

УДК 55:504;550.424

ОЦЕНКА ДОЛГОСРОЧНОЙ БЕЗОПАСНОСТИ ЗАХОРОНЕНИЯ РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ. 1. ПАЛЕОРЕКОНСТРУКЦИЯ УСЛОВИЙ ФОРМИРОВАНИЯ ПОДЗЕМНЫХ ВОД¹

© 2009 г. И. В. Токарев*, А. А. Зубков**, В. Г. Румынин*, С. П. Поздняков***, В. А. Поляков****, В. Ю. Кузнецов*****

*Санкт-Петербургское отделение Института геоэкологии Российской академии наук
199004 Санкт-Петербург, ВО, Средний пр., 41

** Сибирский химический комбинат
636000 Северск, ул. Курчатова, 1

***Московский государственный университет
119991 Москва ГСП-1, Ленинские горы

****Всероссийский научно-исследовательский институт гидрогеологии и инженерной геологии
142452 Московская обл., пос. Зеленый

*****Санкт-Петербургский государственный университет
199004 Санкт-Петербург, ВО, Средний пр., 4

Поступила в редакцию 02.10.2007 г.

Выполнено определение изотопных характеристик ($\delta^2\text{H}$, $\delta^{18}\text{O}$, $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$, Ar , ^3H) природных и техногенно измененных вод в районе полигона захоронения Сибирского химического комбината с целью определения условий циркуляции природных вод и оценки надежности изоляции РАО в пластах-коллекторах.

Природные воды не имеют трития, напротив, в радиоактивных отходах (РАО) содержания трития весьма высоки, что позволяет легко различать эти воды. Формирование природных вод пластов-коллекторов происходило в холодных климатических условиях, на что указывает их изотопный состав $\delta^2\text{H} = -127 \dots -140$, $\delta^{18}\text{O} = -17.0 \dots -18.2\%$, значительно отличающийся от современного $\delta^2\text{H} = -117$ и $\delta^{18}\text{O} = -15.7\%$. Техногенные воды образуют единую обособленную группу со специфическим изотопным составом $\delta^2\text{H} = -111 \dots -121$ и $\delta^{18}\text{O} = -13.8 \dots -16\%$, обусловленным испарением воды в технологическом цикле. Данные по стабильным изотопам согласуются с температурой, рассчитанной для инфльтрационных вод по благородным газам $t = -0.2 \dots 4.2^\circ\text{C}$. Изотопный состав растворенного в подземных водах природного урана значительно варьирует $^{234}\text{U}/^{238}\text{U} = 1.74 \dots 16.1$ (по активностям), крайние значения $^{234}\text{U}/^{238}\text{U} > 5-6$ указывают на наличие талых вод, образованных за счет деградации мерзлоты. Природные и техногенные воды четко различаются по изотопным характеристикам, что позволяет строго локализовать фронт ореола РАО. Таким образом, три независимых изотопных систематики, характеризующих природные

воды пластов-коллекторов, указывают на то, что они сформировались в холодный климатический период, сразу вслед за деградацией мерзлоты.

Предотвращение неконтролируемого распространения радиоактивности в окружающей среде – одна из приоритетных задач предприятий, входящих в структуру Федерального агентства по атомной энергии. Удаление в геологическое пространство является, по-видимому, наилучшим способом обеспечения безопасности при обращении с жидкими РАО, требующими захоронения [5].

Основным инструментом прогнозной оценки поведения РАО в подземной гидросфере являются численные модели фильтрации и массопереноса, параметрически поддержанные комплексом аналитических, лабораторных и полевых исследований. Выделяют два пространственно-временных масштаба рассмотрения миграции техногенных радионуклидов в природных средах. Ближнесрочные прогнозы миграции для короткоживущих нуклидов, таких как ^3H , ^{90}Sr , ^{95}Zr , ^{95}Nb , ^{106}Ru , ^{137}Cs , ^{144}Ce и др., включают рассмотрение миграции на локальных участках, временная шкала моделирования составляет десятки – первые сотни лет. Долговременные и сверхдолговременные прогнозы необходимы при захоронении РАО, содержащих уран и трансураниевые нуклиды, в этом случае используется региональный масштаб рассмотрения,

¹ Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (гранты 04-05-97508 р_офи и 07-05-00796-а), Международного научно-технического центра (гранты 3193 и 3590) и Фонда гражданских исследований и развития (грант CRDF RUG2-2821-MO-06).

временная шкала прогнозирования составляет тысячи и сотни тысяч лет.

Современная технология создания техногенных барьеров обеспечивает сохранность РАО, содержащих короткоживущие нуклиды в течение времени, необходимого для их распада до безопасного уровня активности. Геологическая среда в этом случае выступает в качестве дополнительного фактора безопасности, например, исключает прямой доступ к охраняемым объектам. При построении краткосрочных прогнозов модельные параметры могут быть найдены с помощью лабораторных и натуральных экспериментов, а также по результатам наблюдений за эксплуатируемыми объектами.

Оценка долгосрочной перспективы сохранности РАО на периоды времени в несколько тысяч или десятков тысяч лет требует существенно иного подхода к построению моделей. В связи с этим отметим необходимость задания изменений граничных условий во времени, а также фильтрационной и миграционной неоднородности в региональном масштабе. При этом верификация моделей на базе решения эпигнозных задач должна производиться с учетом имевших место в голоцене вариаций климата.

В связи с вышесказанным можно уверенно утверждать, что фильтрационные и миграционные параметры, получаемые "обычными" экспериментальными методами, в том числе по данным об эксплуатации существующих объектов, не обеспечивают правильность калибровки долгосрочных прогнозных моделей. Наиболее информативными в плане получения параметров для валидации моделей являются изотопные исследования природных вод как среды и агента массопереноса.

Объектом данного исследования является полигон захоронения жидких РАО Сибирского химического комбината (СХК) (г. Северск Томской обл.). Комбинат входит в число крупнейших предприятий, работающих с делящимися материалами. Полигон эксплуатируется начиная с 1963 г., захороненные к настоящему времени отходы содержат суммарную активность ~800 млн. Ки [8].

По результатам режимных наблюдений за период эксплуатации полигона можно сделать вывод, что технология захоронения обеспечивает полную изоляцию РАО в отношении короткоживущих нуклидов. Однако, РАО содержат также долгоживущие трансураниевые изотопы, поэтому для полного обоснования безопасности захоронения необходим прогноз их миграции как минимум на 1000-летний период. В этой перспективе водозаборы г. Северска, г. Томска и р. Томи являются объектами потенциального воздействия РАО.

В данной работе приведены результаты изотопных исследований, направленных на решение вопроса о безопасности долгосрочного захоронения РАО на полигоне СХК. Комплекс работ вклю-

чал изучение изотопного состава воды ($\delta^2\text{H}$, $\delta^{18}\text{O}$) и растворенного урана ($^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$), привлечение данных по благородным газам (Ar) и тритию (^3H), а также палеореконструкцию условий формирования подземных вод по изотопным данным.

ГЕОЛОГИЧЕСКОЕ ПОЛОЖЕНИЕ ПОЛИГОНА ЗАХОРОНЕНИЯ РАО

Материалы по геологическим и технологическим условиям эксплуатации полигона захоронения жидких РАО СХК представлены в [8]. В геолого-структурном отношении площадь исследования расположена на северо-западном фланге Томско-Каменского выступа фундамента (рис. 1), в гидрогеологическом плане она относится к юго-восточному флангу Западносибирского артезианского бассейна. Погружение кровли фундамента, увеличение мощности отдельных слоев и всего осадочного чехла в целом происходит в северо-западном и северном направлении от р. Томи.

Фундамент представлен складчатыми породами палеозоя – сланцами и песчаниками, которые прорваны роями даек преимущественно долеритового состава. Формирование чехла происходило в период мел-антропоген с перерывом в неогене. Осадочные породы отлагались в однотипных прибрежно-морских и лагунно-континентальных условиях за счет сноса терригенного материала с обнаженной части фундамента в направлении с юго-востока на северо-запад. В литологическом отношении чехол представляет собой монотонное чередование песчаных и глинистых разностей пород, слабо различающихся по минералогическому составу. Повсеместно отмечается значительная примесь частично обугленных растительных остатков.

По преобладанию песчаного или глинистого материала в отдельных интервалах разреза чехла, по различию в фильтрационных свойствах и напорах выделены водоносные горизонты I–VI (снизу-вверх) и разделяющие слои А–Г (рис. 2). Проницаемость верхней части разреза (IV–VI – горизонты) значительно выше проницаемости нижней части (I – III горизонты) – их водопроницаемость составляет около 1600 и 70 м²/сут соответственно. Фильтрационные свойства пород фундамента детально не изучались, однако, имеющиеся данные свидетельствуют об их низкой проницаемости.

Питание подземных вод инфильтрационное, современная область питания I–V горизонтов расположена вблизи водораздела рек Томи и Чулыма на расстоянии ~40 км от полигона. Региональным базисом разгрузки является р. Томь, расположенная примерно в 8 км от южной границы полигона захоронения РАО вниз по потоку подземных вод. Гидродинамическая сетка течения регионального потока подземных вод (кроме VI горизонта) в естественных условиях приближалась к плоско-

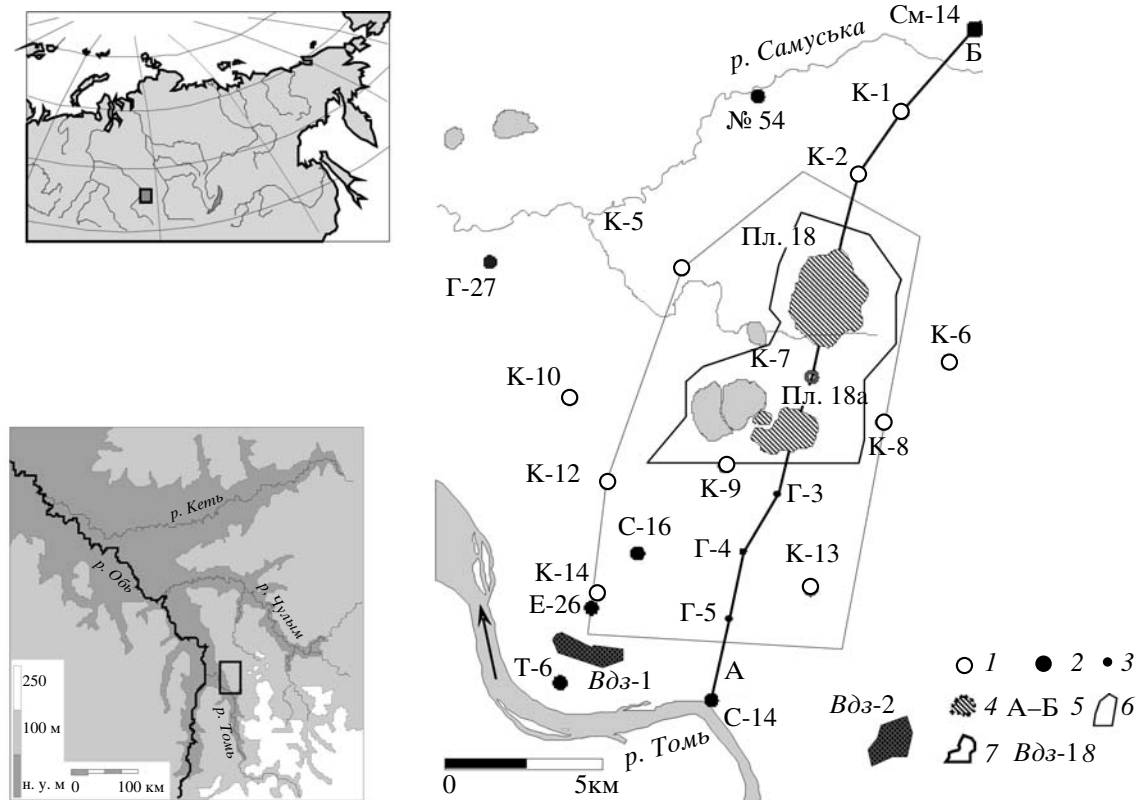


Рис. 1. Схема расположения пунктов опробования в районе полигона захоронения РАО СХК. 1 – кусты ярусных скважин на I–V горизонты; 2 – одиночные скважины; 3 – геологическая скважина, не задействованная в опробовании; 4 – площадки в пределах полигона захоронения РАО СХК; 5 – линия разреза; 6 – граница горного отвода СХК; 7 – граница полигона захоронения; 8 – водозаборы, эксплуатирующие V горизонт.

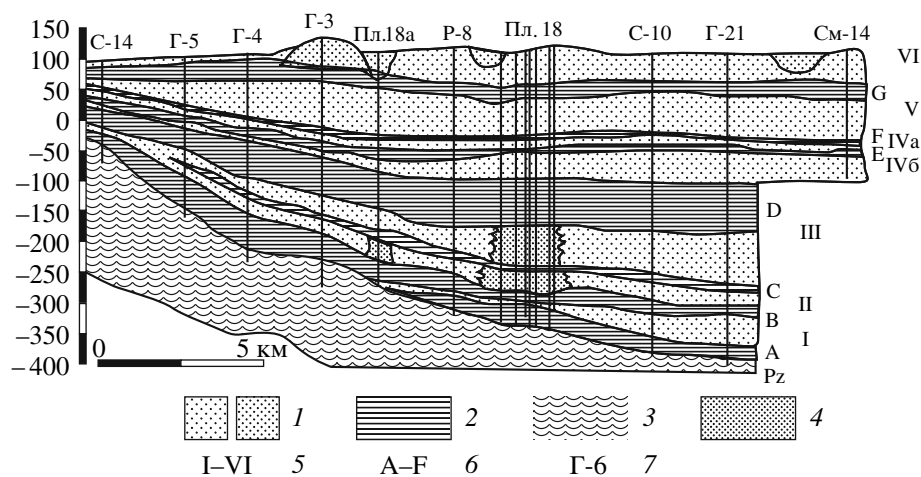


Рис. 2. Геологический разрез по линии А-Б. 1 – водоносные горизонты; 2 – водоупорные слои; 3 – метаморфические породы палеозойского складчатого фундамента; 4 – ореол распространения РАО на площадках захоронения; 5 – номера водоносных пластов (II и III – пласты-коллекторы РАО, I и IV – буферные горизонты, V – эксплуатируемый на воду горизонт); 6 – индексы разделяющих слоев; 7 – номера скважин.

параллельной, с общим направлением движения с северо-востока на юго-запад. В настоящее время она искажена куполом напоров, сформировавшимся вокруг полигона захоронения РАО СХК, площадь купола сопоставима с размерами горного отвода СХК. Питание самого верхнего VI горизонта локальное, приуроченное к местным возвышенностям, разгрузка происходит в местные водотоки.

По химическому составу воды пресные с минерализацией $M \approx 0.2-0.3$ г/л в верхней части разреза при гидрокарбонатно-натриевом составе и $M \approx 0.3-0.6$ г/л в нижней части при гидрокарбонатно-кальциевом составе. В микроэлементном составе природных вод характерными маркирующими компонентами являются йод и бром, присутствие которых обусловлено морским происхождением осадков и наличием погребенной органики.

Район захоронения РАО изучался по данным геологических, геофизических, гидрогеологических и буровых работ. В геологическом разрезе на основании исследований для закачки были выбраны II и III горизонты, расположенные на глубине 270–390 м. Выше лежащий по отношению к пластам-коллекторам IV горизонт и ниже лежащий I являются буферными, для питьевого водоснабжения используется V горизонт, а воды VI горизонта и палеозойского фундамента не эксплуатируются.

Режимные наблюдения в течение более чем 40-летнего периода эксплуатации полигона, а также специально выполненные опытно-фильтрационные опробования не выявили прямой гидравлической связи между нижней (I–III) и верхней (IV–VI) частями разреза через разделяющий горизонт D в пределах полигона захоронения.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

В данной работе использован ряд природных и техногенных изотопных систем, для которых геохимические закономерности поведения выявлены на базе анализа большого фактического материала. Использовались стандартные методики отбора проб, их консервации и подготовки к анализу: изотопный состав воды определялся масс-спектрометрически, тритий – сцинтилляционным счетом, изотопный состав U – альфа-спектрометрически, Ag – объемным методом [4, 6, 19].

Тритий (^3H) является наиболее универсальным индикатором молодых вод, поступивших в подземную гидросферу после начала термоядерных испытаний в 1952 г. [10]. Инфильтрационные воды, сформировавшиеся до этого момента, в настоящее время практически не содержат ^3H .

В ходе фильтрации происходит химическая метаморфизация РАО за счет внутрифазовых реакций и взаимодействия с вмещающими породами, что приводит к отставанию фронта растворенных веществ относительно воды. Содержание ^3H в

РАО достигает $n \times 10^4$ Бк/л, в противоположность этому в природных водах IV и более глубоких горизонтов тритий отсутствует, поэтому ^3H прекрасно маркирует передовую часть фронта вытеснения. Результаты измерения ^3H в районе полигона СХК были использованы для пространственной локализации фронта РАО и разбраковки проб воды на техногенно-измененные и природные.

Дейтерий–кислород-18 ($\delta^2\text{H}$, $\delta^{18}\text{O}$). Изотопный состав осадков для Земли в целом на диаграмме $\delta^2\text{H} \div \delta^{18}\text{O}$ определяется уравнением глобальной линии метеорных вод (ГЛМВ)

$$\delta^2\text{H} = 8 \cdot \delta^{18}\text{O} + 10\text{‰}, \quad (1)$$

где изотопный состав выражен в промилле относительно Венского стандарта средней океанической воды [16].

Положение изотопного состава осадков конкретной местности на ГЛМВ определяется среднегодовой температурой воздуха [7, 17]. Главной закономерностью является облегчение изотопного состава осадков при снижении среднегодовой температуры воздуха. Пластовые воды, имеющие инфильтрационное питание обычно идентичны по изотопному составу атмосферным осадкам, выпадающим в области питания. По данным МАГАТЭ, в холодных климатических условиях со среднегодовой температурой ниже 0°C выпадают осадки с изотопным составом $\delta^2\text{H} < -100...-110$ и $\delta^{18}\text{O} < -12...-13\text{‰}$ [21]. Поэтому подземные воды с подобными или более легкими изотопными составами формируются в условиях холодного климата.

При изменении фазового состояния воды после выпадения осадков на земную поверхность происходит фракционирование, в результате которого тяжелые изотопы концентрируются в наиболее конденсированной фазе. При замерзании вновь образованный лед утяжеляется относительно исходного изотопного состава метеорных вод, а остаточная вода облегчается, т.е. на диаграмме $\delta^2\text{H} \div \delta^{18}\text{O}$ точки изотопных составов льдов и остаточных вод сдвигаются в разные стороны относительно начальной точки на ГЛМВ. Поэтому при обнаружении вод с изотопным составом, смещенным вправо относительно ГЛМВ, они должны быть генетически диагностированы как образовавшиеся в результате таяния льда [7].

Измеренный изотопный состав воды из II–V горизонтов в районе полигона захоронения РАО СХК приведен в табл. 1. В пределах ореола растекания РАО воды пластов-коллекторов маркируются тритием и представляют собой смесь вытесняющих техногенных и остаточных природных вод. Точки, относящиеся к ореолу растекания РАО (табл. 1), маркированы ^3H и на диаграмме $\delta^2\text{H} \div \delta^{18}\text{O}$ образуют обособленную группу, аппроксимируемую уравнением $\delta^2\text{H} = 3.7 \times \delta^{18}\text{O} - 60$ (рис. 3). Положение точек относительно ГЛМВ и угловой наклон линии ука-

Таблица 1. Изотопный состав подземных вод в районе полигона захоронения РАО СХК

Скважина	Местоположение	Горизонт	Дата	$\delta^{18}\text{O}$	$\delta^2\text{H}$
				‰	
А-1	РАО*	II	01.10.1995	-15.4	-121
А-1	РАО	II	02.09.1996	-15.7	-119
А-4	Регион**	II	02.09.1996	-17.4	-128
А-19	»	II	25.05.1903	-17.8	-135
А-21	»	III	26.05.2003	-17.6	-133
А-44/1	РАО	II	01.10.1995	-14.9	-118
А-44/2	РАО	II	01.10.1995	-14.0	-112
А-44/3	РАО	II	01.10.1995	-14.3	-114
А-44	РАО	III	21.08.1996	-14.1	-111
А-44	РАО	III	27.05.2003	-14.9	-114
А-46	РАО	III	24.08.1996	-15.7	-118
А-47	РАО	II	04.09.1996	-15.2	-116
А-47	РАО	II	28.05.2003	-13.8	-113
Г-2	Регион	III	04.06.2003	-18.0	-139
Е-8	»	V	05.09.1996	-17.2	-128
П-2	»	III	01.06.2003	-17.8	-140
П-5	»	II	02.06.2003	-17.6	-135
П-14	РАО	III	24.08.1996	-16.0	-119
П-156	Регион	II	03.06.2003	-18.2	-138
П-16	»	III	23.08.1996	-18.1	-134
П-18	»	II	01.06.2003	-17.2	-134
С-38	»	II	04.09.1996	-17.5	-130
С-47	»	II	04.09.1996	-18.0	-132
С-77	»	II	04.09.1996	-17.9	-132
Сн-91	»	IV	02.06.2003	-17.7	-135
Сн-92	»	V	03.06.2003	-17.0	-127
Р. Томь			30.08.1996	-15.7	-117
Г. Новосибирск***			1984–1998	-15.96	-117.4

* – скважины на полигоне захоронения в пределах ореола растекания РАО;

** – скважины, опробующие природные подземные воды регионального потока;

*** – ближайшая точка сети мониторинга МАГАТЭ.

зывают на то, что изотопный состав воды РАО сформирован в результате испарения.

Точка пересечения линии аппроксимации с ГЛМВ должна отвечать начальному изотопному составу воды, используемой СХК. Из рис. 3 видно, что вода, используемая в технологическом цикле, исходно представляет собой смесь вод р. Томи и подземных вод в пропорции 70–80 и 20–30% соответственно.

Изотопный состав природных вод сильно облегчен относительно современных вод р. Томи (район г. Северска) и современных метеорных осадков

(станция наблюдения г. Новосибирска). В свою очередь, среди природных вод наиболее изотопно легкую воду содержат пласты-коллекторы (табл. 1). Кроме того, на графике $\delta^2\text{H} \div \delta^{18}\text{O}$ точки, отвечающие пластам-коллекторам, значительно отклоняются от ГЛМВ вправо (рис. 3).

Как было указано выше, отклонение изотопного состава подземных вод в сторону утяжеления относительно ГЛМВ для регионов с холодным климатом означает обнаружение талых вод [3]. Следовательно, формирование современных вод II и III горизонтов может быть связано с деградацией мно-

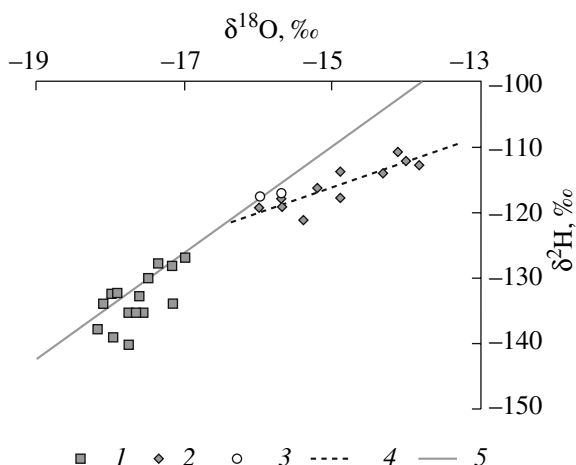


Рис. 3. Изотопный состав подземных вод в районе полигона захоронения РАО СХК. 1 – природные воды II–V водоносных горизонтов; 2 – воды в пределах ореола растекания РАО; 3 – атмосферные осадки и воды р. Томи; 4 – линия аппроксимации точек, относящихся к ореолу растекания РАО; 5 – ГЛМВ.

голетней мерзлоты. В настоящее время на исследованной площади мерзлота отсутствует, однако островная мерзлота обнаружена примерно в 350 км севернее в долине р. Кеть. Максимум ледового цемента приурочен к интервалу глубин 120–280 м [2], совпадая с положением II–IV горизонтов в разрезе исследуемого района.

Температурная палеорекострукция. На основе данных об изотопном составе воды может быть выполнена палеорекострукция среднеголетней температуры в период формирования подземных вод. Для определения температуры

Таблица 2. Расчетные данные по стабильным изотопам и Ag в подземных водах района г. Северска

Горизонт	Среднее по горизонтам		Расчетные палеотемпературы эпохи формирования подземных вод, °С	
	δ ¹⁸ O	δ ² H	среднегодовые (по δ ² H и δ ¹⁸ O)	сезона восполнения подземных вод (по Ag)
	‰			
V	-17.1	-128	-3.0	4.2
IV	-17.7	-135	-4.1	2.6
III	-17.8	-137	-4.4	-0.2
II	-17.7	-133	-3.9	1.4
I				2.0
Современные данные для района г. Северска*			-0.6	10.8

* – данные измерения местной метеостанции.

приземного слоя атмосферы использовались следующие соотношения [17]:

$$\delta^{18}\text{O} = 0.69t - 13.6\text{‰} \text{ и } \delta^2\text{H} = 5.6t - 100\text{‰}.$$

В результаты расчетов были также введены поправки согласно массиву данных по современным температурам и изотопному составу осадков для западносибирского региона [21].

Расчет среднегодовых температур в период формирования подземных вод с использованием данных из табл. 1 дает интервал $t = -3.0 \dots -4.4^\circ\text{C}$ (табл. 2), что значительно ниже современных среднегодовых значений $t = -0.6^\circ\text{C}$ в данном районе. Указанному интервалу соответствует, например, современный климат в Ханты-Мансийском автономном округе, где среднегодовые температуры варьируют в пределах $t = -2.9 \dots -4.7^\circ\text{C}$.

Выполненные расчеты определяют верхний предел палеотемператур. Обнаруженное отклонение экспериментальных точек, относящихся ко II и III горизонтам, вправо от ГЛМВ означает, что начальный изотопный состав воды (до замерзания) был легче измеренного. Соответственно, среднегодовая палеотемпература региона в период формирования вод II и III горизонтов была более низкой, чем расчетная.

Для определения температуры инфильтрационных вод могут быть использованы также благородные газы [20]. В настоящее время эта методика успешно применяется для палеорекострукций климата [14]. Инертные газы растворяются в инфильтрационных водах в строгом соответствии с температурой, атмосферным давлением и содержанием солей в воде (коэффициенты растворимости благородных газов табулированы). Для простых гидродинамических условий температуру, при которой происходила инфильтрация через зону аэрации, можно рассчитать по одному из газов, удобнее всего по наиболее распространенному из них – Ar. Следует подчеркнуть, что по сравнению с определением температуры инфильтрационных вод по изотопному составу воды, благородные газы указывают на среднюю температуру сезона восполнения, то есть только теплого периода года.

Для оценки температуры сезона инфильтрации было выполнено определение концентраций Ag в 49 скважинах. Результаты расчетов приведены в табл. 2. Интервал средних палеотемператур теплого сезона года в эпоху формирования подземных вод составил $t = -0.2 \dots +4.2^\circ\text{C}$. Эти величины ниже современной температуры теплого сезона года $t = +10.8^\circ\text{C}$ в исследуемом районе и также соответствуют современным климатическим условиям севера Западной Сибири, где в настоящее время обнаруживается многолетняя мерзлота.

Соотношение между среднегодовыми температурами и средними температурами сезона восполнения запасов подземных вод, когда первая оказывается ниже второй, является нормальным. В насто-

Таблица 3. Изотопный состав U в подземных водах района г. Северска

Скважина	Горизонт	$^{234}\text{U}/^{238}\text{U} \pm 2\sigma$	Среднее для горизонта	Скважина	Горизонт	$^{234}\text{U}/^{238}\text{U} \pm 2\sigma$	Среднее для горизонта
325p	V	1.74 ± 0.63	1.74	Г-26	III	1.94 ± 0.63	7.12
502p	V	1.74 ± 0.63		Р-33	III	4.73 ± 0.31	
С-14	IV	6.47 ± 0.79	6.76	Сн-94	III	14.7 ± 2.6	
См-4	IV	3.9 ± 1.1		Р-26	II	16.1 ± 3.9	9.28
Т-10	IV	9.9 ± 1.2		С-16	II	2.46 ± 0.22	

ящее время разница между этими температурами для севера Евразии обычно составляет 8–12°C. Возможно, в эпоху последнего похолодания, когда граница арктических пустынь располагалась южнее современного положения, эта разница была несколько меньше [1].

Реконструкция палеотемператур по данным о стабильных изотопах и благородных газов показывает их хорошую согласованность, как в общем ходе изменения расчетных температур в разрезе, так и по положению их минимума в III горизонте (табл. 2). В верхних горизонтах (буферном IV и эксплуатируемом на воду V), а также в породах фундамента расчетные палеотемпературы эпохи формирования подземных вод отличаются от характеристик пластов-коллекторов в сторону потепления.

Таким образом, природные воды пластов-коллекторов, обнаруженные в настоящее время в районе полигона захоронения РАО СХК, сформировались непосредственно в начале постгляциального периода за счет таяния мерзлоты. Для Земли в целом начало повышения среднегодовых температур приземных слоев атмосферы и окончание последнего ледникового периода произошло 12–15 тыс. лет назад [1]. Следовательно, к этому или несколько более позднему периоду следует отнести период таяния мерзлоты и формирования исследуемых водоносных горизонтов.

Четные изотопы урана ($^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$). Природные воды, как правило, обогащены ^{234}U относительно равновесного значения $^{234}\text{U}/^{238}\text{U} = 1$ (по активностям). В целом для Земли в подавляющем большинстве случаев вариации изотопного состава U лежат в пределах $^{234}\text{U}/^{238}\text{U} \sim 0.8\text{--}2$ и являются результатом радиокинетического разделения изотопов ряда ^{238}U [12, 13, 18]. Разделение обусловлено разрушением кристаллической решетки минералов при радиоактивном распаде $^{238}\text{U} > ^{234}\text{Th} > ^{234}\text{Pa} > ^{234}\text{U} > \dots$ и последующим преимущественным выщелачиванием ^{234}U из кристаллической матрицы пород.

В некоторых случаях обогащение по ^{234}U достигает значительных величин, максимальные избытки ^{234}U обнаружены в подземных водах о-ва Сааремаа (Эстония) $^{234}\text{U}/^{238}\text{U} \approx 54$ [5]. Причиной столь

больших обогащений является нахождение пород в мерзлом состоянии в течение последнего ледникового периода [22]. Согласно предложенной модели в период существования мерзлоты происходит накопление ^{234}U в породной матрице и незамерзающей пленочной влаге, его отток в поровое пространство блокирован в связи с нахождением гравитационной воды в твердом состоянии. Сразу вслед за возобновлением водообмена ^{234}U , накопленный за время существования мерзлоты, переходит в талые воды, что приводит к резкому росту $^{234}\text{U}/^{238}\text{U} > 5\text{--}6$. Как показывают расчеты, большие избытки ^{234}U сохраняются относительно непродолжительное время [9]. Во вновь поступающих инфильтрационных водах изотопный состав U быстро возвращается к равновесным значениям в связи с относительно медленным диффузионным переносом U в минеральной матрице и обменом $^{234}\text{U}_{\text{воды}}$ на $^{238}\text{U}_{\text{породы}}$, так как равновесная распространенность последнего в водовмещающих породах примерно в $n \times 10^4$ раз больше, чем первого.

Концентрации U в подземных водах вокруг полигона захоронения вне пределов ореола растекания РАО были измерены методом ICP MS (предел обнаружения 0.01 мкг/л, опробовано 163 скважины). Оказалось, что фоновые концентрации U низки, поэтому для изотопного анализа отбирались пробы объемом от 200 до 1300 л. Измеренный изотопный состав U варьирует от 1.74 до 16.1 (табл. 3), демонстрируя составы как близкие к равновесным, так и весьма обогащенные ^{234}U .

В V горизонте, используемом для водоснабжения, обнаруживается практически равновесный по изотопному составу U. Это хорошо согласуется с данными по $\delta^2\text{H}$, $\delta^{18}\text{O}$, Ar и ^3H , указывая на постгляциальный генезис этих вод и на наличие некоторой доли современного инфильтрационного питания в водном балансе горизонта. Отношение $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ растет с глубиной, начиная с буферного горизонта IV. Поскольку тритий в IV горизонте отсутствует, а изотопный состав U сильно варьирует, то горизонт, по-видимому, содержит смесь талых мерзлотных (с высокими отношениями $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$) и постгляциальных инфильтрационных

вод (с низкими отношениями $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$), поступивших в подземную гидросферу до 1952 г.

В пластах-коллекторах РАО (II и III горизонты) обращает на себя внимание сильный разброс изотопного состава урана. Несмотря на малый объем опробования, можно отметить, что пространственное распределение изотопного состава урана в этих горизонтах имеет определенные закономерности. Максимальные обогащения ^{234}U отмечаются в интервалах, расположенных на глубинах 250–350 м. Близкие к равновесным составам значения обнаруживаются в области, где глубина залегания II и III горизонтов превышает 400 м. Следовательно, воды на глубинах >400 м не подвергались замораживанию и не входили в состав толщи многолетнемерзлых пород. Это позволяет предположить, что нижняя граница мерзлой зоны в период последнего оледенения располагалась на глубине около 350 м от поверхности земли.

Объем опробования не позволяет оценить положение фронта вытеснения талых вод инфильтрационными по латерали, ясно только, что он находится за пределами области опробования, которая оканчивается в 14 км выше от полигона захоронения выше по потоку подземных вод.

ВЫВОДЫ

В подземных водах в районе полигона захоронения РАО СХК измерены концентрации и изотопный состав ряда элементов ($\delta^2\text{H}$, $\delta^{18}\text{O}$, $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$, Ar, ^3H). ореол растекания РАО четко маркируется тритием, так как в пластах-коллекторах его природные концентрации равны нулю, а в РАО достигают $n \times 10^4$ ТЕ. По $\delta^2\text{H}$ и $\delta^{18}\text{O}$ РАО значительно отличаются от природных вод в связи с тем, что в технологическом цикле происходит сильное упаривание технологических растворов. Следовательно, $\delta^2\text{H}$, $\delta^{18}\text{O}$ и ^3H могут быть использованы для мониторинга ореола растекания РАО.

Современный изотопный состав атмосферных осадков в регионе составляет $\delta^2\text{H} = -117$ и $\delta^{18}\text{O} = -15.7\text{‰}$, среднегодовая температура -0.6°C , средняя температура теплого периода года $+10.8^\circ\text{C}$. В подземных водах II–V горизонтов изотопный состав $\delta^2\text{H} = -127 \dots -140$ и $\delta^{18}\text{O} = -17.0 \dots -18.2\text{‰}$, что указывает на их формирование в холодном климате. Оценка среднегодовых палеотемператур дает интервал $t = -3.0 \dots -4.4^\circ\text{C}$ (по $\delta^2\text{H}$ и $\delta^{18}\text{O}$), а палеотемператур теплого периода года дает интервал $t = -0.2 \dots +4.2^\circ\text{C}$ (по Ar). Оба расчетных интервала соответствуют современному климату северной части Западной Сибири.

Смещение изотопного состава природных вод ($\delta^2\text{H}$ и $\delta^{18}\text{O}$) относительно глобальной линии метеорных вод в сторону утяжеления объясняется изотопным фракционированием при замерзании воды в ходе становления тощи многолетнемерзлых пород в период последнего ледникового похолодания.

Изотопный состав U варьирует от почти равновесных значений $^{234}\text{U}/^{238}\text{U} = 1.74$ в верхнем горизонте V до $^{234}\text{U}/^{238}\text{U} = 16.1$ в нижних и объясняется обогащением талых вод ^{234}U в ходе деградации мерзлоты. Нижняя граница мерзлоты, судя по вариациям изотопного состава U в разрезе, находилась на глубине около 350 м от поверхности земли.

Таким образом, три изотопные системы согласованно указывают на формирование подземных вод в холодных климатических условиях и на наличие талых вод, образовавшихся в ходе деградации мерзлых пород. Данное обстоятельство следует учитывать при создании и верификации фильтрационных и миграционных моделей с целью долгосрочного прогноза воздействия полигона захоронения РАО СХК на природную среду.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Васильчук Ю.К., Котляков В.М. Основы изотопной геокриологии и гляциологии. М.: Изд-во МГУ, 2000. 614 с.
2. Евсеева Н.С. Атлас Томской области. Томск: Изд-во Томского ун-та, 1998. 52 с.
3. Кришук Л.Н., Поляков В.А. Изотопный и химический состав подземных льдов и природных вод Западной Сибири. Обзор. М.: Геоинформмарк, 2005. 52 с.
4. Кузнецов В.Ю., Арсланов Х.А., Шилов В.В. и др. Распределение урана и тория в металогенных осадках из гидротермальной зоны Северной Атлантики // Радиохимия. 2000. № 6. с. 565–568.
5. Поляков В.А. Криогенная метаморфизация изотопного состава подземных вод в областях развития многолетнемерзлых пород // Тез. докл. XIV симпозиума по геохимии изотопов. М.: ГЕОХИ, 1995. С. 168–169.
6. Поляков В.А., Ткаченко А.Е., Криштал Н.Н. Исследование гидрогеологических и инженерно-геологических объектов геофизическими и изотопными методами. М.: ВСЕГИНГЕО, 1988. 341 с.
7. Природные изотопы гидросферы / Под ред. Ферронского В.И. М.: Недра, 1975. 277 с.
8. Рыбальченко А.И., Пименов М.К., Костин П.П. и др. Глубинное захоронение жидких радиоактивных отходов. М.: АТ, 1994. 256 с.
9. Токарев И.В., Хархордин И.Л., Поляков В.А. и др. Изучение поведения $\delta^2\text{H}$ – $\delta^{18}\text{O}$ и $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ изотопных систем в посткриогенный период на численных моделях фильтрации. / Тез. докл. конф. “Приоритетные направления в изучении криосферы Земли”. Пушино, 2005. С. 54–55.
10. Ферронский В.И., Поляков В.А., Романов В.В. Космогенные изотопы гидросферы. М.: Наука, 1984. 268 с.
11. Фор Г. Основы изотопной геологии. М.: Мир, 1989. 590 с.
12. Чалов П.И. Изотопное фракционирование природного урана. Фрунзе: Илим, 1975. 204 с.
13. Чердынцев В.В. Уран-234. М.: Атомиздат, 1967. 238 с.
14. Aeschbach-Hertig W., Peeters F., Beyerly U., Kipfer R. Interpretation of dissolved atmospheric noble gases in

- natural waters // *Water Resour. Res.* 1999. V. 35. № 9. P. 2779–2792.
15. *Blackham W.C.Jr.* Basic Hazardous Waste Management. N.Y.: Lewis Publ., 2001. 488 p.
16. *Craig H.* Isotopic variations in meteoric waters. // *Science*. 1961. V. 133. № 3464. P. 1702–1703.
17. *Dansgaard W.* Stable isotopes in precipitation // *Tellus*. 1964. V. 16. № 4. P. 436–463.
18. Uranium series disequilibrium: Applications to problems in earth sciences / Eds. Ivanovich M., Harmon R.S. Oxford: Clarendon Press, 1992. 571 p.
19. *Kamensky I.L., Tokarev I.V., Tolstokhin I.N.* ^3H - ^3He dating: a case for mixing of young and old groundwaters // *Geochim. Cosmochim. Acta*. 1991. V. 55. № 10. P. 2895–2900.
20. *Mazor E.* Paleotemperatures and other hydrological parameters deduced from noble gases dissolved in groundwaters; Jordan Rift Valley, Israel // *Geochim. Cosmochim. Acta*. 1972. V. 36. Issue 12. P. 1321–1336.
21. Statistical treatment of data on environmental isotopes in precipitation // *Tech. Rep. IAEA*. 1992. № 331. 687 p.
22. *Tokarev I.V., Zubkov A.A., Rumynin V.G. et al.* Origin of high $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ ratio in post-permafrost aquifers. // *Uranium in the Environment (Mining Impact and Consequences)* / Eds. Merkel B.J., Hasche-Berger A. Freiberg: Springer, 2005. P. 854–863.