

Колябіна І.Л., Шабалін Б.Г., Перкатий К.Є.

Інститут геохімії навколишнього середовища НАН України

ОЦІНКА КОЕФІЦІЄНТІВ РОЗПОДІЛУ U, Pu, Np, Am, Cs та Tc В КРИСТАЛІЧНИХ ПОРОДАХ ПОТЕНЦІЙНИХ ДІЛЯНОК РОЗМІЩЕННЯ ГЕОЛОГІЧНОГО СХОВИЩА В УКРАЇНІ

Наведено результати оцінки коефіцієнтів розподілу U, Pu, Np, Am, Cs та Tc в кристалічних породах потенційних ділянок розміщення геологічного сховища в Україні. Встановлено, що середні величини коефіцієнтів розподілу, обчислені на основі опублікованих експериментальних даних, отриманих за умов, наближених до потенційних умов майбутнього геологічного сховища в Україні, збільшуються у рядку Tc-oxi < Np(V) < U(VI) < Pu-oxi < Tc-red < Cs < U(IV) < Pu-red < Np(IV) < Am. Показано, що в умовах гранітів та гранітоїдів, нептуній відноситься до радіонуклідів, що слабо та середньо поглинаються, уран та цезій – до радіонуклідів, що середньо та сильно поглинаються, а америцій та плутоній – до радіонуклідів, що поглинаються сильно.

Вступ

Загальновізнана концепція захоронення твердих та отверджених радіоактивних відходів (РАВ) у глибокі геологічні формації (геологічні сховища – ГС) передбачає створення багатобар'єрної системи ізоляції біосфери від біологічно небезпечних радіонуклідів, що входять до складу РАВ. Така система включає, поряд зі штучними бар'єрами, природний бар'єр – породи гірського масиву, що оточують ГС. Гірські породи повинні забезпечувати утримання довгоіснуючих радіонуклідів у межах обмеженого за розмірами відчужуваного блоку гірського масиву (ближня зона сховища).

Утримуючі властивості гірських порід визначаються їхніми гідроізолюючими властивостями та здатністю «втягувати» радіонукліди у фізико-хімічні і геохімічні процеси, що відбуваються у літосфері. Одним із фізико-хімічних процесів утримання радіонуклідів породами (мінералами) є процес їх міжфазового розподілу під час контакту підземних вод з породами.

На сьогодні у країнах, де проектується і створюються ГС (США, Канаді, Швеції, Фінляндії та ін.), зібрана величезна інформація й проводяться науково-дослідні роботи з оцінки сорбційно-бар'єрних властивостей різних порід (туфів, сольових відкладів, кристалічних та глинистих порід), зокрема, і по визначенню коефіцієнтів розподілу радіонуклідів для використання під час аналізу безпеки ГС.

В Україні така інформація для гранітоїдів Коростенського плутону, які розглядаються як перспективне вмістилище ГС, відсутня. Цим повідомленням автори започатковують публікацію низки статей з цієї проблематики.

Мета статті – викладення результатів дослідження щодо оцінки коефіцієнтів розподілу Tc, U, Pu, Np, Am та Cs в кристалічних породах потенційних ділянок розміщення геологічного сховища в Україні.

Методи дослідження та їх обґрунтування

Аналіз досвіду країн, які пройшли значний шлях в напрямку створення ГС РАВ показав, що важливими параметрами, які використовуються в аналізі безпеки сховищ, є коефіцієнти розподілу радіонуклідів у геологічному середовищі. У США, Канаді, Швеції, Фінляндії та інших країнах проведена значна робота щодо узагальнення таких даних стосовно як порід, так й окремих мінералів, що входять до їх складу. Цьому питанню у різні роки присвячена ціла низка звітів, в яких наведені дані, отримані дослідниками в багатьох країнах. Звіти значно різняться як за переліком радіонуклідів, переліком порід та мінералів, так і за детальністю наведеної інформації та методами її опрацювання. Це визначається законодавчо-нормативною базою країн (визначає контекст аналізу безпеки), типом РАВ (перелік радіонуклідів), конструкцією сховищ, типом

вмісних порід. Крім того, за останні декілька десятиріч проведені дослідження щодо визначення коефіцієнтів розподілу для конкретних порід, які є потенційним середовищем для розміщення сховищ РАВ: для туфів та сольових відкладів – у США, для кристалічних порід – Канаді, Швеції, Фінляндії, Японії, Кореї та, частково, Іспанії та США, для глинистих порід – у Франції, Швейцарії, Бельгії та ін. В Україні, як потенційне середовище розміщення ГС РАВ, розглядаються кристалічні породи. Найбільш близькими за концепцією до майбутнього ГС в Україні вважаються проекти геологічних сховищ Швеції та Фінляндії. Виходячи із досвіду цих країн, найбільш важливими для аналізу безпеки ГС радіонуклідами є Тс, U, Pu, Np і, частково, Cs та Am. Зазначені радіонукліді по різному фіксуються в геологічному середовищі, зокрема Cs, Pu, Am – сорбуються сильно, U(VI), Np(V) за окиснювальних умов сорбуються середньо або слабо, а за відновних умов є слабо рухливими елементами. За відновних умов Тс відноситься до слабо рухливих елементів (прийнято при оцінці безпеки ГС в Швеції), за окиснювальних – взагалі не сорбується.

Коефіцієнти розподілу можуть бути отримані кількома способами [1, 2]:

- експериментальним шляхом у лабораторних умовах або *in situ*;
- на основі даних фізико-хімічного моделювання (моделі іонного обміну, поверхневого комплексоутворення та ін.);
- на основі емпіричних моделей, які зв'язують величини Kd з характеристиками порід.

На стадії вибору майданчика для спорудження ГС найбільш виправданим та обґрунтованим є останній підхід. У даній роботі зроблена одна з перших спроб системного аналізу опублікованих даних щодо величин Kd Тс, U, Pu, Np, Cs та Am з точки зору можливості їх використання для попередньої оцінки безпеки ГС в Україні. У результаті були:

- обчислені середні величини коефіцієнтів розподілу зазначених елементів в гранітах та гранітоїдах за умов, що були наближені до умов гранітів та гранітоїдів Коростенського плутону;
- виконана попередня оцінка коефіцієнтів розподілу Тс, U, Pu, Np, Am та Cs в кристалічних породах потенційних ділянок розміщення ГС в Україні за допомогою емпіричних моделей.

Обчислення середніх величин коефіцієнтів розподілу Тс, U, Pu, Np, Am та Cs в гранітах та гранітоїдах проведено на основі розширеної моделі, розробленої в SKB, Швеція [2]. У запропоновану модель включено низку додаткових чинників (вміст польових шпатів у породі, загальний вміст катіонів у підземних водах). Коефіцієнти моделі визначено на основі експериментальних даних щодо сорбції Cs гранітоїдами [Швеції (SKB) та Фінляндії (POSIVA)] з урахуванням також коефіцієнтів розподілу Cs в гранітах та гранітоїдах, отриманими у роботі [3].

Результати та їх обговорення

Аналіз опублікованих даних показав, що величини коефіцієнти розподілу Тс, U, Pu, Np, Cs та Am, наведені в різних джерелах значно відрізняються і залежать від [2, 4-13]:

- особливостей мінерального складу гранітів та гранітоїдів;
- співвідношення розчин / тверда фаза;
- розміру фракції, для якої визначалися Kd;
- величини рН, за яких виконувалось визначення Kd (особливо для Тс, U, Pu, Np, Am, в меншому ступені – для Cs);
- величини окиснювально-відновлювального потенціалу (особливо для Тс, U, Pu, Np);
- іонної сили розчину, в якому визначалися Kd (особливо для Cs)
- початкової концентрації радіонуклідів (особливо для Cs);

Для обчислення середніх величин коефіцієнтів розподілу Тс, U, Pu, Np, Cs та Am використані Kd, які були визначені за наступних експериментальних умов:

- величини рН, за яких проводили визначення Kd, знаходяться в інтервалі 6-9 (найбільш вірогідні величини для тріщинних вод кристалічних порід Коростенського плутону);

- $C_{Pu}^{поч}, C_{Am}^{поч} \leq 1 \times 10^{-8}$ М/л, $C_U^{поч}, C_{Np}^{поч}, C_{Tc}^{поч}, C_{Cs}^{поч} \leq 1 \times 10^{-6}$ М/л (найбільш вірогідні концентрації радіонуклідів у підземних водах у разі їх виходу із системи інженерних бар'єрів);
- поглинання радіонуклідів відбувається із розчинів з середніми та низькими іонними силами (для кристалічних порід Коростенського плутону характерні води з невисокою мінералізацією);
- враховували дані для гранітів та гранітоїдів, які за мінеральним складом якісно відповідають складу кристалічних порід Коростенського плутону.

Результати аналізу показали (табл. 1, рис. 1), що середні величини коефіцієнтів розподілу збільшуються в рядку $Tc\text{-oxi} < Np(V) < U(VI) < Pu\text{-oxi} < Tc\text{-red} < Cs < U(IV) < Pu\text{-red} < Np(IV) < Am$. Максимальна величина K_d отримана для Am ($\log K_d = 4,5$), а мінімальна – для Tc за окиснювальних умов ($K_d=0$).

Таблиця 1. Значення $\log K_d$ Tc , U , Pu , Np , Cs та Am в гранітах та гранітоїдах,

Елемент	Середнє	Мінімум	Максимум	Стд. відхилення	Кількість точок	Джерела даних
U(VI)	1,204	0,6	1,987	0,541	7	[3-6]
U(IV)	3,095	2,813	3,699	0,159	33	[4, 5, 7]
Np(IV)	3,157	3,041	3,699	0,148	19	[4, 5, 7]
Np(V)	1,196	0,114	2	0,321	45	[4, 5, 7]
Pu-red	3,12	2,477	4,255	0,367	96	[4, 7-8]
Pu-oxi	2,481	1,4	3,82	0,573	35	[4, 9]
Am	3,975	3,398	4,5	0,37	8	[4, 5]
Tc-oxi	-0,087	-0,699	0	0,247	8	[4, 5, 8, 10]
Tc-red	2,542	0,602	3,079	0,625	23	[5, 7, 10]
Cs	2,629	1,279	3,982	0,535	167	[3, 4, 6-8, 10, 11-13]

Примітка. red – коефіцієнти розподілу, визначені для відновних умов; oxi – коефіцієнти розподілу, визначені для окиснювальних умов; K_d в л/кг.

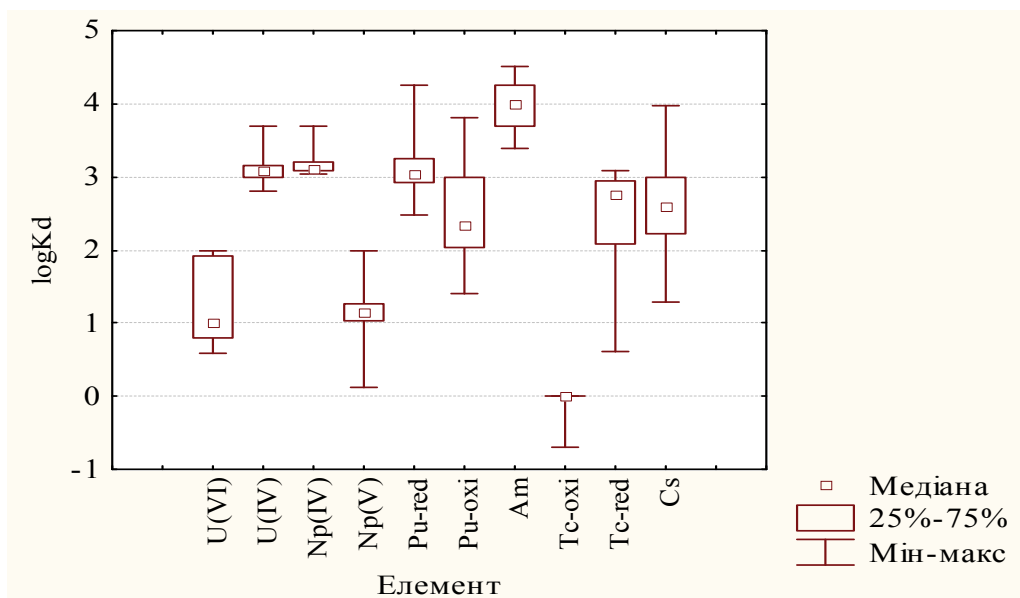


Рис. 1. Діаграма розмаху коефіцієнтів розподілу Tc , U , Pu , Np , Am та Cs в гранітах та гранітоїдах

Найбільші відхилення від середнього значення спостерігаються для $\log K_d$, отриманих для Tc за відновних умов, найменші – для Np (IV) (рис. 1, табл. 1). Середні величини K_d U , Pu , Np , Cs ближчі до максимальних значень, для Tc – до мінімальних (рис. 1).

Оцінка коефіцієнтів розподілу актинідів (U, Pu, Np, Am) та Cs в гранітах та гранітоїдах Коростенського плутону

Для оцінки коефіцієнтів розподілу актинідів (U, Pu, Np, Am) в гранітах та гранітоїдах використана модель, розроблена в SKB [2]:

$$\log K_d = a \cdot pH^2 + b \cdot pH + c + \log(m \cdot Q + n \cdot D + o) \quad (1)$$

де a, b, c, m, n, o – емпіричні коефіцієнти, приведені у табл. 2; Q – частка кварцу в породі; D – частка темно кольорових мінералів в породі.

У даній моделі до темно кольорових мінералів відносять не тільки біотит, амфіболи та ін., але й інші мінерали групи слюд та гідрослюд (хлорит, іліт, серицит та ін.), які є гарними потенційними сорбентами радіонуклідів [2].

Таблиця 2. Значення емпіричних коефіцієнтів рівняння (1) [2]

Елемент	a	b	c	m	n	o
U(VI)	-0,0349	0,483	1,31	-0,26	1,53	0,71
Np(V)	0,469	-6,759	25,47	-0,26	1,80	0,71
Pu*	-0,0699	1,049	-0,22	-0,35	5,60	0,71
Am(III)	-0,0562	1,207	-2,13	-0,62	1,80	0,71

Примітка.* передбачалось, що Pu знаходиться, головним чином, у вигляді Pu (IV), хоча є вірогідність, що частина плутонію знаходиться у вигляді Pu (V)

Оскільки Cs добре сорбується польовими шпатами та його поглинання істотно залежить від вмісту конкуруючих катіонів у розчині [5, 10], то для оцінки коефіцієнтів розподілу Cs в гранітах та гранітоїдах в запропоновану для прогнозування коефіцієнтів розподілу актинідів модель включено додаткові чинники (вміст польових шпатів у породі та загальний вміст катіонів у підземних водах). Коефіцієнти моделі визначені на основі експериментальних даних щодо сорбції Cs кристалічними породами, отриманих в Швеції (SKB), Фінляндії (POSIVA) та США. З урахуванням вищезазначеного, рівняння (1) набуло вигляду:

$$\log K_d = a \cdot pH^2 + b \cdot pH + c + \log(m \cdot Q + n \cdot D + o + q \cdot Mc + p \cdot Pl) + f \cdot \log(Cat^2) + e \cdot \log(Cat) \quad (2)$$

де $a, b, c, m, n, o, q, p, f, e$ – емпіричні коефіцієнти, приведені у табл. 3; Q – частка кварцу в породі; D – частка темно кольорових мінералів в породі; Pl – частка плагіоклазу в породі; Mc – частка мікрокліну в породі; Cat – сума концентрацій катіонів у підземних водах, мг/л.

Коефіцієнти моделі (табл. 3), отримані в даній роботі на основі експериментальних даних, наведених у роботах [3, 7, 12, 13].

Таблиця 3. Значення емпіричних коефіцієнтів рівняння (2)

a	b	c	m	n	o	q	p	f	e
-0,234	3,752	-13,603	-12,029	-11,768	11,691	-11,854	-11,014	-12,029	-11,768

Вихідні дані для оцінки коефіцієнтів розподілу

Як видно із рівняння (1) вихідними даними для оцінки є частка кварцу та темнокольорових мінералів (біотиту, амфіболів, хлоритів, ілітів, серициту та ін.), плагіоклазу та мікрокліну в породі, а також величини рН підземних вод та сума концентрацій катіонів у воді.

Оцінка коефіцієнтів розподілу актинідів та Cs була виконана для порід двох свердловин (№ 50 та № 35), розташованих у північній частині Українського щита на ділянці, що охоплює частину північно-східного схилу Коростенського плутону (ділянка Поліська), який є частиною борту Вільчанської западини. Зазначена площа впритул прилягає до території ЧЗВ, яка на даний час розглядається як потенційне місце створення ГС РАВ.

Вихідні дані для оцінки коефіцієнтів розподілу U, Pu, Nr, Am та Cs в породах свердловин № 50 та № 35 підготовані на основі фондових матеріалів партії № 49 (описи шліфів). Оцінка коефіцієнтів розподілу U, Pu, Nr, Am та Cs для порід свердловини 50 виконана для глибин 244-380,5 м (табл. 4), свердловини 35 – 298-500 м (табл. 5).

Таблиця 4. Вихідні дані для оцінки коефіцієнтів розподілу U, Pu, Nr, Am та Cs для порід свердловини 50

Глибина, м	Порода	Частка мінералів у породі			
		Кв	Тк	КПШ	Пл
244	Подрібнений (катаклазований?) та сильно, майже повністю серитизований граніт	0,10-0,15	0,80	-	-
		0,125			
357	Мігматит? Граніт мусковіт-біотитовий	0,10-0,15	0,10-0,15	0,59	0,15
		0,125	0,125		
360	Граніт апліт-пегматоїдний, біотитовий, лейкократовий	0,30	0,02-0,05	0,63	0,015
			0,035		
380,5	Граніт пегматоїдний і ділянками аплітовидний	0,30	0,01	0,60	0,05-0,10
					0,075

Примітка тут і у таблиці 5. Кв – частка кварцу в породі, позначена Q у рівняннях (1, 2); Тк – частка темно кольорових мінералів (біотиту, амфіболів, хлоритів, ілітів, серициту та ін.), позначена Q у рівняннях (1, 2); КПШ – частка калієвих польових шпатів (мікрокліну) у породі, позначена Mc у рівнянні (2); Пл – частка плагіоклазу в породі, позначена P1 у рівнянні (2)

Таблиця 5. Вихідні дані для оцінки коефіцієнтів розподілу U, Pu, Nr, Am та Cs для порід свердловини 35

Глибина, м	Порода	Частка мінералів у породі			
		Кв	Тк	КПШ	Пл
298	Кварцовий діорит біотитовий діафорично змінений	0,07-0,10	0,07-0,10		0,80
		0,085	0,085		
305,5	Плагіоклазит лейкократовий діафорично змінений	0,02-0,03	0,06-0,09		0,85-0,90
		0,025	0,075		0,875
309	Діорит біотитовий діафорично змінений	0,02-0,03	0,07-0,08		0,90
		0,025	0,075		
313	Кварцовий діорит біотитовий діафорично змінений	0,10-0,15	0,03-0,05		0,80
		0,125	0,04		
327	Кварцовий діорит лейкократовий	0,07-0,10	0,01-0,02		0,90
		0,085	0,015		
338	Граніт біотитовий слабо діафорично змінений	0,20-0,25	0,05-0,07	0,40	0,30
		0,225	0,06		
373	Граніт біотитовий діафорично змінений	0,25-0,30	0,03-0,05	0,35	0,30-0,35
		0,275	0,04		0,325
421	Граніт біотитовий слабо діафорично змінений	0,20-0,25	0,05-0,07	0,35	0,30
		0,225	0,06		
445	Граніт лейкократовий	0,25-0,30		0,20-0,25	0,50
		0,275		0,225	
449	Граніт біотитовий слабо діафорично змінений	0,25-0,30	0,05-0,07	0,40-0,45	0,20-0,25
		0,275	0,06	0,425	0,225
451,9	Граніт біотитовий лейкократовий діафорично змінений	0,20-0,25	0,03-0,05	0,45	0,20-0,25
		0,225	0,04		0,225
453	Плагіоклазит діафорично змінений		0,01-0,02		0,90
			0,015		
458	Кварцовий діорит біотитовий діафорично змінений	0,05-0,07	0,07-0,10		0,85
		0,06	0,085		
463	Граніт біотитовий лейкократовий діафорично змінений	0,25-0,30	0,03-0,05	0,45	0,20-0,25
		0,275	0,04		0,225
497	Граніт пегматоїдний біотитовий лейкократовий	0,20-0,25	0,02-0,03	0,10-0,15	0,55-0,60
		0,225	0,025	0,125	0,575
500	Граніт біотитовий лейкократовий інтенсивно діафорично змінений	0,20-0,25	0,04-0,07	0,58	0,10-0,15
		0,225	0,055		0,125

Наявні дані щодо величин рН у тріщинних водах гранітів та гранітоїдів Коростенського плутону дуже обмежені. У даній роботі використані величини рН, визначені в гідрохімічних свердловинах Овруцького району Житомирської області [3]. Згідно [3] величини рН знаходяться в інтервалі 6,05 ÷ 8,2. Оскільки величини рН точно не визначені, коефіцієнти розподілу обчислені для рН 6; 6,5; 7,0; 7,5; 8,0 та 8,5.

Суму концентрацій катіонів у тріщинних водах гранітів задавали як середню величину за даними гідрохімічних свердловин Овруцького району Житомирської області [3], яка складала 129,17 мг/л.

Результати обчислення коефіцієнтів розподілу U, Pu, Np, Am та Cs в породах свердловини 50 показали, що мінімальні Kd характерні для Np (V), а максимальні – для Pu(IV) (рис. 2а). У цілому на всіх глибинах коефіцієнти розподілу збільшуються у рядку Np (V) < Cs < U (VI) < Am < Pu (IV). Деяка відмінність від порядку збільшення середніх величин Kd (Np (V) < U (VI) < Cs < Pu(IV) < Am) пояснюється досить високим вмістом темнокольорових мінералів в породах свердловини (особливо серициту), який визначає більш високі коефіцієнти розподілу Cs, та, вірогідно, Am.

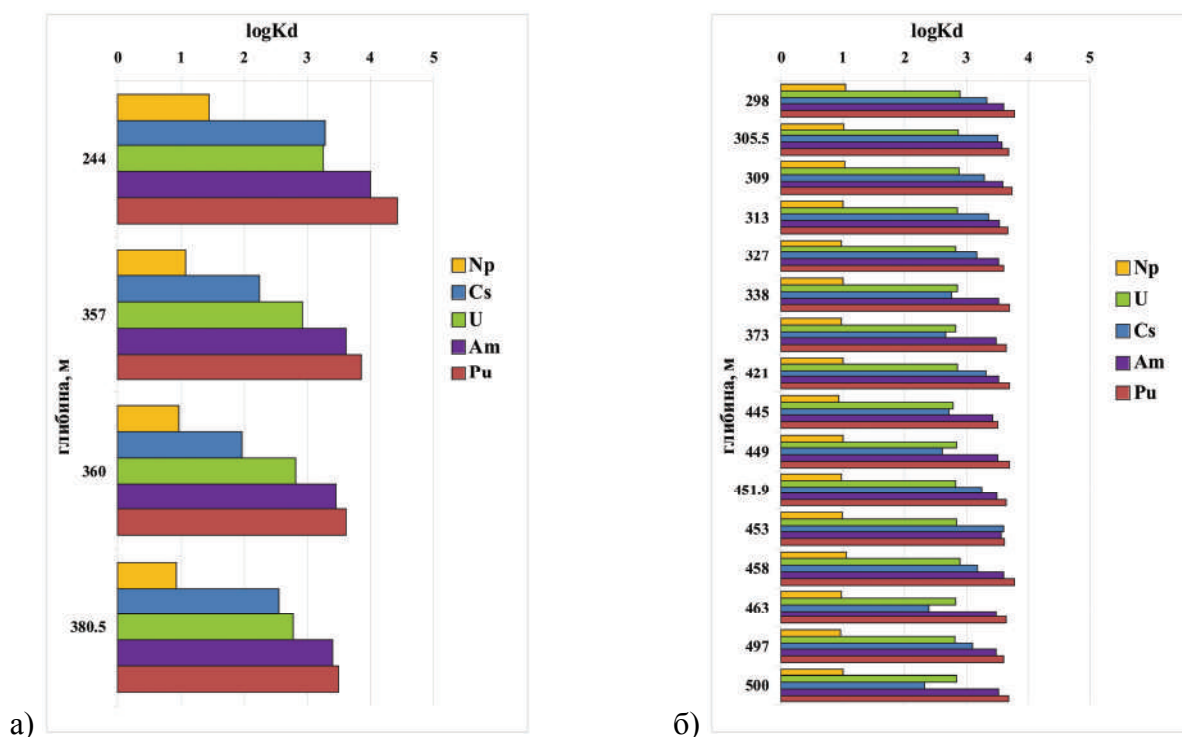


Рис. 2. Коефіцієнти розподілу U, Pu, Np, Am та Cs в гранітах та гранітоїдах при рН=7.5: а) – свердловина 50; б) – свердловина 35

Коефіцієнти розподілу U, Pu, Np, Am та Cs в породах свердловини 35 нижчі за коефіцієнти розподілу в породах свердловини 50 (рис. 2), що зумовлюється більш високим вмістом темно кольорових мінералів в породах свердловини 50. Мінімальні величини Kd отримані для Np (V), а максимальні – для Pu (IV) (рис. 2б). У цілому на всіх глибинах коефіцієнти розподілу збільшуються у рядку Np(V) < U (VI) < Cs < Am < Pu (IV), що, за винятком Am, співпадає з порядком збільшення середніх величин Kd (Np (V) < U (VI) < Cs < Pu (IV) < Am).

Слід також зазначити, що для порід свердловини 50 спостерігається стійка тенденція до зменшення коефіцієнтів розподілу всіх радіонуклідів із глибиною, у той час, як для порід свердловини 35 величини Kd практично однакові на всіх глибинах, що зумовлюється майже однаковим вмістом темнокольорових мінералів в породах свердловини 35 на всіх глибинах

та зменшенням вмісту темнокольорових мінералів в породах свердловини 50 від 80 % на глибині 244 м до 1 % на глибині 380,5 м (табл. 4, 5).

Величина рН по різному впливає на коефіцієнти розподілу U, Pu, Np, Am та Cs. Величини Kd U в породах свердловин 35 та 50 збільшуються зі збільшенням рН від 6 до 7 та зменшуються при рН > 7 (рис. 3), Kd Pu збільшуються зі збільшенням рН від 6 до 7,5 та зменшуються при рН > 7.5 (рис. 4), Kd Np зменшуються при збільшенні рН від 6 до 7 та збільшуються при рН > 7 (рис. 5), Kd Am збільшуються в усьому інтервалі величин рН (рис. 6).

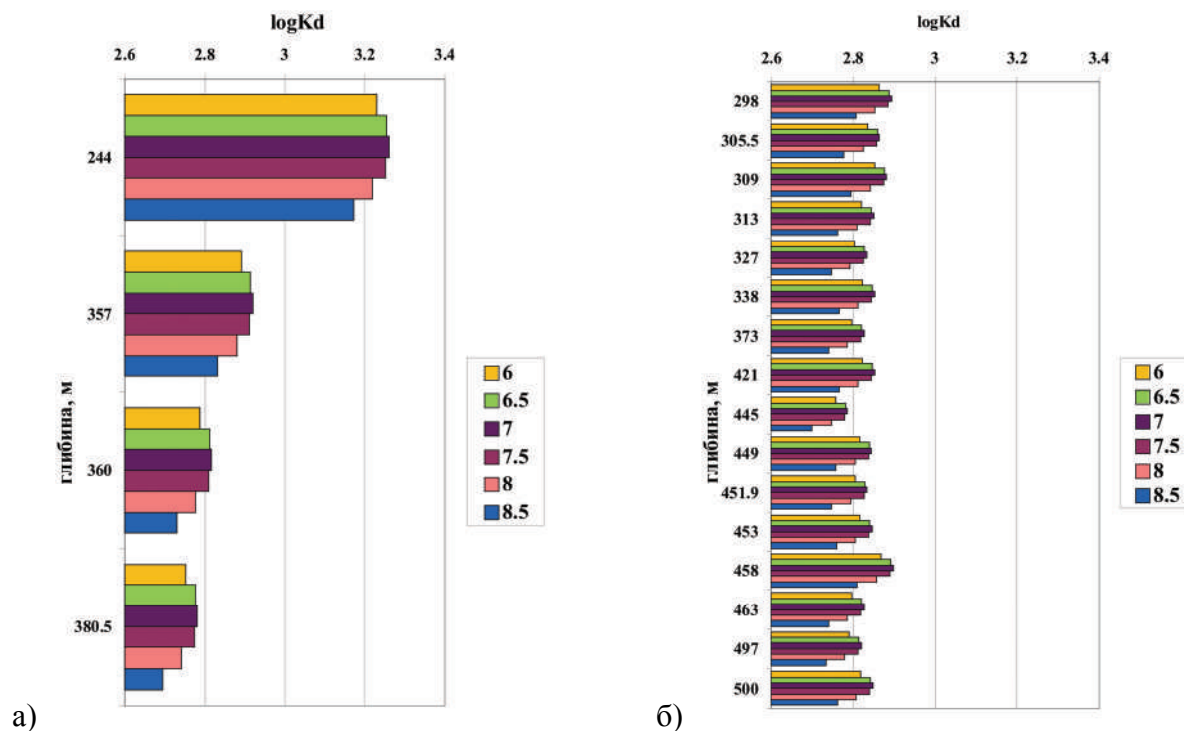


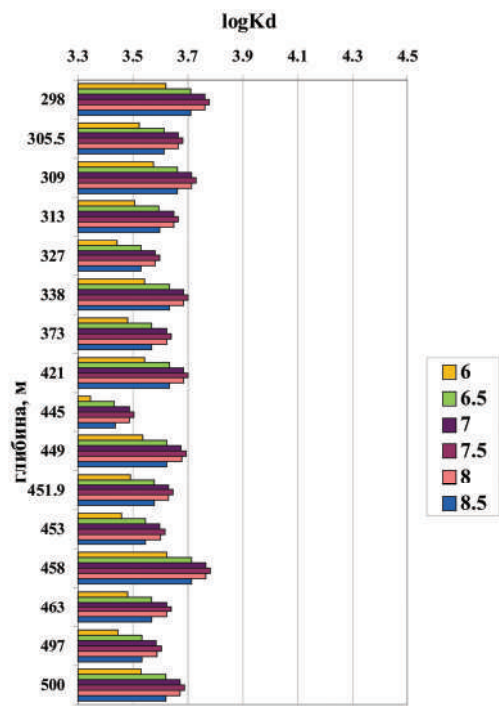
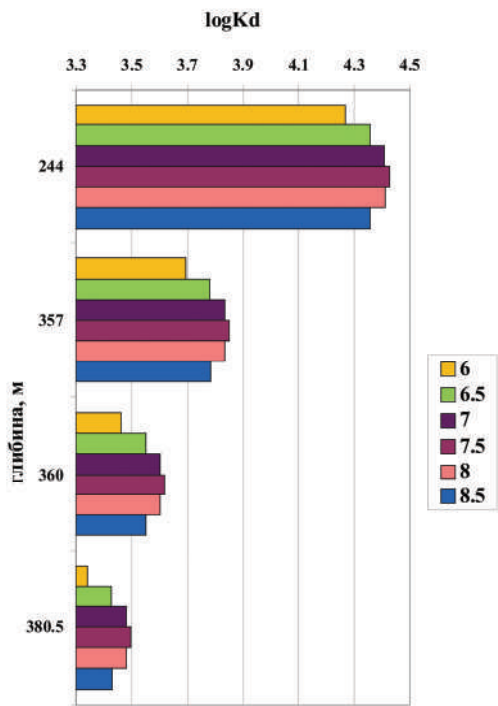
Рис. 3. Вплив величини рН на коефіцієнти розподілу U в гранітах та гранітоїдах:
а) – свердловина 50; б) – свердловина 35

Усереднення обчислених за рівняннями (1) та (2) коефіцієнтів розподілу по всім глибинам обох свердловин та по всім величинам рН показало, що середні величини, оцінені за результатами обчислень, добре співпадають із середніми величинами, обчисленими на основі опублікованих експериментальних даних (табл. 6), що свідчить про придатність використання зазначених моделей для попередньої оцінки коефіцієнтів розподілу, виходячи із мінімальної інформації щодо складу порід.

Таблиця 6. Результати порівняння середніх величин Kd, обчислених за рівняннями (1) та (2) з середніми величинами Kd, обчисленими на основі опублікованих експериментальних даних (див. табл. 1)

Елемент	logKd			Величини, обчислені за (1) та (2)
	Обчислені за опублікованими даними			
	Середнє	Мінімум	Максимум	
U(VI)	1,204	0,6	1,987	2,85
U(IV)	3,095	2,813	3,699	
Np(IV)	3,157	3,041	3,699	1,27
Np(V)	1,196	0,114	2	
Pu-red	3,12	2,477	4,255	3,66
Pu-oxi	2,481	1,4	3,82	
Am	3,975	3,398	4,5	3,51
Cs	2,629	1,279	3,982	2,78

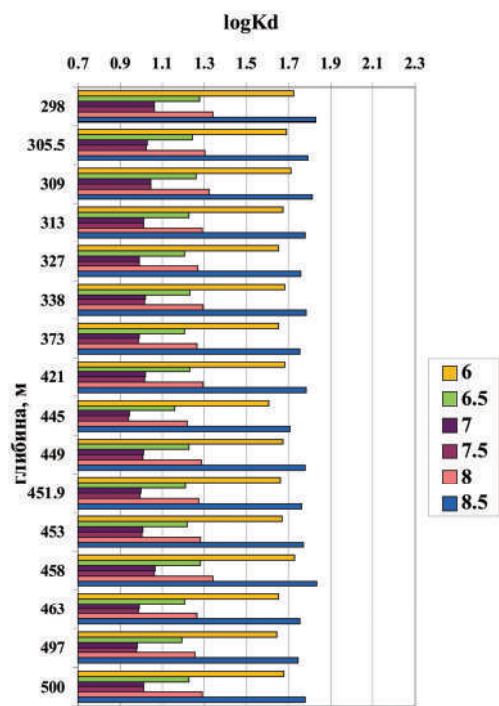
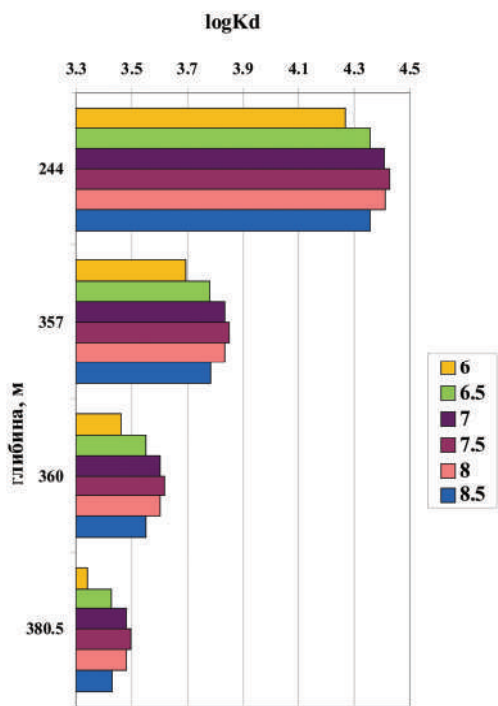
Примітка: Kd в л/кг



а)

б)

Рис. 4. Вплив величини рН на коефіцієнти розподілу P_d в гранітах та гранітоїдах:
а) – свердловина 50; б) – свердловина 35



а)

б)

Рис. 5. Вплив величини рН на коефіцієнти розподілу N_p в гранітах та гранітоїдах:
а) – свердловина 50; б) – свердловина 35

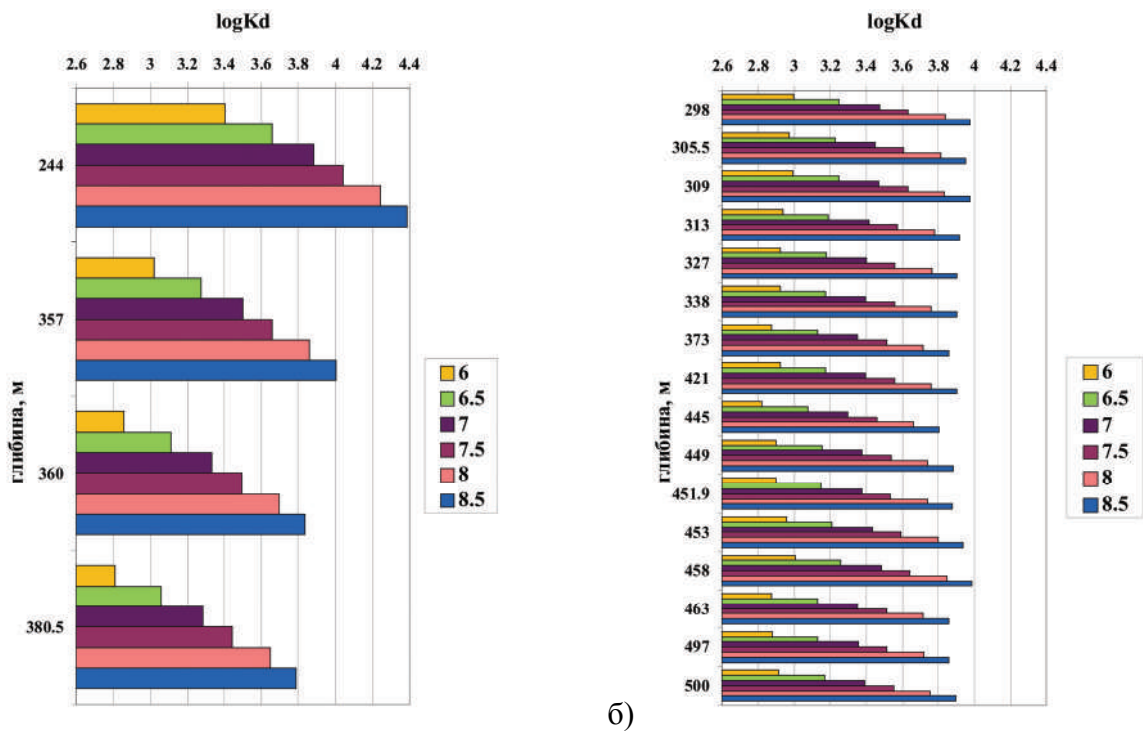


Рис. 6. Вплив величини рН на коефіцієнти розподілу Am в гранітах та гранітоїдах: а) – свердловина 50; б) – свердловина 35

Величини K_d Cs в породах свердловин 35 та 50 збільшуються при збільшенні рН від 6 до 8 та зменшуються при рН > 8 (рис. 7).

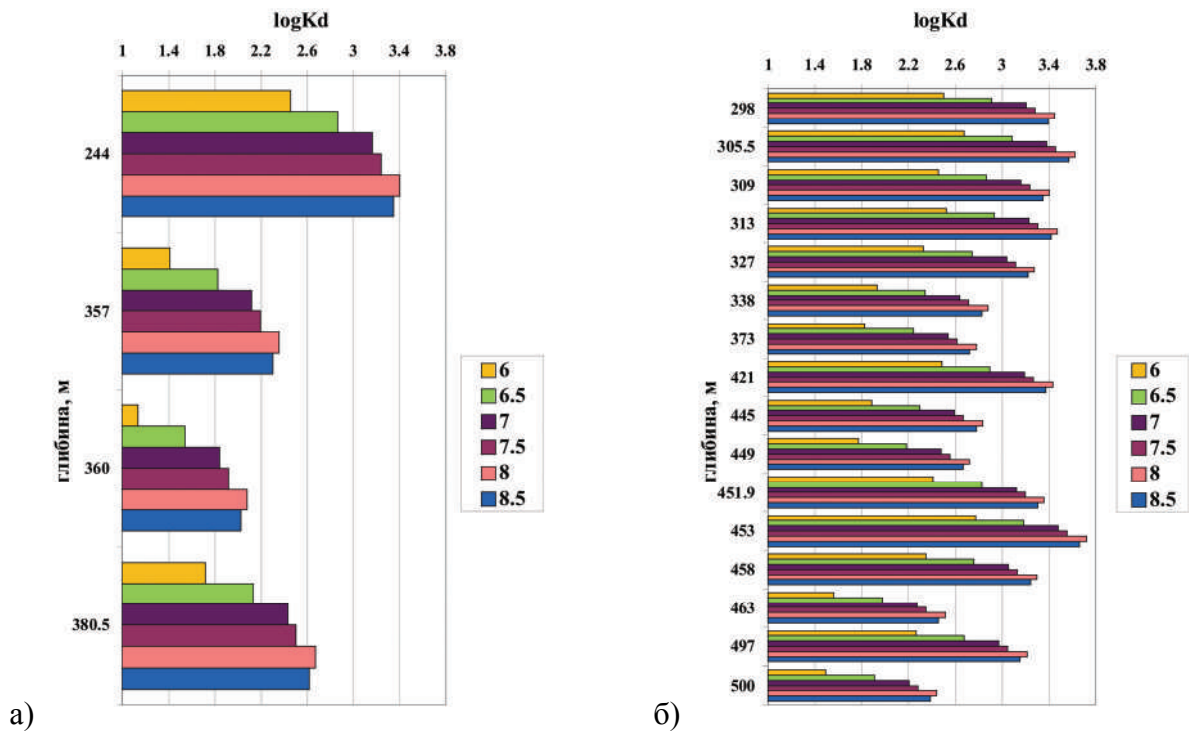


Рис. 7. Вплив величини рН на коефіцієнти розподілу Cs в гранітах та гранітоїдах: а) – свердловина 50; б) – свердловина 35

Висновки

Основними чинниками, які визначають величини коефіцієнтів розподілу U, Pu, Np, Am та Cs в гранітах та гранітоїдах, є величина рН та вміст темно кольорових мінералів.

Середні величини коефіцієнтів розподілу, обчислені на основі опублікованих експериментальних даних, отриманих за умов, наближених до потенційних умов майбутнього ГС в Україні, збільшуються в рядку Tc-oxi < Np(V) < U(VI) < Pu-oxi < Tc-red < Cs < U(IV) < Pu-red < Np(IV) < Am. Максимальна величина Kd отримана для Am (logKd = 4,5), мінімальна – для Tc за умов окиснення (Kd=0).

На всіх глибинах обчислені коефіцієнти розподілу U, Pu, Np, Am та Cs в породах свердловини 50 (ділянка Поліська Коростенського плутону) збільшуються в рядку Np(V) < Cs < U(VI) < Am < Pu(IV), а в породах свердловини 35 – в рядку Np(V) < U(VI) < Cs < Am < Pu(IV).

Якщо умовно прийняти [14], що радіонукліди з $K_d = 0,00 \div 100$ л/кг відносяться до тих, що слабо поглинаються; з $K_d = 100 \div 1000$ л/кг – до тих, що середньо поглинаються; радіонукліди з $K_d > 1000$ л/кг – до тих, що сильно поглинаються, то в умовах гранітів та гранітоїдів, характерних для потенційної ділянки розміщення ГС в Україні, нептуній відноситься до радіонуклідів, що слабо та середньо поглинаються, уран та цезій – до радіонуклідів, що середньо та сильно поглинаються, а америцій та плутоній – до радіонуклідів, що сильно поглинаються.

Робота виконана за підтримки Цільової комплексної програми наукових досліджень НАН України «Науково-технічний супровід розвитку ядерної енергетики та застосування радіаційних технологій в галузях економіки» (дог. К-6-46/2012).

1. Understanding Variation in Partition Coefficient, Kd, Values. Volume I: The Kd Model, Methods of Measurement, and Application of Chemical Reaction Codes / U.S. Environmental Protection Agency. – EPA 402-R-99-004A. – Washington (USA). – 2004. – 212 p.
2. Allard B. Sorption of actinides in granitic rock / Svensk Kärnbränsleförsörjning AB / Avdelning KBS. – KBS Technical Report TR-82-21. – Göteborg (Sweden). – 1982. – 70 p.
3. Звіт про науково-дослідну роботу за договором № К-11-312 “Геолого-геохімічне обґрунтування ізоляції радіоактивних відходів та відпрацьованого ядерного палива” / ІГНС НАН та МНС України. – Київ. – 2008. – С. 388. (№ держреєстрації 0107U005453)
4. Allard B., Kipatsi H., Torstenfelt B. Sorption av långlivade radionuklider i lera och berg Del 2 / Kärnbränsleförsörjning AB / Avdelning KBS. – KBS Teknisk Rapport 98. – Stockholm (Sweden). – 1978. – 67 p.
5. Andersson K., Torstenfelt B., Allard B. Sorption of radionuclides in geologic systems / Kärnbränsleförsörjning AB / Avdelning KBS. – SKBF KBS Technical report. – TR-83-63. – Göteborg (Sweden). – 1983. – 54 p.
6. Landström O., Tullborg Eva-Lena. The influence of fracture mineral/groundwater interaction on the mobility of U, Th, REE and other trace elements / Swedish Nuclear Fuel, Waste Management Co. – SKB Technical Report TR-90-37. – Stockholm (Sweden). – 80 p.
7. Huitti T., Hakanen M., Lindberg A. Sorption of cesium, radium, protactinium, uranium, neptunium and plutonium on rapakivi granite / POSIVA OY. – Posiva Report 96-23. – Helsinki (Finland). – 1996. – 80 p.
8. MacLean S. C., Coles D. U., Weed H. C. The measurement of sorption ratios for selected radionuclides on various geologic media / Lawrence Livermore Laboratory. – Lawrence Livermore Laboratory report UCID-17928. – Livermore (USA). – 1978. – 25 p.
9. Kulmala S., Hakanen M., Lindberg A. Sorption of plutonium on rocks in groundwaters from Posiva investigation sites / POSIVA OY. – Posiva Report 98-12. – Helsinki (Finland). – 1998. – 55 p.
10. Andersson K., Allard B. Sorption of radionuclides on geological media – A literature survey. I. Fission products / Kärnbränsleförsörjning AB / Avdelning KBS. – KBS Technical Report TR-83-07. – Göteborg (Sweden). – 1983. 128 p.
11. Byegård J., Johansson H., Skålberg M. The interaction of sorbing and non-sorbing tracers with different Äspö rock types. Sorption and diffusion experiments in the laboratory scale / Swedish Nuclear Fuel, Waste Management Co. – SKB Technical Report TR-98-18. – Stockholm (Sweden). – 1998. – p. 121.
12. Huitti T., Hakanen M., Lindberg A. Sorption and desorption of cesium on rapakivi granite and its minerals / POSIVA OY. – Posiva Report 2000-03. – Helsinki (Finland). – 2000. – 108 p.
13. Huitti T., Hakanen M., Lindberg A. Sorption of cesium on Olkiluoto mica gneiss, granodiorite and granite / POSIVA OY. – Posiva Report 98-11. – Helsinki (Finland). – 1998. – 62 p.

14. Заключний звіт про науково-дослідну роботу «Геолого-гідрологічна еволюція захисних властивостей гранітоїдних масивів (стосовно проблеми створення підземних радіаційно-небезпечних об'єктів)» / НІЦ РПД. – Київ. – 2011. – С. 468. (№ держреєстрації 0107U004141)

Колябина И.Л., Шабалин Б.Г., Перкатый К.Е. ОЦЕНКА КОЭФФИЦИЕНТОВ РАСПРЕДЕЛЕНИЯ U, Pu, Np, Am, Cs И Tc В КРИСТАЛЛИЧЕСКИХ ПОРОДАХ ПОТЕНЦИАЛЬНЫХ УЧАСТКОВ РАЗМЕЩЕНИЯ ГЕОЛОГИЧЕСКОГО ХРАНИЛИЩА В УКРАИНЕ

В работе приведены результаты оценки коэффициентов распределения U, Pu, Np, Am, Cs и Tc в кристаллических породах потенциальных участков размещения геологического хранилища в Украине. Установлено, что средние величины коэффициентов распределения, оцененные на основе опубликованных экспериментальных данных, полученных для условий, приближенных к потенциальным условиям будущего ГС в Украине, увеличиваются в ряду Tc-oxi <Np (V) <U (VI) <Pu-oxi <Tc-red <Cs <U (IV) <Pu-red <Np (IV) <Am. Показано, что в условиях гранитов и гранитоидов нептуний относится к слабо и средне, уран и цезий – к средне и сильно, а америций и плутоний - к сильно сорбирующимся радионуклидам.

Koliabina I.L., Shabalin B.G., Perkatuy K.E. ESTIMATION OF U, Pu, Np, Am, Cs AND Tc DISTRIBUTION COEFFICIENTS IN CRYSTALLINE ROCKS OF POTENTIAL AREAS FOR DEEP GEOLOGICAL REPOSITORY IN UKRAINE

The results of estimation of U, Pu, Np, Am, Cs and Tc distribution coefficients in crystalline rocks of potential areas for deep geological repository in Ukraine are presented. Mean distribution coefficients calculated on the basis of published experimental data obtained under similar to potential conditions of future GR in Ukraine conditions increased in sequence Tc-oxi <Np (V) <U (VI) <Pu-oxi <Tc-red <Cs <U (IV) <Pu-red <Np (IV) <Am. In conditions typical for potential area placement of the GR in Ukraine, neptunium is weak and medium, uranium and cesium are medium and low, and americium and plutonium are strongly sorbing radionuclides.