матриц, миграции элементов из радиоактивных отходов в геологических средах. Например, в случае урана [2] скорость выщелачивания определяется, в основном, разрушением самой матрицы, и в меньшей степени – диффузионными процессами урана из внутренних слоев матрицы. Последнее обстоятельство, в частности, подтверждает сделанный в [6] вывод о том, что в высвобождении радионуклидов из остеклованных масс особую роль играет Si. SiO₂ представляет матрицу скелетного класса, поэтому скорость его выщелачивания определяет скорость разрушения стекла. В выщелачивании цезия, тем более стронция, роль диффузионных процессов становится заметнее.

Практическая значимость выполненной работы заключается в том, что полученные результаты позволили определить концентрацию ¹³⁷Cs и ⁹⁰Sr в шахтной воде, омывающей полость взрыва, и прогнозировать радиационные последствия в случае затопления горных выработок шахты.

ЛИТЕРАТУРА

1. Физика ядерного взрыва. Том 1. Развитие взрыва. М.: Изд. Министерства обороны Российской Федерации. Центральный физико-технический институт. 2000.
2. А.С. Кривохатский. Радиохимия ядерных взрывов //Радиохимия. 1982, №2, с. 277–286.
3. Технично-экономическое обоснование на отработку пластов в зоне взрыва «Кливаж» на гор. 936 м шахты «Юнком» //Пояснительная записка. Исходные данные, инженерно-технические решения и мероприятия по радиационной безопасности. Научно-технические основы возможности безопасной отработки пластов в зоне взрыва. М.: «ВНИИПромтехнологии», 1992.
4. D.N. Strachan, R.P. Turcotte, B.O. Barnes. MCC-1: A standard leach test for nuclear waste forms //Nucl. Technol. 1982, v. 56, p. 306–312.
5. ГОСТ 29114-91 «Отходы радиоактивные: Метод измерения химической устойчивости отверженных радиоактивных отходов посредством длительного выщелачивания».
6. A. Avogadro, F. Lanza. Зависимость между механизмом выщелачивания стекла и геохимическим переносом радионуклидов //Sci. Basis Nucl. Waste Manag. J. Proc. Mater. Res. Soc. 5th Int. Symp., Berlin, 7-10 June, 1982. New York, 1982, 103–112.

ВИЛУЖНЮВАННЯ ЦЕЗІЮ І СТРОНЦІО З ІМІТАТОРІВ РОЗПЛАВУ, ЩО БУВ УТВОРЕНИЙ КАМУФЛЕТНИМ ЯДЕРНИМ ВИБУХОМ

В.М. Бондаренко, О.В. Гончаров, О.О. Мазілов, О.В. Мазілов, Б.М. Разсукований, С.Ю. Саєнко, М.В. Сосипатров, О.Є. Сурков, В.І. Сухостаєць, О.Г. Толстолуцький

Розглядається виготовлення імітаторів стеклокерамічного розплаву, утвореного ядерним вибухом потужністю 0,3 кт (зроблений в 1979 р. в Україні на шахті в м. Єнакієве Донецької області на глибині 903 м у товщі піщанику) і досліджується їхня хімічна стійкість (розчинність) методом выщелачивания цезію й стронцію. Визначення елементної сполуки зразків і концентрації цезію й стронцію в розчині проводилося за допомогою ядерно-фізичних методів аналізу на вихідних пристроях електростатичного прискорювача «СОКІЛ». Отримані результати дозволили визначити концентрацію ¹³⁷Cs і ⁹⁰Sr у шахтній воді, омывающей порожнина вибуху, і прогнозувати радіаційні наслідки у випадку затоплення гірських вироблень шахти.

CESIUM AND STRONTIUM LEACHING FROM MELT SIMULATORS FORMED BY CAMOUFLET NUCLEAR EXPLOSION

V.N. Bondarenko, A.V. Goncharov, A.A. Mazilov, A.V. Mazilov, B.N. Razuikovanyj, S.J. Saenko, M.V. Sosipatrov, A.E. Surkov, V.I. Suhostavets, A.G. Tolstolutskyj

The paper is devoted to manufacturing of glassceramic melt simulators formed by a nuclear explosion with power 0,3 kt, carried out in 1979 in Ukraine at mine in Enakievo of Donetsk region on the depth of 903 m in sandstone thickness. Also this paper shows the investigation of glassceramic melt simulators chemical stability (solubility) by a method of cesium and strontium leaching. Definition of both the samples element composition and cesium and strontium concentration in the solution was carried out with the help of nuclear-physical methods of the analysis in output blocks of the electrostatic accelerator "SOKOL". The obtained results have allowed to determine the ^{137}Cs and ^{90}Sr concentration in mine water washing cavity created by explosion, and to predict radiation consequences in case of flooding mine excavation.