

МІНІСТЕРСТВО ОСВІТИ І НАУКИ УКРАЇНИ  
ДЕРЖАВНИЙ ВИЩИЙ НАВЧАЛЬНИЙ ЗАКЛАД  
«НАЦІОНАЛЬНИЙ ГІРНИЧИЙ УНІВЕРСИТЕТ»



**Д.В. Рудаков, Т.І. Перкова**

## **РАДІОГІДРОГЕОЛОГІЯ**

Навчальний посібник

Дніпро  
НГУ  
2016

УДК 556.3.01:553.495:628.388

ББК 26.341.5:33.333

P83

Рекомендовано до друку  
редакційною радою Державного вищого навчального закладу  
«Національний гірничий університет» як навчальний посібник для студентів  
вищих навчальних закладів спеціальності 10.103 Науки про землю  
(протокол № 4 від 10.03.2016).

Рецензенти:

К.А. Безручко, д-р геол. наук, ст. наук. співроб., зав. відділу геології  
вугільних родовищ великих глибин Інституту геотехнічної механіки  
ім. М.С. Полякова НАН України (м. Дніпро);

О.К. Тяпкін, д-р геол. наук, ст. наук. співроб., заступник директора з  
наукової роботи Інституту проблем природокористування НАН України  
(м. Дніпро).

**Рудаков Д.В.**

P83 Радіогідрогеологія: навч. посіб. / Д.В. Рудаков, Т.І. Перкова ; М-во  
освіти і науки України, Нац. гірн. ун-т. – Дніпро: НГУ, 2016. – 144 с.

**ISBN 978-966-350-620-3**

Охарактеризовано основні властивості радіоактивних елементів та сімейства  
радіонуклідів. Викладено чинники, що впливають на формування та розподіл  
радіоактивних вод у природних умовах. Описано геологічні особливості  
родовищ урану, пошукові критерії та сучасні методи його видобутку, зокрема,  
спосіб підземного вилуговування. Висвітлено проблеми охорони підземних вод  
від радіоактивного забруднення при видобутку урану, внаслідок аварій на АЕС  
та зберіганні радіоактивних відходів. Описано методи визначення  
радіоактивних елементів у водних розчинах. Включено інструкції до  
лабораторних робіт, які дозволяють краще засвоїти методи картування  
радіонуклідів у підземних водах та закони радіоактивного розпаду.

Для студентів геологічних спеціальностей, які навчаються на старших  
курсах.

УДК 556.3.01:553.495:628.388

ББК 26.341.5:33.333

**ISBN 978-966-350-620-3**

© Д.В. Рудаков, Т.І. Перкова, 2016

© Державний ВНЗ «НГУ», 2016

## ЗМІСТ

Передмова.....	5
Перелік основних позначень.....	8
1. ФІЗИЧНІ ТА ХІМІЧНІ ВЛАСТИВОСТІ РАДІОАКТИВНИХ ЕЛЕМЕНТІВ .....	9
1.1. Явище радіоактивності, види радіоактивного розпаду.....	9
1.2. Сімейства радіоактивних елементів.....	11
1.3. Закон радіоактивного розпаду. Ланцюги розпаду.....	15
1.4. Одиниці виміру радіоактивності та випромінювання.....	17
1.5. Фізико-хімічні властивості ізотопів урану.....	19
2. ВМІСТ ТА ФОРМИ РАДІОАКТИВНИХ ЕЛЕМЕНТІВ У ГІРСЬКИХ ПОРОДАХ .....	22
2.1. Основні уранові мінерали.....	22
2.2. Вміст природних радіонуклідів у гірських породах.....	25
2.3. Еманування.....	26
2.4. Вплив адсорбції та температури на вміст радіонуклідів у гірських породах.....	28
3. РОДОВИЩА УРАНУ В СВІТІ.....	31
3.1. Розподіл запасів та видобуток урану в світі. Класифікація родовищ.....	31
3.2. Уранові родовища в Україні.....	33
3.3. Родовища урану в Азії.....	35
3.4. Уранові родовища Північної Америки, Австралії та Африки...	38
4. РАДІОАКТИВНІ ВОДИ.....	43
4.1. Геолого-структурні та гідрогеологічні умови формування радіоактивних вод.....	43
4.2. Хімічний склад природних вод.....	46
4.3. Вплив геохімічних умов на формування радіоактивних вод. Геохімічні бар'єри.....	49
4.4. Загальна класифікація радіоактивних вод.....	52
5. МІГРАЦІЯ ПРИРОДНИХ РАДІОНУКЛІДІВ У ПІДЗЕМНИХ ВОДАХ .....	64
5.1. Радіоактивність природних вод.....	64
5.2. Міграція урану.....	65
5.3. Міграція радію.....	70
5.4. Міграція радону.....	71
5.5. Ореоли розсіювання навколо родовищ урану.....	72
5.6. Глобальний кругообіг радіонуклідів.....	74

6. ОБҐРУНТУВАННЯ РАДІОГІДРОГЕОЛОГІЧНИХ ДОСЛІДЖЕНЬ ТА ПОШУКОВІ КРИТЕРІЇ.....	76
6.1. Радіогідрогеохімічний метод.....	76
6.2. Вміст радіоактивних елементів у підземних водах як пошуковий критерій уранового зрудніння.....	77
6.3. Стадії та завдання радіогідрогеологічних досліджень.....	81
7. ГІДРОГЕОЛОГІЧНІ ТА ГЕОЕКОЛОГІЧНІ ПРОБЛЕМИ ПРИ ПІДЗЕМНОМУ ВИЛУГОВУВАННІ УРАНУ.....	83
7.1. Сутність способу підземного вилуговування та його вплив на підземні води.....	83
7.2. Кислотний та лужний способи вилуговування урану.....	88
7.3. Гідродинамічні особливості підземного вилуговування урану...	91
7.4. Захист підземних вод при підземному вилуговуванні урану	96
8. РАДІОАКТИВНЕ ЗАБРУДНЕННЯ ҐРУНТІВ ТА ПІДЗЕМНИХ ВОД	103
8.1. Забруднення ґрунтів та підземних вод після радіоактивних випадань з атмосфери.....	103
8.2. Забруднення підземних вод при видобутку урану.....	108
8.3. Радіоактивні відходи.....	112
8.4. Підземна міграція радіонуклідів зі сховищ радіоактивних відходів..	114
9. МЕТОДИ ВИЗНАЧЕННЯ РАДІОАКТИВНИХ ЕЛЕМЕНТІВ У ПРИРОДНИХ ВОДАХ.....	119
9.1. Визначення вмісту урану спектрофотометричним та люмінесцентним методами.....	119
9.2. Визначення вмісту радону та радію.....	122
10. ЛАБОРАТОРНІ РОБОТИ.....	126
10.1. Побудова карт поширення радіоактивних елементів у підземних водах.....	126
10.2. Розрахунок вмісту радіонуклідів у радіоактивних відходах...	129
10.3. Розрахунок вмісту материнського та дочірнього радіонуклідів у хвостосховищі.....	131
10.4. Розрахунок вмісту радіонуклідів у поверхневому шарі ґрунту після радіоактивних випадань.....	132
Список літератури.....	135
Предметний покажчик.....	139
Додаток.....	141

## ПЕРЕДМОВА

Радіогідрогеологія – це галузь гідрогеології, що вивчає закономірності поширення в земній корі природних радіоактивних вод, умови їх формування й циркуляції, збагачення радіоактивними елементами, зональність радіоактивних вод, а також методики досліджень радіохімічного складу вод і використання цих результатів для пошуків родовищ урану. В останні десятиліття до цієї проблематики додалися дослідження радіоактивного забруднення ґрунтів та підземних вод, водної міграції зі сховищ радіоактивних відходів, захист підземних вод при підземному вилуговуванні урану тощо.

Вивчення радіоактивності підземних вод і мінералів почалося після відкриття природної радіоактивності солей урану французьким фізиком А. Бекерелем у 1896 р. У 1898 р. М. Склодовська-Кюрі та П. Кюрі у Франції виділили з уранової смолки новий хімічний елемент – радій і встановили радіоактивність торію та полонію. Е. Резерфорд у Великобританії дослідив альфа- та бета-промені, а у 1900 р. відкрив гамма-випромінювання.

У 1902 – 1904 рр. у джерелах деяких мінеральних вод було визначено присутність радону, а води з підвищеним вмістом цього газу отримали назву радонових. Надалі радіоактивними стали називатися води з підвищеним вмістом інших радіоактивних елементів. Було відзначено, що води, багаті на радон, позитивно впливають на людський організм. Це підштовхнуло до пошуку джерел таких вод та організації лікувальних закладів у різних країнах. Було встановлено також, що радіоактивне випромінювання може бути використане для лікування злоякісних пухлин, ревматизму й інших хвороб. Отже, з 1906 р. почався промисловий видобуток радію з уранових руд, які до цього використовувалися лише для виготовлення фарб.

У 1909 р. за ініціативою В.І. Вернадського в Росії була створена Радієва експедиція Академії наук, а в 1911 р. складено перше зведення уранових рудопроявів усього світу. Під керівництвом В.І. Вернадського почалися пошуки уранових родовищ, а в подальшому були розроблені основи геології та геохімії радіоактивних елементів. Ці дослідження в СРСР продовжувалися також після створення Державного Радієвого інституту в Петрограді в 1922 р., де вивчалися питання геохімії радіонуклідів, способів визначення віку мінералів і гірських порід, радіохімії та фізики атомного ядра.

У 1930-х рр. була відкрита присутність значної кількості ізотопів радію в сильно мінералізованих водах деяких нафтових родовищ, де вміст цього елемента іноді досягав промислових концентрацій. Підвищений вміст радію

далі був встановлений для всіх високомінералізованих вод хлоридно-натрієво-кальцієвого типу, що є дуже поширеним у багатьох геологічних формаціях.

У 1934 р. Ф. та І. Жоліо-Кюрі відкрили штучну радіоактивність та отримали перші штучні радіоізотопи. Наступні дослідження талановитих фізиків багатьох країн завершилися створенням ядерного реактора у США та здійсненням наприкінці 1942 р. під керівництвом Е. Фермі контрольованої реакції розщеплення атомного ядра.

У 1945 р. в США була створена перша атомна бомба, а у серпні 1945 р. американські літаки скинули дві такі бомби на японські міста Хіросіму й Нагасакі, хоча у цьому не було ніякої військової необхідності. Внаслідок вибухів, пожеж та радіоактивного випромінювання у цих містах загинуло близько 300 тис. осіб, переважно мирних жителів. Таким чином, відкриття радіоактивності було використано керівництвом США в руйнівних цілях у глобальному протистоянні з СРСР.

У відповідь на цей виклик у 1947 р. в СРСР було розроблено технологію створення атомної бомби, а у наступні роки – атомні та термоядерні види зброї. У 1954 р. на основі досліджень, проведених під керівництвом І.В. Курчатова, в Обнінську було побудовано першу атомну електростанцію.

Можливість практичного використання атомної енергії сприяло швидкому розвитку радіогідрогеології, вкрай необхідної для пошуку й розвідки родовищ урану, його видобутку. Багато нових родовищ урану було відкрито на основі аналізу радіохімічного складу підземних вод.

Атомна енергетика в Україні набула широкого розвитку, починаючи з 1970-х рр. Були запущені в експлуатацію такі атомні електростанції (АЕС): Чорнобильська (1977), Рівненська (1980), Південноукраїнська (1982), Запорізька (1984), Хмельницька (1987).

Катастрофа на Чорнобильській АЕС у квітні 1986 р. гостро поставила питання про подальший розвиток атомної енергетики, разом з тим актуалізувала питання ядерної безпеки, радіоактивного забруднення ґрунтів, поверхневих та підземних вод. Масштабний видобуток урану в багатьох країнах призвів до значного забруднення підземних вод як у місцях видобутку, так і складування відходів переробки радіоактивних руд. Накопичення радіоактивних відходів, отримання нових даних щодо небезпеки радіоактивних елементів для живих організмів стали поштовхом для подальших досліджень з таких важливих питань, як захист підземних вод від радіоактивного забруднення і надійне поховання радіоактивних відходів у геологічному середовищі.

Незважаючи на аварію, що сталася на АЕС «Фукусіма-1» в Японії (2011), інші інциденти на ядерних об'єктах за останні десятиліття, у світі продовжується розвиток атомної енергетики. Станом на 2014 р. більш ніж у 30 країнах світу експлуатувалося близько 190 атомних електростанцій з приблизно 440 енергоблоками, кілька десятків енергоблоків зараз знаходяться у стадії будівництва.

Отже, радіогідрогеологія залишається одним з важливих розділів сучасної гідрогеології і є необхідним інструментом при вирішенні сучасних проблем енергетики та екології.

Матеріал даного посібника охоплює питання, що стосуються всіх етапів використання радіоактивних елементів: опис та розвідка родовищ урану, його видобуток способом підземного вилуговування, міграція радіонуклідів у ґрунтах та підземних водах, поховання радіоактивних відходів. Розділи 1, 3, 7, 8, 9 підготовлено Д.В. Рудаковим, розділи 2, 4, 5, 6 – Т.І. Перковою, розділ 10 – спільно, весь текст посібника – під загальною редакцією Д.В. Рудакова. Автори будуть вдячні за зауваження щодо поліпшення викладеного матеріалу та структури посібника.

## ПЕРЕЛІК ОСНОВНИХ ПОЗНАЧЕНЬ

$A$  – запаси (активність) радіонукліда, Бк (Кі);

$C$  – концентрація радіонукліда у водному розчині, Бк/л (Кі/л);

$D_0$  – молекулярна дифузія, м<sup>2</sup>/добу;

$D_L, D_T$  – гідродинамічна дисперсія (конвективна дифузія), поздовжня та поперечна, м<sup>2</sup>/добу;

$I$  – іонізуючий струм від еталона та проби при вимірюванні вмісту радону, поділів/хв;

$F$  – площа, м<sup>2</sup>;

$f$  – відношення «рідке-тверде» при підземному вилуговуванні, безрозмірне;

$K_d$  – коефіцієнт розподілу речовини між сорбентом та розчином, м<sup>3</sup>/кг;

$K$  – коефіцієнт еманування, безрозмірна;

$L, l$  – довжина, м;

$M$  – маса, кг;

$N$  – активність радіонукліда (кількість його атомів), Кі;

$n$  – пористість, безрозмірна;

$q$  – інтенсивність вилуговування, Бк/(м<sup>2</sup>/добу);

$t$  – час, діб;

$T_{1/2}$  – період піврозпаду радіонукліда, діб;

$w$  – інфільтрація, м/добу;

$v$  – швидкість фільтрації, м/добу;

$v_m$  – швидкість міграції радіонуклідів у підземних водах, м/добу;

$V$  – об'єм, м<sup>3</sup>;

$\lambda$  – параметр розпаду речовини, 1/добу;

$\gamma$  – щільність породи, кг/м<sup>3</sup>.



# 1. ФІЗИЧНІ ТА ХІМІЧНІ ВЛАСТИВОСТІ РАДІОАКТИВНИХ ЕЛЕМЕНТІВ

## 1.1. Явище радіоактивності, види радіоактивного розпаду

*Радіоактивність. Альфа-розпад. Бета-розпад. Спонтанний поділ ядра. Електронне k-захоплення. Гамма-випромінювання.*

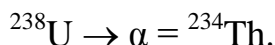
*Радіоактивність* – це властивість ядер певних елементів мимовільно розпадатися з випусканням або захопленням заряджених частинок і виділенням певної кількості енергії. Термін «радіоактивність» вперше було запропоновано П. Кюрі для позначення властивості окремих речовин до мимовільного випромінювання певних типів. У подальшому цей термін використовувався для позначення властивості випромінювати, що є характерним, наприклад, для радіоактивних препаратів або вмісту окремих ізотопів у певній речовині (радіоізотопів у воді) [6, 7, 10].

Зараз відомо понад 3000 ізотопів (нуклідів), що є радіоактивними (ядра яких нестабільні), проте лише близько 300 з них – стабільні, тобто такі, що не розпадаються. Багато з них є штучними, їх можна отримати шляхом ядерних реакцій у лабораторних умовах.

Для природних радіонуклідів відомі наведені далі види радіоактивного розпаду [6, 7, 10].

*Альфа-розпад* являє собою розпад ядра атома, що супроводжується виділенням  $\alpha$ -частинки – ядра атома гелію з масою 4 та порядковим номером 2. В результаті випускання  $\alpha$ -частинки утворюється нове ядро атома дочірнього елемента.

Приклад. Ізотоп урану-238 після  $\alpha$ -розпаду утворює дочірній ізотоп торію-234:



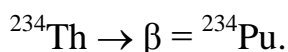
Маса  $\alpha$ -частинок дорівнює  $6,645 \cdot 10^{-27}$  кг, що в 7300 разів перевищує масу електрона ( $9,1 \cdot 10^{-31}$  кг). Швидкість  $\alpha$ -частинки при вильоті з ядра сягає приблизно 1/20 від швидкості світла, а траєкторія цих частинок прямолінійна.

Пробігом  $\alpha$ -частинки називають шлях, що вона долає до повної втрати енергії. Для переважної більшості  $\alpha$ -частинок пробіг сягає 2 – 8 см, деякі довгопробіжні частинки (приблизно одна на мільйон) мають довжину пробігу до 11 см. Ці частинки володіють високою іонізуючою здатністю – властивістю

відщеплювати електрони із зовнішньої оболонки атома. Питома іонізуюча активність  $\alpha$ -частинок характеризується кількістю пар іонів, що утворюються за 1 см пробігу кожної  $\alpha$ -частинки у повітрі. За умови нормального тиску та температури у повітрі питома іонізуюча активність сягає близько  $10^5$  пар іонів.

*Бета-розпад* являє собою розпад, що супроводжується випусканням з ядра  $\beta$ -частинки (електрона). При цьому порядковий номер утворюваного ізотопу збільшується на одиницю, а атомна маса залишається незмінною.

Приклад. При  $\beta$ -розпаді ізотопу торію-234 утворюється дочірній ізотоп плутонію-234:



Фактично  $\beta$ -розпад – це потік електронів, що рухаються зі швидкістю 0,24 – 0,96 від швидкості світла. Питома іонізуюча властивість  $\beta$ -частинок на три порядки менша, ніж у  $\alpha$ -частинок і складає близько 100 пар іонів на 1 см пробігу в повітрі. Траєкторія  $\beta$ -частинок не є прямолінійною, а довжина пробігу в повітрі сягає кілька десятків сантиметрів.

*Спонтанний поділ ядра* являє собою вид радіоактивного розпаду, який супроводжується розщепленням ядра на два осколки приблизно однакової маси та випусканням двох-трьох нейтронів. Для урану, торію, плутонію ймовірність спонтанного розпаду, як правило, не перевищує  $10^{-6}$ , але для штучних ізотопів з високою атомною масою ( ${}^{250}\text{Cm}$ ,  ${}^{252}\text{Cf}$ ) ця ймовірність значно зростає.

*Електронне  $k$ -захоплення* являє собою вид радіоактивного перетворення, при якому ядро атому захоплює електрон з найближчої до ядра  $k$ -ї електронної оболонки. Із природних радіонуклідів таким шляхом розпадається ізотоп калію  ${}^{40}\text{K}$ , при цьому утворюється  ${}^{40}\text{Ar}$  – ізотоп інертного газу аргону.

*Гамма-випромінювання* – це електромагнітне випромінювання, що не призводить до змін ядра, а супроводжує інші види розпаду ( $\alpha$ -розпад,  $\beta$ -розпад та  $k$ -захоплення). Після  $\alpha$ - або  $\beta$ -розпаду деякі новоутворені ядра переходять у збуджений стан і під час переходу до нормального стану залишок електромагнітної енергії випромінюється у вигляді кванта електромагнітної енергії.

Гамма-випромінювання не змінює хімічної природи атому. Воно являє собою кванти (порції) електромагнітної енергії, що поширюються зі швидкістю світла.  $\gamma$ -кванти нагадують рентгенівські промені: вони поширюються прямолінійно, не відхиляються в електричному або магнітному полях, не відбиваються або переломлюються в оптичних приладах. Через це

γ-випромінювання має дуже високу проникну здатність – проникати крізь кілька десятків сантиметрів металу.

## 1.2. Сімейства радіоактивних елементів

Ряд торію  $^{232}\text{Th}$ . Ряд урану  $^{238}\text{U}$ . Ряд актиноурану  $^{235}\text{U}$ . Ряд нептунію  $^{237}\text{Np}$ .

У природі знайдено три родоначальні елементи (материнські ізотопи), з яких починаються радіоактивні ряди:  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  (актиноуран) та  $^{232}\text{Th}$  [6, 7, 10, 12].

Ряд торію  $^{232}\text{Th}$  (табл. 1.1) належить до типу  $4 \cdot n$ , де  $n$  – ціле число. Це означає, що всі члени ряду мають атомну вагу, кратну чотирьом. Наприклад, атомна вага  $^{232}\text{Th}$  і  $^{208}\text{Pb}$  визначається так:  $232 = 4 \cdot 58$ ,  $208 = 4 \cdot 52$ .

Таблиця 1.1

Ряд природних радіонуклідів  $^{232}\text{Th}$ ,  $4 \cdot n$

№ елемента	Елемент	Ізотопи			
90	Th	$^{232}\text{Th}$ 1,41·10 <sup>10</sup> років		$^{228}\text{Th}$ 1,92 року	
89	Ac		$^{228}\text{Ac}$ 6,32·ГОДИНИ		
88	Ra	$^{228}\text{Ra}$ 5,75 року		$^{224}\text{Ra}$ 3,66 доби	
87	Fr		$^{224}\text{Fr}$ 2,7 хв		
86	Rn			$^{220}\text{Rn}$ 55,6 с	
85	At				$^{216}\text{At}$ 3·10 <sup>-4</sup> с
84	Po			$^{216}\text{Po}$ 0,145 с	$^{216}\text{Po}$ 3·10 <sup>-7</sup> с 45,1 с
83	Bi				$^{216}\text{Bi}$ 60,5 хв 25 хв
82	Pb			$^{212}\text{Pb}$ 10,64 год	$^{208}\text{Pb}$
81	Tl				$^{208}\text{Tl}$ 3,05 хв

⇓ α-розпад, ↗ β-розпад

Ряд урану  $^{238}\text{U}$  (табл. 1.2) належить до типу  $4 \cdot n + 2$ . Так, атомна вага першого елемента ряду  $238 = 4 \cdot 59 + 2$ , а для  $^{226}\text{Ra}$  буде  $226 = 4 \cdot 56 + 2$  і т. д.

Таблиця 1.2

Ряд природних радіонуклідів  $^{238}\text{U}$ ,  $4 \cdot n + 2$

№ елемента	Елемент	Ізотопи					
92	U	$^{238}\text{U}$ 4,47·10 <sup>9</sup> років		$^{234}\text{U}$ 2,45·10 <sup>5</sup> років			
91	Pa	↓ ↗	$^{234}\text{Pa}$ 1,17 хв * І.П. (0,3%) $^{234}\text{Pa}$ 6,75 год	↓			
90	Th	$^{234}\text{Th}$ 24,1 доби		$^{230}\text{Th}$ 7,7·10 <sup>4</sup> років			
89	Ac			↓			
88	Ra			$^{226}\text{Ra}$ 1600 років			
87	Fr			↓			
86	Rn			$^{222}\text{Rn}$ 3,825 доби		$^{218}\text{Rn}$ 0,02 с	
85	At			↓	$^{218}\text{At}$ 1,3 с	↓	
84	Po			$^{218}\text{Po}$ 3,05 хв	↓	$^{214}\text{Po}$ 1,6·10 <sup>-4</sup> с	$^{210}\text{Po}$ 138,38 доби
83	Bi			↓	$^{214}\text{Bi}$ 19,8·хв	↓	$^{210}\text{Bi}$ 5,01 діб
82	Pb			$^{214}\text{Pb}$ 26,8 хв	↓	$^{210}\text{Pb}$ 22,3 року	$^{206}\text{Pb}$
81	Tl				$^{210}\text{Tl}$ 1,32 хв	$^{206}\text{Tl}$ 4,19 хв	↗

↓ α-розпад, ↗ β-розпад, \* І.П. – ізомерний перехід (розпад двома способами з різними періодами піврозпаду)

Ряд актиноурану  $^{235}\text{U}$ . Всі елементи ряду актиноурану (табл. 1.3) мають атомну вагу  $4 \cdot n + 3$ , наприклад, для  $^{235}\text{U}$  атомна вага буде  $235 = 4 \cdot 58 + 3$ .

Ряд нептунію  $^{237}\text{Np}$ . Ряд  $4 \cdot n + 1$ , що починається з  $^{237}\text{Np}$  (табл. 1.4), не було знайдено у природі. Період піврозпаду родоначальника цього ряду  $2,25 \cdot 10^6$  років. Ізотопи цього ряду були отримані шляхом штучних ядерних реакцій. Вважається, що значна частина природного вісмуту походить від нептунію-237, який давно розпався. Відкриття нових ізотопів, що не існують у природі, дозволило встановити весь ланцюг цього радіоактивного ряду.

Кінцевими стабільними ізотопами радіоактивних рядів  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  (актиноурану) та  $^{232}\text{Th}$  є ізотопи свинцю  $^{206}\text{Pb}$ ,  $^{207}\text{Pb}$  та  $^{208}\text{Pb}$  відповідно.

Таблиця 1.3

Ряд природних радіонуклідів  $^{235}\text{U}$ ,  $4 \cdot n + 3$

№ елемента	Елемент	Ізотопи			
92	U	$^{235}\text{U}$ 7,04·10 <sup>8</sup> років			
91	Pa	↓	$^{231}\text{Pa}$ 3,28·10 <sup>4</sup> років		
90	Th	↗ $^{231}\text{Th}$ 1,068 доби	↓	$^{227}\text{Th}$ 72 доби	
89	Ac		↘ $^{227}\text{Ac}$ 22 роки	↓	
88	Ra		↓	↗ $^{223}\text{Ra}$ 11,2 діб	
87	Fr		↘ $^{223}\text{Fr}$ 21 хв	↓	
86	Rn		↓	↗ $^{219}\text{Rn}$ 3,92 с	
85	At		↘ $^{219}\text{At}$ 0,9 хв	↓	↗ $^{215}\text{At}$ 10 <sup>-4</sup> с
84	Po		↓	↗ $^{215}\text{Po}$ 1,83·10 <sup>-3</sup> с	↓
83	Bi		↘ $^{215}\text{Bi}$ 7,4 хв	↗ $^{211}\text{Bi}$ 2,14·хв	↓
82	Pb		↓	↘ $^{211}\text{Pb}$ 36,1 хв	↗ $^{207}\text{Pb}$
81	Tl			↘ $^{207}\text{Tl}$ 4,77 хв	

↓ α-розпад, ↗ β-розпад

Ряд радіонуклідів  $^{237}\text{Np}$ ,  $4 \cdot n + 1$ 

№ елемента	Елемент	Ізотопи					
96	Cm						
				$^{241}\text{Cm}$ 32,8 доби			
95	Am		$^{241}\text{Am}$ 432,1 року				
					$^{237}\text{Pu}$ 45,3 доби		
94	Pu	$^{241}\text{Pu}$ 14,4 року					
				$^{237}\text{Np}$ $2,14 \cdot 10^6$ років			
93	Np						
		$^{233}\text{U}$ 6,75 доби			$^{233}\text{U}$ $1,59 \cdot 10^5$ років		
92	U						
			$^{233}\text{Pa}$ 27 діб			$^{229}\text{Pa}$ 1,4 доби	
91	Pa						
		$^{233}\text{Th}$ 22,3 хв			$^{229}\text{Th}$ 7340 років		
90	Th						
						$^{225}\text{Ac}$ 10 діб	
89	Ac						
					$^{225}\text{Ra}$ 14,8 доби		
88	Ra						
						$^{221}\text{Fr}$ 4,9 хв	
87	Fr						
86	Rn						
						$^{217}\text{At}$ 0,032 с	
85	At						
							$^{213}\text{Po}$ $4,2 \cdot 10^{-6}$ с
84	Po						
						$^{213}\text{Bi}$ 45,59·хв	
83	Bi						$^{209}\text{Bi}$
							$^{209}\text{Pb}$ 3,25 год
82	Pb						
						$^{209}\text{Tl}$ 2,2 хв	
81	Tl						

$\Downarrow$   $\alpha$ -розпад,  $\nearrow$   $\beta$ -розпад  $\dashleftarrow$   $k$ -захоплення

### 1.3. Закон радіоактивного розпаду. Ланцюги розпаду

*Радіоактивний розпад одного елемента. Утворення й розпад дочірніх елементів. Ланцюги розпаду.*

*Радіоактивний розпад одного елемента* описується законом, що був експериментально встановлений Е. Резерфордом та Ф. Содді у 1902 р. Згідно з цим законом кількість атомів радіоактивного елемента  $dN_1$ , що розпадається за малий проміжок часу  $dt$ , є пропорційною наявній кількості атомів елемента  $N_1$ , константі розпаду  $\lambda_1$  та проміжку часу  $dt$  [6, 7, 10, 12]:

$$dN_1 = -\lambda_1 N_1 dt. \quad (1.1)$$

Кількість радіоактивних атомів  $N_1(t)$ , що залишилася до моменту часу  $t$ , визначається за формулою, яку можна отримати інтегруванням рівняння (1.1):

$$N_1(t) = N_{1,0} \exp(-\lambda_1 t), \quad (1.2)$$

де  $N_{1,0}$  – кількість атомів радіоактивного елемента у початковий момент часу  $t = 0$ .

Радіоактивний розпад не залежить від зовнішніх умов: температури, фізичних та хімічних умов. Константу розпаду  $\lambda_1$  знаходять з формули для періоду піврозпаду  $T_1$ :

$$T_1 = \frac{\ln 2}{\lambda_1}. \quad (1.3)$$

Період піврозпаду визначається як період часу, за який активність радіонукліду зменшується вдвічі. Практично повний розпад речовини настає після 10 періодів піврозпаду: залишається  $2^{-10}$  (менше 0,1 %) початкової кількості радіоактивної речовини. У додатку наведені періоди піврозпаду найбільш важливих та поширених радіонуклідів [24].

*Утворення й розпад дочірніх елементів. Ланцюги розпаду.* Новоутворені ізотопи часто є радіоактивними і розпадаються з утворенням власних продуктів розпаду, як показано в табл. 1.1 – 1.4. Часто при розпаді одного ізотопу утворюється 2 – 3 й більше дочірніх ізотопів з різними періодами піврозпаду та різними частками від маси материнського ізотопу [12]. Таким чином утворюються ланцюги розпаду радіонуклідів (рис. 1.1), які закінчуються стабільними ізотопами.

Інтенсивність утворення дочірнього радіонукліду при розпаді материнського описується рівнянням

$$\frac{\partial N_2}{\partial t} = \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2, \quad (1.4)$$

де  $\lambda_2$  – константа розпаду дочірнього ізотопу, яка визначається аналогічно  $\lambda_1$  за рівнянням (1.3) з відповідною заміною індексів. З часом концентрація дочірнього ізотопу може зростати, якщо швидкість її убування  $\lambda_2 C_2$  менша за швидкість її утворення при розпаді материнського радіонукліда  $\lambda_1 C_1$ .

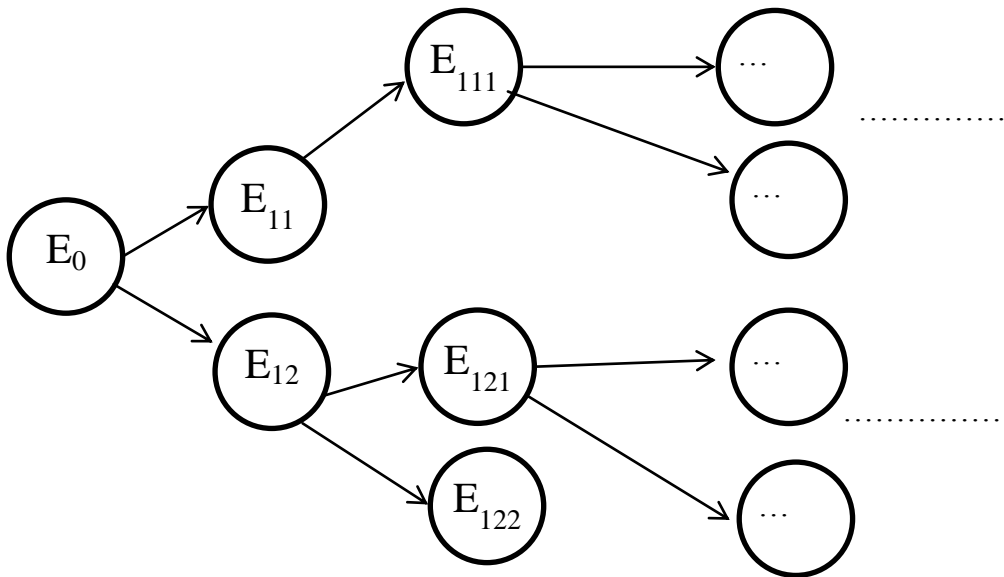


Рис. 1.1. Схема ланцюга розпаду радіонуклідів

Кількість радіоактивних атомів дочірньої речовини  $N_2(t)$ , що залишилася до моменту часу  $t$  в умовах розпаду початкової активності материнського радіонукліда  $N_{1,0}$ , визначається за формулою, яку можна отримати інтегруванням рівняння (1.4):

$$N_2(t) = \frac{\lambda_1 N_{1,0}}{\lambda_2 - \lambda_1} \{ \exp(-\lambda_1 t) - \exp(-\lambda_2 t) \} + N_{2,0} \exp(-\lambda_2 t), \quad (1.5)$$

де  $N_{2,0}$  – кількість атомів дочірнього ізотопу в початковий момент часу, тобто при  $t = 0$ .

На прикладі материнського  $^{241}\text{Pu}$  та дочірнього  $^{241}\text{Am}$  радіонуклідів, що поширені в зоні впливу аварії на Чорнобильській АЕС, яка сталася у 1986 р., показано (рис. 1.2), що кількість дочірнього ізотопу зростає до того моменту, коли його убування через розпад стане перевищувати його утворення при розпаді материнського ізотопу.

При великому періоді піврозпаду материнського ізотопу та малому періоді піврозпаду дочірнього ізотопу встановлюється так звана вікова



рівновага, коли відношення кількості материнського та дочірнього ізотопів є стабільним протягом тривалого періоду часу, якщо зовнішні умови не змінюються. Наприклад, пропорція між  $^{230}\text{Th}$  та  $^{226}\text{Ra}$  приблизно визначається відношенням періодів піврозпаду, що становить близько 1/50.

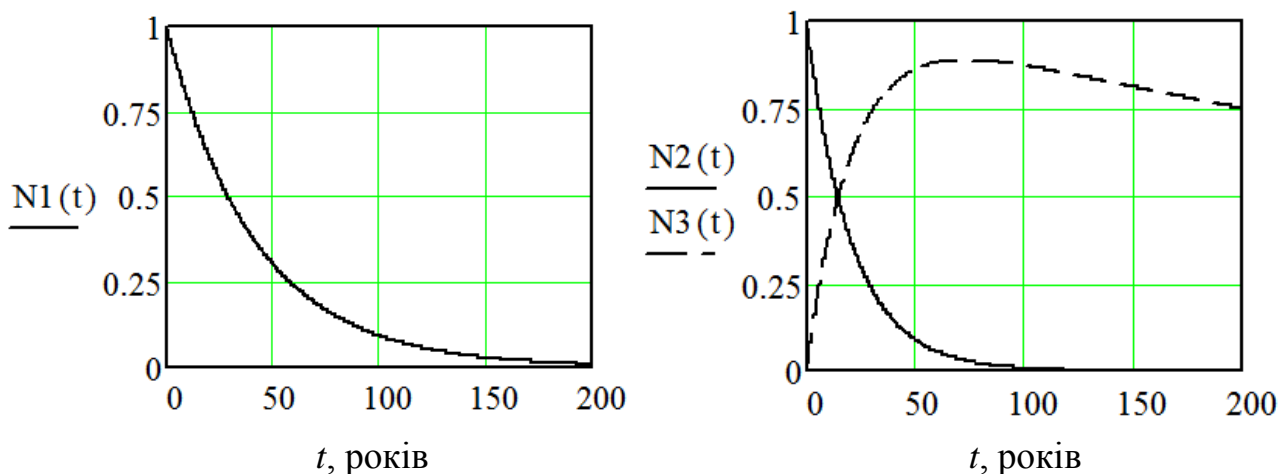


Рис. 1.2. Зміна у часі відносної маси радіонуклідів:  
а)  $^{90}\text{Sr}$ , б)  $^{241}\text{Pu}$  (суцільна крива) та  $^{241}\text{Am}$  (штрихована крива)

#### 1.4. Одиниці виміру радіоактивності та випромінювання

*Одиниці виміру радіоактивності: бекерель, кюрі, міліграм-еквівалент радію. Одиниці виміру випромінювання: рентген, грей, зіверт, бер.*

*Бекерель.* Кількість радіоактивних елементів у природних водах виражається через їх масу (кг) або концентрацію ( $\text{кг}/\text{м}^3$ ). У міжнародній системі одиниць СІ також використовуються бекерель як одиниця виміру радіоактивності (Бк), названа за прізвищем французького вченого Анрі Бекереля – одного з першовідкривачів радіоактивності. Один бекерель визначається як активність джерела, у якому за 1 с розпадається один атом речовини. На практиці використовуються кратні одиниці:  $1 \text{ КБк} = 10^3 \text{ Бк}$ ,  $1 \text{ МБк} = 10^6 \text{ Бк}$ ,  $1 \text{ ГБк} = 10^9 \text{ Бк}$ .

*Кюрі.* Позасистемною одиницею є 1 Кі, що дорівнює  $3,7 \cdot 10^{10}$  Бк. Ця одиниця названа на честь П'єра Кюрі та Марії Склодовської-Кюрі, що також були першовідкривачами явища радіоактивності. 1 Кі визначено як активність матеріалу, що еквівалентна радіоактивності 1 г ізотопу  $^{226}\text{Ra}$ . Маса 1 Кі різних

радіоізоотопів варіюється у широких межах (рис. 1.3): від 1820 т для природної суміші самарію до 6,2 мкг для  $^{224}\text{Ra}$  [2].

На практиці використовуються кратні одиниці:  $1 \text{ мКі} = 10^{-3} \text{ Кі}$ ,  $1 \text{ мкКі} = 10^{-6} \text{ Кі}$ ,  $1 \text{ нКі} = 10^{-9} \text{ Кі}$ .

*Міліграм-еквівалент радію.* Позасистемною одиницею також є міліграм-еквівалент радію, що використовується для кількісної характеристики  $\gamma$ -випромінювання. 1 мг-екв Ra визначається як кількість речовини, яка створює еквівалент випромінювання 1 мг Ra за однакових умов.

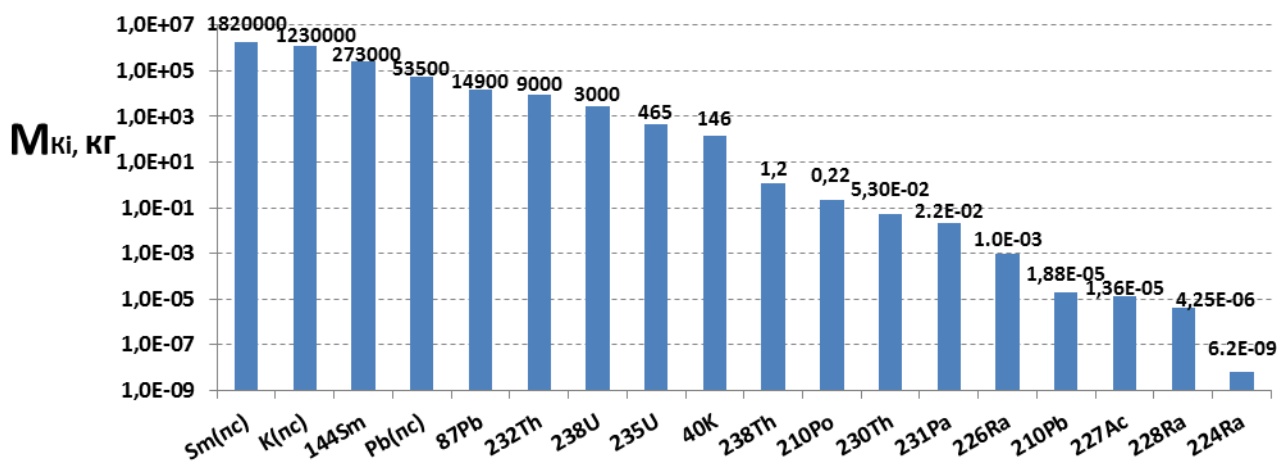


Рис. 1.3. Значення маси 1 Кі деяких радіоактивних ізоотопів (пс – природна суміш)

Концентрація будь-якого радіоактивного елемента в природних водах визначається в одиницях Бк/л або Бк/м<sup>3</sup> (Кі/л, Кі/м<sup>3</sup>). Активність радіоактивних відходів часто виражають у Кі, а вміст радіонуклідів у воді – у Бк/л або Бк/м<sup>3</sup>.

Концентрація радону в повітрі чи воді визначається в еманах: 1 еман відповідає концентрації  $10^{-10} \text{ Кі/л}$ .

Радіоактивне забруднення території на великій площі, наприклад, у зоні аварії на АЕС у Чорнобилі або Фукусімі, характеризують питомою радіоактивністю, яка вимірюється у Кі/км<sup>2</sup> [4, 8, 24].

*Експозиційна доза* характеризує іонізуючу здатність випромінювання в повітрі. У системі СІ одиницею дози є Кл/кг (кулон/кілограм) – це така доза випромінювання, при якій в 1 кг сухого повітря виникають іони, які несуть заряд в 1 кулон електрики кожного знаку. *Рентгеном* називають таку дозу  $\gamma$ -випромінювання, під впливом якої в 1 см<sup>3</sup> повітря виникає  $2,08 \cdot 10^9$  пар іонів.

Нормальний радіаційний фон зазвичай становить 10 – 20 мкР/год, після аварії на Чорнобильській АЕС в окремих місцях експозиційна доза досягала десятків та сотень Р/год.

*Поглинута доза* характеризує енергію іонізуючої речовини, яка була поглинута одиницею маси опроміненого середовища. Величина дози, що одержана людиною, залежить від виду випромінювання, щільності потоку та тривалості його впливу. Одиницею випромінювання поглинутої дози у системі СІ є *грей* (Гр); позасистемною одиницею – рад.

Поглинута доза визначається як енергія випромінювання, поглинута одиницею маси речовини: 1 Грей (Гр) = 1 Дж/кг. 1 рад = 0,01 Гр. Потужність поглинутої дози вимірюється у Гр/с, Гр/год, Гр/рік.

*Еквівалентна доза* визначає біологічний вплив різних видів іонізуючого випромінювання на організм людини і є мірою для оцінки небезпеки шкоди здоров'ю людини. Еквівалентна доза в системі СІ вимірюється в *зівертах* (Зв), а потужність еквівалентної дози – у Зв/год, Зв/с, мЗв/год, мкЗв/год.

Позасистемною одиницею еквівалентної дози є *бер* – біологічний еквівалент рентгена. Доза іонізуючого випромінювання природного фону в містах складає 1,2 – 1,3 мЗв/рік (120 – 130 мбер/рік). Додаткове навантаження на людину, що проживає поблизу АЕС, при її нормальній роботі не перевищує  $10^{-1}$  мЗв/рік (1,0 мбер/рік) [24].

## 1.5. Фізико-хімічні властивості ізопоів урану

*Фізичні властивості урану. Хімічні властивості урану.*

Уран є родоначалником найбільш важливого ряду радіоактивних елементів. Його геохімічні властивості визначаються специфічним положенням у періодичній системі Д. Менделєєва і залежать від будови ядра атома та його зовнішніх електронних оболонок.

*Фізичні властивості урану.* Фізико-хімічні властивості урану описано в [6]. Уран є важким металом із щільністю 19 г/см<sup>3</sup>. У чистому вигляді це глянцеий сріблясто-білий метал. Температура його плавлення 1405,5 К. Порошок урану самоспалахує при температурі 150 – 175 °С. Чистий уран дещо м'якше за сталь, достатньо гнучкий, має незначні парамагнітні властивості:

Уран з порядковим номером 92 та атомною масою 238,07 є найбільш важким з природних хімічних елементів. Як і всі важкі елементи, починаючи з <sup>210</sup>Po, уран є радіоактивним. Відомі три ізопои урану (табл. 1.5), причому найпоширенішим є <sup>238</sup>U.

Уран достатньо поширений елемент, його вміст у земній корі (4 г/т) є відносно високим порівняно з такими рідкоземельними елементами, як золото, срібло, платина, ртуть, вольфрам тощо.

*Хімічні властивості урану.* Як один з елементів сімейства актиноїдів, уран належить до третьої групи періодичної системи Менделєєва. Але завдяки великій кількості електронних орбіт валентними є електрони не лише на зовнішній оболонці, але й на внутрішніх. Отже, максимально можлива стійка валентність урану дорівнює 6 ( $U^{+6}$ ), при цьому іон набуває структуру ідеального газу.

В природі уран зустрічається у шестивалентному та чотиривалентному стані у вигляді солей кисневих кислот і не утворює сполук із сіркою, селеном, миш'яком та не зустрічається у вигляді самородків.

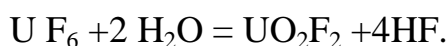
Таблиця 1.5

#### Ізотопи урану

Ізотоп	Частка серед ізотопів урану в природі, %	Період піврозпаду, років
$^{238}\text{U}$	99,2739	$4,47 \cdot 10^9$
$^{235}\text{U}$	0,7205	$7,13 \cdot 10^8$
$^{234}\text{U}$	0,0056	$2,475 \cdot 10^5$

Тривалентний стан відповідає групі актиноїдів, але уран у тривалентному стані було отримано лише у лабораторних умовах. Сполуки тривалентного урану окиснюються водою з виділенням кисню. Чотиривалентний іон виконує роль катіону в хлориді  $UCl_4$  та сульфаті  $U(SO_4)_2$ .

Шестивалентний уран завдяки великому розміру іона проявляє властивості слабкої основи на відміну від інших шестивалентних елементів (вольфрам та молібден), що є оксидами, які утворюють кислоти. Іон  $U^{6+}$  нестійкий, тому сполуки шестивалентного урану швидко гідролізуються з утворенням солей двовалентного катіона – ураніла  $(UO_2)^{2+}$ , наприклад:



Окиснювальна властивість урану визначається реакцією середовища (табл. 1.6).

## Зміна окиснювально-відновлюваних властивостей урану

Іон	Кисле середовище	Лужне середовище
$U^{6+}$	Окиснює $Cu^+, Sn^{2+}, Ti^{3+}, V^{2+}, Cr^{2+}$	Окиснює $Fe^{2+}$
$U^{4+}$	Відновлює $Fe^{3+}, Mn^{4+}, V^{5+}, Mo^{6+}, Cr^{6+}$	–

На вміст урану в гірських породах та підземних водах значний вплив робить сорбція, що сприяє накопиченню урану у вугіллі, торфах, деяких бурих залізняках, глинах і частково фосфоритах (детальніше див. підрозділ 5.3).

Уран використовується для виробництва ядерного палива, ядерної зброї, у військовій справі (підсилення броні збідненим ураном, як сердечники бронебійних снарядів), у фотографії, деяких фарбах, при геологічному аналізі віку мінералів та гірських порід.

**Питання для самоконтролю**

1. Чим радіоактивні ізотопи відрізняються від стабільних?
2. Порівняйте два види радіоактивного розпаду: а)  $\alpha$ -розпад та  $\beta$ -розпад, б)  $\beta$ -розпад та  $\gamma$ -розпад, в)  $\alpha$ -розпад та  $\gamma$ -розпад.
3. Охарактеризуйте три радіоактивні ряди, які були знайдені в природі (родоначальники, їх період піврозпаду, найбільш довгоживучі та кінцеві стабільні ізотопи).
4. Чому, на вашу думку, ряд нептунію  $^{327}\text{Np}$  не було знайдено в природі?
5. Поясніть фізичний сенс параметрів «період піврозпаду», «константа розпаду».
6. Опишіть закон радіоактивного розпаду для материнського та дочірнього ізотопів.
7. Як змінюється кількість дочірнього ізотопу в часі? Що таке вікова рівновага?
8. Охарактеризуйте одиниці виміру радіоактивності.
9. Охарактеризуйте одиниці виміру радіоактивного випромінювання.
10. Охарактеризуйте фізичні та хімічні властивості урану і його застосування на практиці.
11. Як впливає валентність урану на його властивості?

## 2. ВМІСТ ТА ФОРМИ РАДІОАКТИВНИХ ЕЛЕМЕНТІВ У ГІРСЬКИХ ПОРОДАХ

### 2.1. Основні уранові мінерали

*Уранові мінерали. Уранініт. Настуран. Уранові черні. Уранові слюдки.*

*Уранові мінерали.* Уран у гірських породах перебуває у вигляді самостійних мінералів, у розсіяному стані або у вигляді ізоморфних домішок.

Дотепер нараховується понад 100 уранових мінералів, з яких близько 90 % – вторинні уранові мінерали з групою уранілу ( $UO_2$ )<sup>2+</sup>. Відповідно до класифікації В.Г. Мелкова [16] уранові мінерали – це велика група різноманітних за хімічним складом мінералів, а саме: оксидів, гідроксидів та солей кисневих кислот (силікати, фосфати, арсенати, ванадати, сульфати, карбонати, молібдати).

Оксиди урану являють собою три мінеральних види: уранініт, настуран і уранові черні (табл. 2.1). Вони утворюються в різних геологічних умовах та відрізняються за складом, морфологією та за співвідношенням  $U^{4+}$ :  $U^{6+}$ .

*Уранініт* вирізняється найбільшою кількістю домішок: торій, свинець та рідкоземельні елементи. Залежно від кількості домішок і ступеня окиснення вміст  $UO_2$  та  $UO_3$  коливається у широких діапазонах від 38 до 74 та від 16 до 50 % відповідно. Колір уранініту чорний, блиск смолистий, злом раковистий, твердість 4 – 7, питома вага 6,5 – 10, структура кристалічної решітки кубічна (рис. 2.1). Характерна особливість уранініту – добре виражена форма кристалів, що дозволяє відрізнити його від настурану.



Рис. 2.1. Уранініт

*Настуран* – найважливіший промисловий мінерал урану. Вміст  $UO_2$  в ньому змінюється від 40 до 70 %;  $UO_3$  – від 29 до 52 %. За фізичними властивостями він схожий на ураніт. Морфологічною особливістю настурану є гніздовидна, натічна форма виділень (рис. 2.2).

*Уранові черні* – це пухкі скупчення чорного кольору з матовим блиском; їх твердість 2 – 4, питома вага не перевищує 6,5 (рис. 2.3).



Рис. 2.2. Настуран

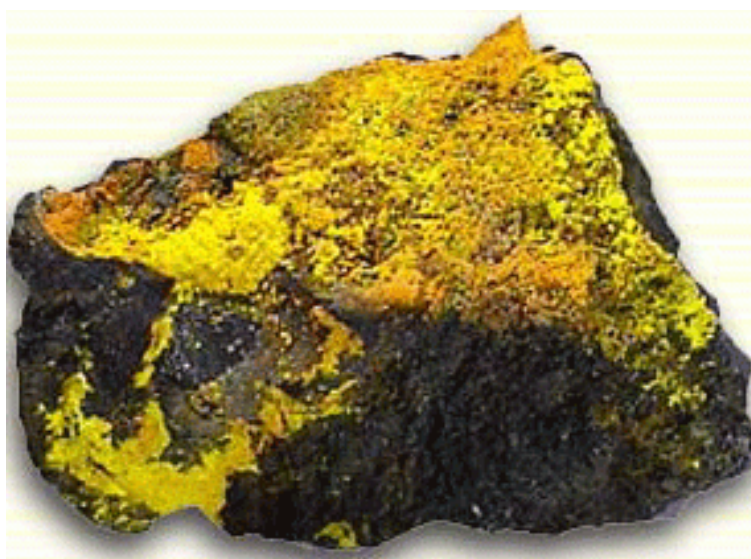


Рис. 2.3. Уранові черні

## Основні уранові мінерали

Мінерал	Хімічна формула	Вміст U та Th, %			
		UO <sub>2</sub>	UO <sub>3</sub>	U <sub>3</sub> O <sub>8</sub>	ThO <sub>2</sub>
<b>I. Оксиди U</b>					
– безводні оксиди					
1) уранініт	KUO <sub>2</sub> ·mUO <sub>3</sub> ·nPbO	38 – 74	16 – 50	79 – 94	0 – 8
2) настуран (уранова смоляна обманка, уранова смолка)		40 – 70	29 – 52	80	0 – 2
3) уранові черні		40	9 – 40		3
– гідроксиди U					
1) бекереліт	3UO <sub>3</sub> ·5H <sub>2</sub> O		87 – 91		
2) скудит	4UO <sub>3</sub> ·9H <sub>2</sub> O		88		
3) кюрит	2PbO·5UO <sub>3</sub> ·4H <sub>2</sub> O		73 – 74		
<b>II. Карбонати U</b>					
1) резерфордін	UO <sub>2</sub> ·CO <sub>3</sub>		84		
2) шарпіт	(UO <sub>2</sub> ) <sub>6</sub> ·(CO <sub>3</sub> ) <sub>5</sub> ·(OH)· ·7H <sub>2</sub> O		81		
<b>III. Сульфати U</b>					
1) йоганіт (урановий купорос)	CuO·2UO <sub>3</sub> ·2SO <sub>3</sub> ·7H <sub>2</sub> O		52 – 61		
2) уранопіліт (уранова охра)	(UO <sub>2</sub> ) <sub>6</sub> ·(SO <sub>4</sub> )·(OH) <sub>10</sub> · ·12H <sub>2</sub> O		80 – 81		
<b>IV. Силікати U</b>					
1) содіт	(UO <sub>2</sub> )·(SiO <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> ·(OH) <sub>2</sub> · ·5H <sub>2</sub> O		86		
2) казоліт	Pb(UO <sub>2</sub> ) <sub>5</sub> ·SiO <sub>4</sub> ·nH <sub>2</sub> O		48 – 50		
<b>V. Фосфати U</b>					
1) фосфураніліт	(UO <sub>2</sub> ) <sub>3</sub> ·(PO <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> ·6H <sub>2</sub> O		72 – 78		
2) отеніт	Ca(UO <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> ·(PO <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> ·10H <sub>2</sub> O		60 – 63		
3) торберніт	Cu(UO <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> ·(PO <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> · ·12H <sub>2</sub> O		57		
<b>VI. Арсенати U</b>					
1) трегерит	(UO <sub>2</sub> ) <sub>3</sub> ·(AsO <sub>4</sub> )·12H <sub>2</sub> O		64 – 66		
2) цейнерит	Cu(UO <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> ·(AsO <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> · ·12H <sub>2</sub> O		52 – 56		
<b>VII. Ванадати U</b>					
1) карнотит	K <sub>2</sub> (UO <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> ·(VO <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> ·3H <sub>2</sub> O		62 – 66		
2) тюямуніт	Ca(UO <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> ·(VO <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> · ·8H <sub>2</sub> O		52 – 65		
<b>VIII. Молібдати U</b>					
1) умохоїт	UO <sub>2</sub> ·MoO <sub>4</sub> ·4H <sub>2</sub> O		67 (?)		
<b>IX. Органічні сполуки U</b>					
1) тухоліт				6 (в золі 40)	6 (в золі 48)
2) карбуран			54 (в золі)		



*Уранові слюдки.* Серед уранових мінералів, що складають велику групу уранових слюдок, слід відмітити фосфати, арсенати та ванадати урану. Хімічний склад їх визначається формулою  $R(UO_2)_2 \cdot (MO_4)_2 \cdot nH_2O$ .

Вони являють собою солі ортофосфорної, ортомиш'якової та ортованадієвої кислот, де радикал М може бути фосфором (P), миш'яком (As) або ванадієм (V), а радикал R – різними одно-, дво- і тривалентними основами (Na, K, Ca, Mg, Cu, Ba, Pb, Mn, Fe, Al, Bi). Вміст  $UO_3$  в них змінюється від 18 до 78 %, при середньому вмісті 60 %. Уранові слюдки утворюють порошкоподібні агрегати, нальоти, плівки на стінках тріщин, заповнюють порожнини. Колір їх зазвичай жовтий або жовтувато-зелений з різними відтінками, блиск перламутровий або скляний, твердість 3 – 4, питома вага коливається від 2,5 до 5,65. Найбільш поширеними представниками уранових слюдок, що мають велике промислове значення, є отеніт, цейнерит та карнотит (табл. 2.1).

## **2.2. Вміст природних радіонуклідів у гірських породах**

У розсіяному стані уран присутній у гірських породах у вигляді ураніл-групи  $(UO_2)^{2+}$ , що знаходиться в адсорбованому стані на поверхні зерен мінералів, або в розчиненому вигляді у складі рідких включень у мінералах. Уран, розсіяний у гірських породах, легко переходить у розчин за рахунок взаємодії зі слабкими кислотами. За даними В.Є. Бойцова та А.Б. Каждана [15] частка рухомого урану, що піддається розчиненню, по відношенню до загальної кількості урану в гірських породах становить від кількох до десятків відсотків.

Уран у вигляді ізоморфних домішок входить до кристалічної решітки циркону, апатиту, монациту, торіаніту, лопариту та ін. За рахунок ізоморфного заміщення відбувається заміщення одного елементу в кристалічній решітці іншим без значної його зміни, при цьому: 1) атоми або іони, що утворюють ізоморфні сполуки, повинні бути близькі за розмірами; 2) ізоморфні з'єднання повинні мати загальний тип хімічної будови; 3) повинна зберігатися електростатична нейтральність нового утворення.

Найбільше ізоморфних домішок урану спостерігається в акцесорних мінералах, вміст яких у гірських породах зазвичай складає менше 1 % об'єму породи. Найбільш високі концентрації урану (U), торію (Th) і радію (Ra) характерні для кислих магматичних гірських порід, а мінімальні – для ультраосновних (табл. 2.2).

Вміст радіоактивних елементів у Землі та у різноманітних гірських породах

Гірські породи	U, $n \cdot 10^{-4}$ , %	Th, $n \cdot 10^{-4}$ , %	Ra, $n \cdot 10^{-10}$ , %
Земна кора (за Г.В. Войткевичем)			
Гранітний шар	4	13,5	1,4
Базальтовий шар	1	4	0,34
Мантия Землі	0,012	0,05	0,004
Ядро Землі	0,003	0,01	0,001
Магматичні породи (за О.П. Виноградовим)			
Кислі	3,5	18	1,2
Середні	1,8	7	0,6
Основні	0,5	3	0,27
Ультраосновні	0,003	0,005	0,01
Осадкові породи			
Гранітні	3,96		
Проміжні	2,61	–	–
Основні	0,96		
Сланці	3,1		
Піщаники	2,0		
Вапняки	1,3		

Серед осадових порід найбільш високий вміст урану в глинах; в деяких районах вміст його в морських чорних сланцях наближається до промислового.

### 2.3. Еманування

*Еманування гірських порід. Еманувальна здатність. Коефіцієнт еманування.*

На збагачення природних вод радіоактивними елементами впливають:

- еманувальна здатність гірських порід і руд,
- їх адсорбційні властивості,
- температура підземних вод.

*Еманування гірських порід* – процес міграції продуктів радіоактивного розпаду, головним чином, радону. Оскільки радон адсорбується в гірських породах у незначній кількості, то його еманування визначається в основному дифузією з «капілярів» гірської породи в навколишню рідку або газову фазу.

Радон з гірських порід може виділятися дифузійним шляхом у значних кількостях у двох випадках [31]:

- 1) радій, з якого утворюється радон, розташований на поверхні породи, дотичній з водою, а не в глибині капілярів («еманувальний колектор»);
- 2) коли радон утворюється з радію, що знаходиться в глибині гірської породи, а вся порода сильно зруйнована.

Еманування відбувається через різницю парціального тиску і не залежить від хімічного складу підземних вод.

Еманування гірських порід характеризується еманувальною здатністю або коефіцієнтом еманування.

*Еманувальна здатність* – кількість радону, що виділяється з 1 г породи за час, достатній для встановлення радіоактивної рівноваги. Коефіцієнт еманування – відношення кількості радону, що виділяється з 1 г породи протягом часу, достатнього для встановлення радіоактивної рівноваги, до всієї кількості радону, що знаходиться в рівновазі з радієм в 1 г породи. Еманувальна здатність виражається в грамах радію, що знаходиться в рівновазі з радоном, що виділяється, а коефіцієнт еманування – у відсотках.

Еманувальна здатність порід залежить від ступеня роздробленості порід, температури, тиску та їх вологості. Підвищення роздробленості, температури та вологості порід посилює еманування, а підвищення тиску – навпаки.

Найбільша здатність еманувати притаманна кислим магматичним породам – граніт-пегматитам, найменша – кварцовим порфірам (табл. 2.3).

*Коефіцієнт еманування.* Максимальна кількість радону, що виділяється з гірських порід, може бути приблизно визначена за формулою (2.1):

$$Q = \frac{K N n}{\gamma} \cdot 10^3, \text{ Кі/л}, \quad (2.1)$$

де  $K$  – коефіцієнт еманування;  $N$  – активність радію в 1 г породи;  $\gamma$  – щільність породи;  $n$  – пористість породи.

Для тріщинних ґрунтових вод кори вивітрювання кислих магматичних порід властиві фонові концентрації радону близько 36 еман, а деяким регіонам – не вище 20 еман.

## Значення коефіцієнтів еманування деяких мінералів, порід та руд

Мінерали, породи, руди	Коефіцієнт еманування, %	Мінерали, породи, руди	Коефіцієнт еманування, %
Уранініт	2,2 – 7,1	Альбітити дрібнозернисті	0,3 – 1,2
Тюямуніт	32	Глинисті пісковики	21 – 39
Кварцити пористі	30 – 44	Гнейси та гранітогнейси	20 – 26,5
Сланці амфібол-біотитові	4 – 12	Граніти	5 – 24
		Трахіліпарити	5,6 – 20
Доломіт кальцинований	0,5 – 1,5	Вапняки	4 – 25
		Ураноносне вугілля	36,8 – 75,6

#### 2.4. Вплив адсорбції та температури на вміст радіонуклідів у гірських породах

*Колоїди. Адсорбція радію та урану. Вплив температури на адсорбцію.*

*Колоїди.* Відомо, що у верхніх шарах земної кори у значних кількостях розповсюджені колоїди. Найбільш поширеними серед позитивних колоїдів є такі:  $\text{Fe}(\text{OH})_3$ ,  $\text{Al}(\text{OH})_3$ ,  $\text{Cr}(\text{OH})_3$ ,  $\text{Ti}(\text{OH})_4$ ,  $\text{Zr}(\text{OH})_4$ ,  $\text{Ce}(\text{OH})_4$  та  $\text{Cd}(\text{OH})_2$ , а серед негативних – глинисті колоїди, гумусові речовини,  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{MnO}_2$ ,  $\text{SnO}_2$ ,  $\text{V}_2\text{O}_5$ ,  $\text{Sb}_2\text{S}_3$ ,  $\text{PbS}$ ,  $\text{As}_2\text{S}_3$  та ін. сульфідів, а також золото, срібло, платина.

У природних умовах поширені, головним чином, негативно заряджені колоїди, за винятком  $\text{Fe}(\text{OH})_3$  та  $\text{Al}(\text{OH})_3$ , що здатні сорбувати позитивні іони, у тому числі уран та радій.

*Адсорбція радію та урану.* Радій добре адсорбується глинистими й органічними речовинами (глини, вугілля, торф), а також залізо-мангановими відкладами. На це вказують різке збагачення радієм опадів, що відкладалися радіоактивними джерелами, та надмірний вміст радію в породах низки родовищ урану.

Перебіг адсорбції тісно пов'язаний з процесом спільного осадження, що характерний для елементів з близькими іонними радіусами. За даними О. Хана

[36], осадження органічних та неорганічних солей барію завжди супроводжується спільним осадженням з'єднань радію, що пояснюється близькістю іонних радіусів. Таким чином, випадання з підземних вод солей барію (наприклад  $BaSO_4$ ) призводить до збіднення їх радієм та осадження його на стінках водопровідних тріщин.

Уран також адсорбується глинистими й органічними речовинами, гідроксидами заліза та марганцю, на що вказує утворення родовищ ураноносних типів вугіль, сланців та «залізних капелюхів».

Отже, адсорбційні процеси сприяють видаленню радіоактивних елементів з розчинів, порушенню радіоактивної рівноваги між радієм та ураном як в породах, так і у водах. У разі адсорбції радію утворюються «еманувальні колектори», які додатково збагачують підземні води радоном.

*Вплив температури на адсорбцію.* Досліди І.Є. Старика, який вивчав питання розчинення торберніта в умовах різних температур [31], показали, що в нейтральному та слаболужному середовищах підвищення температури води викликає посилення переходу в розчин, головним чином, урану, проте в кислому середовищі внаслідок підвищення агресивності – як урану, так і радію (табл. 2.4 і 2.5).

Вміст радону у воді також залежить від температури (рис. 2.4). При підвищенні температури радон розчиняється в меншій кількості, а при зниженні температури – навпаки.

Таблиця 2.4

Інтенсивність переходу урану та радію із торберніта в розчин  
залежно від температури

Температура, °C	Середовище	Кількість радіоактивних елементів, що перейшли в розчин, % від навіски		Ra/U
		Ra	U	
15	H <sub>2</sub> O	1,22	0,13	9,4
60	H <sub>2</sub> O	1,81	0,67	2,7
15	0,1 – н HCl	2,15	1,43	1,5
60	0,1 – н HCl	7,50	2,78	2,7

## Залежність переходу урану в розчин від температури води

Руда	Вміст урану в розчині (г/л) при різній температурі	
	20, °C	70 °C
Уранові слюдки	$1,8 \cdot 10^{-2}$	$2,5 \cdot 10^{-2}$
Уранові черні	$4,5 \cdot 10^{-2}$	$7,4 \cdot 10^{-2}$

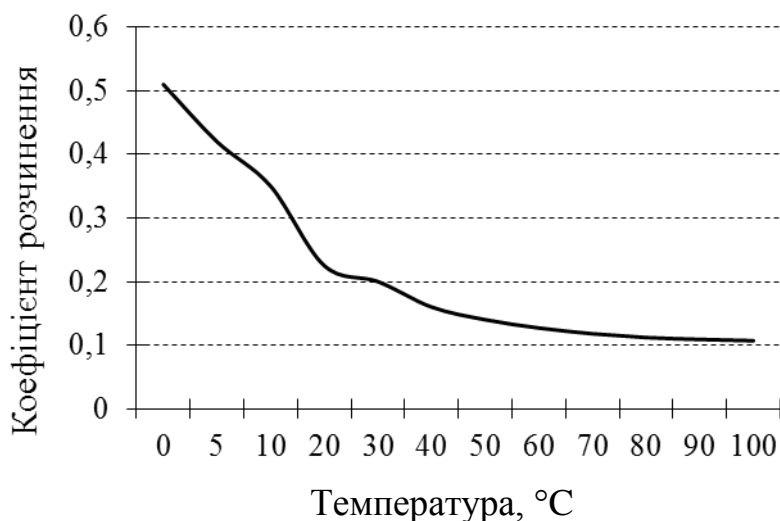


Рис. 2.4. Залежність коефіцієнта розчинення радону від температури води

**Питання для самоконтролю**

1. Як змінюється вміст радіоактивних елементів у гірських породах залежно від їх складу?
2. Які форми знаходження урану в гірських породах вам відомі?
3. Виконайте порівняльну характеристику а) настурану та уранініту; б) настурану та уранової черні.
4. Які основні мінерали уранового ряду вам відомі? Охарактеризуйте їх.
5. Дайте визначення поняттю «еманування гірських порід» та поясніть фізичний сенс коефіцієнта еманування.
6. Опишіть на прикладі радону процес міграції продуктів радіоактивного розпаду.
7. Опишіть закон радіоактивної рівноваги між вмістом радіонуклідів у гірських породах.
8. Як впливає температура на розчинність уранових мінералів?
9. Як впливає адсорбція на вміст урану та радію у гірських породах?

### 3. РОДОВИЩА УРАНУ В СВІТІ

#### 3.1. Розподіл запасів та видобуток урану в світі. Класифікація родовищ

*Ресурси і видобуток урану в світі. Класифікація родовищ урану.*

*Ресурси і видобуток урану в світі.* За даними Світової ядерної асоціації (WNA) розподіл ресурсів урану на 2011 р. очолює Австралія, на долю якої припадає майже третина світових запасів [48] (рис. 3.1). Слід зазначити, що ці оцінки постійно корегуються: за останні роки було відкрито кілька нових родовищ в Азії, зокрема в Монголії та Китаї.

У 2005 р. у світі було видобуто 41250 тонн урану (60 % обсягу його річного споживання в реакторах), а у 2014 р. – 56217 тонн (85 % річного споживання) Решта споживаного урану витягується зі старих ядерних боєголовок. У трійку лідерів виробництва урану в 2014 р. входили Казахстан (23127 тонн U), Канада (9134 тонни U) та Австралія (5001 тонна U). У цьому ж році видобуток урану в Україні склав 926 тонн.

Видобуток урану в країнах Європи помітно зменшився, причому в країнах, що були раніше лідерами в цій галузі (Німеччина, Франція). На перші позиції вийшли країни Азії, Північної Америки та Австралія через більш низьку собівартість видобутку. Країни з найбільшим обсягом видобутку урану показані на рис. 3.2.

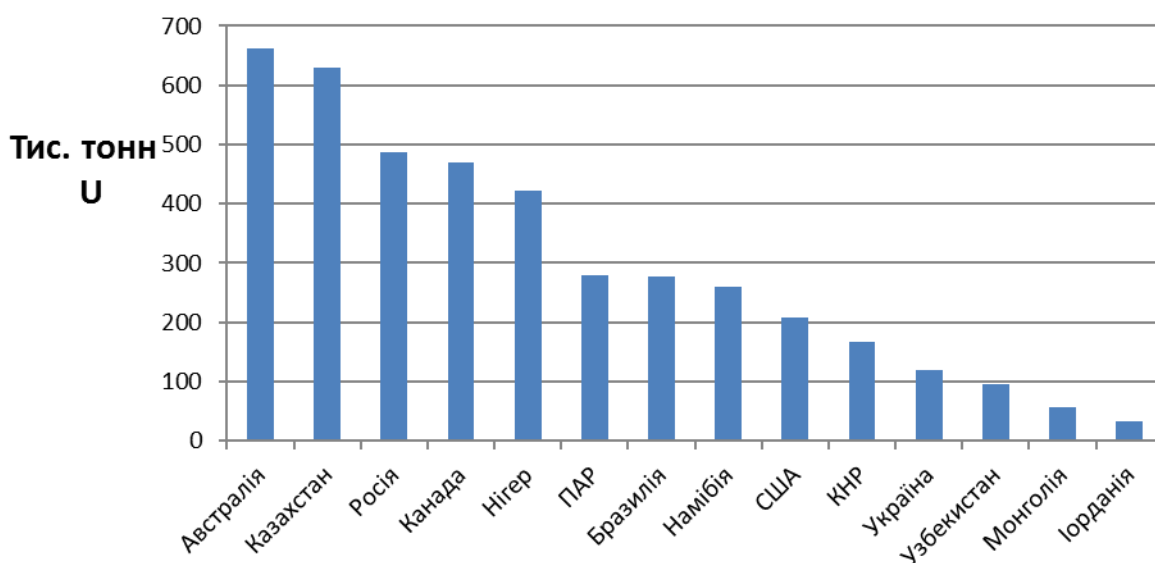


Рис. 3.1. Розподіл запасів урану в країнах світу



Рис. 3.2. Карта світу з виділеними країнами, де видобуток урану на початку XXI століття становив 94 % від загальносвітового видобутку [6]

*Класифікація родовищ урану.* Відповідно до класифікації МАГАТЕ, розробленої в 1988 – 1989 рр., всі відомі родовища урану розділені на 16 геолого-промислових типів, три з яких на сьогодні домінують у його видобутку [28, 29, 39]:

- піщаниковий, що характеризується зв'язком уранової мінералізації з древніми континентальними і прибережно-морськими пісками і пісковиками (родовища Казахстану, Намібії, Нігеру, США, Узбекистану);
- «незгоди», що характеризується належністю зрудніння до зон структурно-стратиграфічних незгод між осадовими породами пізньо-протерозойського віку та інтенсивно зміненими породами кристалічного фундаменту архею та раннього протерозою (Канада, Австралія);
- брекчієвий тип, коли рудами є збагачені ураном гематитовані брекчії вулканічних та інтрузивних порід (Австралія).

Близько 60 % світових підтверджених запасів урану зосереджено в родовищах названих промислових типів. Разом з тим у деяких країнах істотну роль відіграють інші промислові типи, в Південно-Африканській Республіці (ПАР) – конгломератний, в Росії – вулканітовий, в Намібії – інтрузивний.

Альтернативна класифікація заснована на принципі приналежності родовищ до певних типів континентальних структур земної кори. Згідно з нею виділяють такі основні геолого-промислові типи родовищ:

- уранові родовища в областях тектоно-магматичної активації докембрійських щитів (Україна, Намібія, Росія);



- золото-нікель-уранові родовища в зонах карбонатно-магнезіального метасоматоза поблизу поверхонь незгоди різних структурних поверхів (Канада, Австралія);
- родовища в структурах тектоно-магматичної активізації складчастих областей (Казахстан, Німеччина, Чехія);
- родовища у вулкано-тектонічних структурах пізньоорогенного або активізованого етапів розвитку складчастих областей (Росія);
- родовища у морських глинах платформного чохла (Казахстан);
- родовища у водопроникних товщах платформного чохла (Узбекистан, Казахстан, Росія, Україна, США);
- комплексні урановміщувальні родовища (ПАР, Бразилія, Австралія).

### **3.2. Уранові родовища в Україні**

*Класифікація родовищ урану. Типи й будова родовищ. Перспективні родовища.*

*Ресурси урану в Україні.* Україна має сировинну базу у вигляді 12 детально розвіданих ендегенних уранових родовищ, розташованих переважно в Кіровоградській області, які сконцентровані в двох рудних вузлах – Кіровоградському та Новокосянтинівському (рис. 3.3) [14, 39].

До цього слід додати запаси 15 родовищ пісковикового типу, більш придатні для підземного вилуговування. Два з них (Девладівське й Братське) вже повністю відпрацьовані понад 25 років тому, після чого ведеться моніторинг міграції залишкових розчинів у водоносних горизонтах.

Для розробки свердловинним підземним вилуговуванням придатні також Садове, Сафонівське, Новогур'ївське й Сурське родовища. Розвідані запаси урану на цих родовищах складають близько 8 тис. тонн. Родовища пісковикового типу за своїми розмірами належать до дрібних і середніх із запасами урану до 3 тис. тонн. У центрі, на сході, у північно-західній і західній частинах Дніпровського буровугільного басейну визначено кілька площ, перспективних на виявлення родовищ та окремих покладів урану.

*Типи й будова родовищ.* Близько 76 % всіх покладів являють собою родовища альбітитового типу, 11 % належать до пегматитових родовищ, 7 % – до піщаників і решта (6 %) являють собою родовища конгломератного, бітумінозного та інших типів.

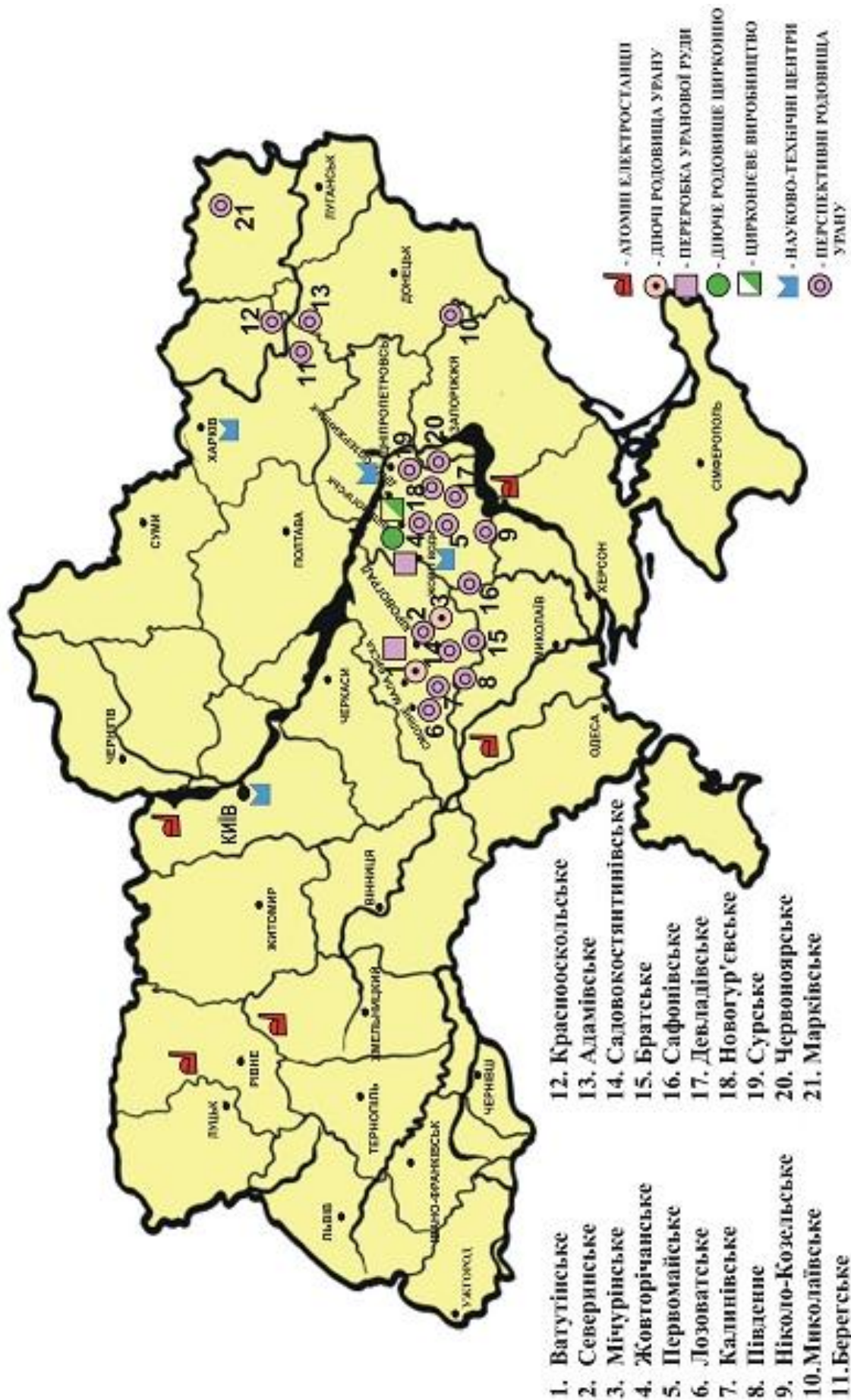


Рис. 3.3. Карта уранових родовищ України [39]

У структурному плані Кіровоградська металогенічна область належить до однойменного геоблоку, західним кордоном якого є Південно-Бузький розлом, а східним – Криворізько-Кременчуцький. У геологічному відношенні Кіровоградський район знаходиться у межах однойменного геоблоку Українського щита, у його центральній частині.

Будову району визначає великий Корсунь-Новомиргородський антиклінорій. Мічурінське, Северинське та інші родовища східної частини Кіровоградського рудного району обмежені Кіровоградським розломом, а Ватутінське родовище – Звенигородсько-Аннівським. Уранові мінерали в рудах – це ураніт, настуран, бранерит, кофініт, гідроксиди, силікати урану й уранові черні. Розвідані та попередньо оцінені ресурси урану в Кіровоградському урановому районі перевищують 100 тис. тонн, а прогнозні становлять близько 200 тис. тонн.

*Перспективні родовища.* Крім названих промислових типів уранових родовищ в Україні є геологічні передумови виявлення родовищ руд металів, багатих на уран: гідротермальні жильні й родовища типу стратиграфічної «незгоди». Жильне уранове зрудніння широко розвинене в Українському щиті. Тут відомі перспективні Червоно-Шахтарське і Північно-Березнянське рудопрояви із вмістом урану в рудах від 0,2 – 0,7 % до 4 – 6 %. Всього відомо 75 рудопроявів жильних руд. Найбільші перспективи відкриття жильних родовищ є у Казанківсько-Жовторічинському рудному вузлі, а також Сквирсько-Тетіївському, Богуславському, Гайворонському й Вовчанському потенційних рудних вузлах.

### **3.3. Родовища урану в Азії**

*Родовища в країнах Середньої Азії, в азіатській частині Росії. Родовища в Монголії та Китаї.*

*Родовища в країнах Середньої Азії.* Запаси урану в Казахстані складають 1,5 млн тонн, значна частина з яких сприятлива для видобутку способом підземного вилуговування. Окремі родовища (Інка, Минкудук, Харасан) є унікальними: у них зосереджені сотні тисяч тонн урану в компактних і багатих рудах. За обсягами запасів Чу-Сарисуйська (Шу-Сарисуйська) ураново-рудна провінція в Південному Казахстані (рис. 3.4) є найбагатшою.



Рис. 3.4. Уранові родовища Казахстану [6]: відсоток позначає частку запасів родовища від загальних запасів урану в країні

На території Казахстану за часів СРСР уран добувався на родовищах поблизу міст Актау (Прикаспійська низина) та Степногірська (Целиноградська область). З середини 1990-х років весь видобуток урану в Казахстані здійснюється лише методом підземного вилуговування. Найбільш потужні родовища – Уванас, Східний та Центральний Мінкудук, Канжуган, Північний і Південний Карамуруніз із сумарними запасами близько 80 тис. тонн.

У родовищі Сузак (Чу-Сарисуйська провінція), що експлуатується достатньо недавно, природні умови для видобутку урану досить сприятливі: рудні тіла розташовані на глибині 400 – 500 м й перекриті зверху шаром глини й суглинків, що легкі для буріння й одночасно виконують ізолюючу роль. Загальні запаси Чу-Сарисуйської та Сирдар'їнської уранових провінцій сягають 1,2 млн тонн. Геолого-гідрогеологічні умови на цих родовищах сприятливі для підземного вилуговування, зараз ці родовища розробляються з використанням сірчаної кислоти.

Загальні запаси урану в Узбекистані оцінюються в 185 тис. тонн, з яких приблизно 114 тис. тонн можуть бути відпрацьовані способом підземного вилуговування. Разом з цим потенційні ресурси сягають 240 тис. тонн, з яких 190 тис. тонн належать до піщаникового типу.

Основні родовища урану експлуатуються поблизу міст Навої та Учкудук, причому місцями урановміщувальні руди видобуваються одночасно із золотом (шахта Кокпатас з виділенням урану на Навоївському гірничо-металургійному комбінаті). З 1995 р. уран в Узбекистані видобувається лише способом підземного вилуговування переважно на родовищах Учкудук (центральні Кизилкуми), Сугралі, Північний і Південний Букінай, Айленді, Бешкак, Кетменчі та Сабирсай.

Табошарське родовище в Таджикистані було відкрито у 1926 р., після чого уранові родовища були знайдені також у місцевостях Адрасмані та Майлісі. Крім цих родовищ, у середині ХХ ст. розроблялися родовища урано-ванадієвих руд у сел. Чігирик (Ташкентська обл.), уранові руди біля м. Чкаловська (Ленінабадська обл.). Запаси промислового урану в Таджикистані обмежені й практично вичерпалися до середини 1950-х рр.

Родовища в Киргизії довгий час були єдиним джерелом урану та радію в СРСР. Найпотужнішим родовищем вважалось Майлуу-Суу, де уран видобувався з уран- і торієвмісних свинцевих, урановмісних руд одночасно з видобутком лігніту, золота та урано-ванадієвих руд. Зараз видобуток урану згорнуто, а Караболтинський гірничорудний комбінат переробляє сировину з Казахстану.

*Родовища в азіатській частині Росії.* Більшість потужних покладів урану в Росії розташовані в її азіатській частині. У Стрельцовському рудному районі (155 тис. тонн урану), який знаходиться в Читинській області, зосереджена значна частина підготовлених до експлуатації запасів. Родовища належать до фтор-уран-молібденової формації тріщинно-жильного типу у вулканотектонічних структурах.

Значна частина розвіданих запасів розташована також у межах Ельконського ураноносного району Якутії і Забайкалля. Тут виявлено понад 40 родовищ тріщинно-жильного типу із запасами 350 тис. тонн, а загальні ресурси району становлять 600 тис. тонн. Гірське і Березівське родовища бета-цеоліт-уранотілового типу залягають у радіоактивних гранітах, Оловське родовище – у вулканотектонічній западині. У Витимському ураноносному районі в Забайкаллі було виявлено низку нових родовищ, переважно у палеодолинах.

У Зауральському ураноносному районі найбільш відомі Долматівське, Хохловське й Добровільне родовища. Вони залягають у піщаних відкладах під потужною товщею (до 700 м) глинистих порід. В даний час ведеться промислове освоєння Долматівського родовища.

*Родовища в Монголії.* Ймовірні запаси урану в країні після недавнього відкриття нових родовищ оцінюються в 1,4 млн тонн. Найбільші запаси зосереджені в добре розвіданих родовищах на сході країни: Дорнод та Гурван Булаг, де видобуток проводився до кінця 1990-х рр.

На півдні країни розташована низка родовищ, переважно гідрогенного типу, зокрема Хараат, Хайрхан та Ульзіт. Сучасна поверхня цих родовищ у пустелі Гобі сформована під впливом мезозойських і кайнозойських тектонічних рухів в умовах континентального накопичення осадових порід. Рудовміщувальні породи – це різнозернисті, частіше дрібно-тонкозернисті піски, що перешаровуються з алевролітами і глинами. Рудні тіла локалізуються часто у відкладах руслових, заплавних та прибережно-озерних фацій, що пов'язане з проявом широкомасштабних процесів епігенетичного окиснення. Потужність рудних тіл сягає 6 м, вміст урану – до 0,15 %, місцями до 0,25 %, продуктивність – до 12 кг/м<sup>2</sup> при їх розташуванні зазвичай на глибині кілька десятків метрів. Деякі рудні тіла залягають на глибинах понад 300 м. Типові родовища охоплюють площу кілька квадратних кілометрів. На деяких родовищах може бути визначено кілька рівнів зрудніння за глибиною. Більшість рудних покладів цих родовищ обводнені й придатні для відпрацювання методом підземного вилуговування.

*Родовища в Китаї.* Запаси урану в Китаї оцінюються в 1,7 % світових. У період 1962 – 1965 рр. уран видобувався на восьми родовищах. Найстаріший урановий рудник, відкритий ще в 1958 р., знаходиться в провінції Хунань. Ця найбільша підземна шахта країни відома у світі оригінальністю конструкцій підземних виробок. Значна кількість уранових шахт зосереджена в центрі, зараз вони будуються в північно-західному і північному Китаї, де за останні роки були виявлені нові родовища урану, зокрема, у Внутрішній Монголії та в області Сінцзян.

### **3.4. Уранові родовища Північної Америки, Австралії та Африки**

*Родовища в Канаді та Сполучених Штатах Америки. Родовища в Австралії та країнах Африки.*

*Родовища в Канаді.* Канада багато років є одним з основних виробників уранової руди в світі. На її території розташовані унікальні родовища типу стратиграфічної «незгоди», що відрізняються багатими рудами.

Загальні запаси урану в країні в 2011 р. оцінювалися у майже 470 тис. тонн. Родовища локалізовані в докембрійських утвореннях Канадського щита, перш за все це ураново-рудний район Блайнд-Рівер, де середня концентрація урану складає 0,08 %. Родовища уранових руд у Канаді пов'язані з докембрійськими кварцовими конгломератами, містять ураніт і багатий ураном монзоніт з жилами, що містять уранову смолку і з пегматоїдними фаціями сієнітів і гранітів з уранінітом і ураноторітом.

Основні запаси урану зосереджені в родовищах, розвинених в основі нижньопротерозойських відкладів у структурній провінції Південна на узбережжі озер Гурон та Онтаріо; головні родовища розташовані в районі Елліот-Лейк (Блайнд-Рівер).

Друга група родовищ, де спочатку видобувався радій, належить до структурних провінцій Бер (східне узбережжя озера Велике Ведмеже і на південний схід від нього) і Черчилл (північне узбережжя озера Атабаска і райони на південний схід від озера Невільниче); головні родовища – в районах Порт-Радій (озеро Велике Ведмеже) і Ураніум-Сіті (озеро Атабаска). Родовище урану поблизу Ураніум-Сіті належить до типу «незгоди», воно вважається унікальним за запасами та якістю руд, що зумовлено особливою інтенсивністю процесів передрудної підготовки, тривалим рудоутворенням і вельми сприятливими літолого-структурними умовами формування руд. У генетичному відношенні це низькотемпературне гідротермальне родовище.

Третя група родовищ знаходиться у південно-західній частині провінції Гренвіл, тому пов'язана з інтрузіями гренвільського віку, і на півдні структурної провінції Черчилл (район Саскачевану), де межує з Гудзонськими гранітоїдами.

Описані родовища розробляються підземним способом і частково – способом підземного вилуговування.

*Родовища в Сполучених Штатах Америки.* За запасами уранових руд США тривалий час займали перше місце серед країн з розвинутою урановою промисловістю і лише на початку 1980-х рр. перемістилися на п'яте.

Головні родовища урану знаходяться на плато Колорадо, у міжгірських западинах штату Вайомінг і в західній частині прибережної рівнини Мексиканської затоки. Основним джерелом видобутку урану є осадові родовища плато Колорадо. Тут є відносно бідні руди, карнотит, що містить у середньому 0,25 % оксиду урану і 2 % ванадію. Карнотит зустрічається в районах плоскогір'я Колорадо, особливо в штатах Юта, Колорадо, Арізона і Нью-Мексико. Промислові запаси урану зосереджені в трьох основних рудних провінціях західних районів країни:

1) на плато Колорадо (рудні райони Грант, Юраванський пояс, Лісбон-Валлі);

2) в міжгірських западинах штату Вайомінг (рудні райони Шерлі-Бейсін, Гас-Хілл, Паудер-Рівер та ін.);

3) у західній частині прибережної рівнини Мексиканської затоки (родовища Фелдер, Панна-Марія та ін.).

Ряд середніх за масштабами родовищ розташовані в Кордильєрах (Андерсон-Майн, Мерісвейл). Основні запаси уранових руд (понад 95 %) зосереджені в епігенетичних інфільтраційних (піщаникових) родовищах, що залягають у неметаморфізованих теригенних породах тріасово-юрського і неогенового віку (еоцену) на глибині до 1200 м. Середній вміст  $U_3O_8$  у рудах коливається від 0,1 до 0,3 %. Головними рудними мінералами є кофініт, оксиди урану, карнотит; в деяких випадках це комплексні руди, зокрема, урано-ванадієві (1,25 – 1,5 %  $V_2O_5$ ). У даний час відомо близько 60 дрібних уранових родовищ піщаникового типу, придатних до експлуатації способом підземного вилуговування. У найбільших з них (Рено Крик, Сміт Ранч, Хайленд) зосереджено близько половини запасів урану в США.

*Австралія.* У країні відомо 50 великих родовищ, сконцентрованих в основному на півночі. Вони являють собою стратиформні поклади настуранових руд у нижньопротерозойських сланцях. У південній Австралії родовища урану розташовані в рудному районі Аделаїда. На відстані 460 км на північний схід від м. Аделаїда знаходиться велике родовище Радіум-Хілл. Найбільш потужними родовищами з видобутку урану в Австралії є Рейнджер, Олімпік-Дем та Беверлі.

Родовище Олімпік-Дем (Олімпійська дамба) – найбільше в світі за запасами урану (достовірні запаси 356 тис. т  $U_3O_8$ ). Це комплексне мідно-золото-уранове родовище розташоване на скелястому фундаменті геологічної провінції Стюарт Шелл у північній частині Південної Австралії. Рудне тіло залягає в магнітній гідротермальній гематитовій комплексній брекчії на глибині 350 м і розділене на окремі зони. Головним цінним компонентом є мідь (Олімпік-Дем входить до п'ятірки найбільших родовищ міді), а уран, золото і срібло видобуваються попутно. Уран міститься у дрібнозернистій урановій обманці та бранериті.

Рудник Біверлі розташований на рівнині за 600 км на північ від Аделаїди. Вміст урану складає 0,18 %. Це середнє за запасами родовище урану, воно являє собою заповнений піском палеоканал на глибині 110 м – водоносний шар Біверлі. Рудне тіло розділене на три частини. Урановміщувальні лінзи



знаходяться в пісках родовищ «незгоди» на глибині 100 – 130 м і тягнуться вздовж палеоканалу на 4 км. Солоність води, що фільтрується через рудне тіло, зростає від 3000 до 12000 мг/л. Вважається, що цей водоносний шар ізольований від інших шарів ґрунтової води, а видобуток урану ведеться способом підземного вилуговування (рис. 3.5).



Рис. 3.5. Завод з підземного вилуговування урану на родовищі Біверлі (Австралія) [6]

*Родовища в країнах Африки.* Уранові родовища в Нігері розташовані в палеозойсько-мезозойському платформному прогині на південно-західних схилах масиву Аїр; розробляються з 1971 р. Зараз експлуатується родовище Таза піщовикового типу в рудній провінції Арліт. Вміст урану в руді складає 0,25 – 0,5 %.

Намібія за запасами урану займала восьме місце в світі у 2011 р. (261 тис. т). Тут розробляється ряд родовищ, розташованих у протерозойських відкладах Дамарського складчастого поясу. У цьому місці також знаходиться найбільший на планеті урановий рудник «Россінг», що експлуатується з 1976 р. У 2003 р. відкрито нове велике родовище, розташоване північніше цього рудника в гірському масиві Еронго. Товщина пласта, в якому залягає уран, досягає ста метрів, але вміст урану нижче, ніж на руднику «Россінг». Загалом у Намібії розвідано 8 родовищ, два з яких розробляються.

У Південно-Африканській Республіці уран видобувається попутно на родовищах золота (запаси урану 117,0 тис. т). Найбільші рудники зосереджені

переважно в межах докембрійської групи Вітватерсранд, де в основному відпрацьовуються хвости золотодобувного виробництва. Видобуток ведеться у глибоких шахтах.

### ***Питання для самоконтролю***

1. У яких країнах світу зосереджені основні запаси урану?
2. Які країни є лідерами з видобутку урану в світі?
3. Охарактеризуйте типи родовищ урану за класифікацією МАГАТЕ (Міжнародної агенції з атомної енергії).
4. Що таке родовища типу «незгоди» (або «стратиграфічної незгоди»)?
5. Охарактеризуйте типи родовищ урану за їх приналежністю до континентальних геологічних структур.
6. У яких районах зосереджені основні запаси урану в Україні? Охарактеризуйте їх.
7. Охарактеризуйте геологічні особливості родовищ урану в країнах Середньої Азії.
8. Охарактеризуйте геологічні особливості родовищ урану в азійській частині Росії, у Монголії та Китаї.
9. Порівняйте геологічні умови родовищ урану в Казахстані та Монголії.
10. Охарактеризуйте основні типи родовищ у Канаді.
11. Де зосереджені основні запаси урану в США?
12. Охарактеризуйте основні родовища урану в країнах Африки.

## 4. РАДІОАКТИВНІ ВОДИ

### 4.1. Геолого-структурні та гідрогеологічні умови формування радіоактивних вод

*Вплив фізичного вивітрювання. Кліматичні умови. Гідрогеологічні умови. Вертикальна зональність розподілу урану.*

У процесі збагачення природних вод радіоактивними елементами велику роль відіграють:

- ступінь розкриття геологічних структур або їх елементів;
- клімат;
- гідрогеологічні умови.

До перспективних належать розкриті геологічні структури, слабо перекриті з поверхні чохлам водонепроникних відкладів. Породи, що складають такі структури, найбільш схильні до процесів фізичного та хімічного вивітрювання.

*Вплив фізичного вивітрювання.* Основними факторами фізичного вивітрювання є коливання температури та пов'язані з ними періодичне замерзання й відтавання порід. Фізичне вивітрювання сприяє збагаченню природних вод радоном та радієм за рахунок збільшення коефіцієнта еманування порід і ступеня вилуговування радію. Атмосферні опади, насичені киснем та вуглекислою, потрапляючи в породи, підвищують інтенсивність їх руйнування (хімічне вивітрювання), а також інтенсивність окиснення уранових і урановмісних мінералів, тим самим вони сприяють переходу урану в природні води. Отже, вивітрювання, що відбувається в окиснювальних умовах, призводить до переходу  $U^{4+}$  в  $U^{6+}$  та утворенню водорозчинних сполук урану.

У напівзакритих та закритих геологічних структурах збагачення підземних вод ураном відбувається надто повільно, тому хімічний склад вод формується протягом мільйонів років.

*Кліматичні умови* району також суттєво впливають на формування радіоактивних вод. В областях з аридним кліматом концентрація урану у воді підвищується за рахунок інтенсивного випаровування. Іноді у водах озер вміст урану сягає  $10^{-2}$  г/л. У районах, де опади переважають над випаровуванням, високі концентрації урану зустрічаються лише на обмежених ділянках – у місцях розвитку ураноносних порід. За таких умов ореолам розсіювання урану притаманні обмежені розміри, а його концентрація у воді поступово знижується

внаслідок віддалення від джерела збагачення. У районах з холодним вологим кліматом процеси окиснення та руйнування порід протікають повільно, що обумовлює незначне збагачення вод ураном.

*Гідрогеологічні умови.* До сприятливих гідрогеологічних умов слід віднести: водну рясність порід, наявність шляхів фільтрації, глибину залягання водоносного горизонту, характер водообміну, інтенсивність циркуляції води, умови живлення тощо. Аналіз вмісту U у підземних водах залежно від глибини залягання водоносного горизонту вказує на чітке зменшення ураноносності вод з глибиною залягання горизонту підземних вод (рис. 4.1).

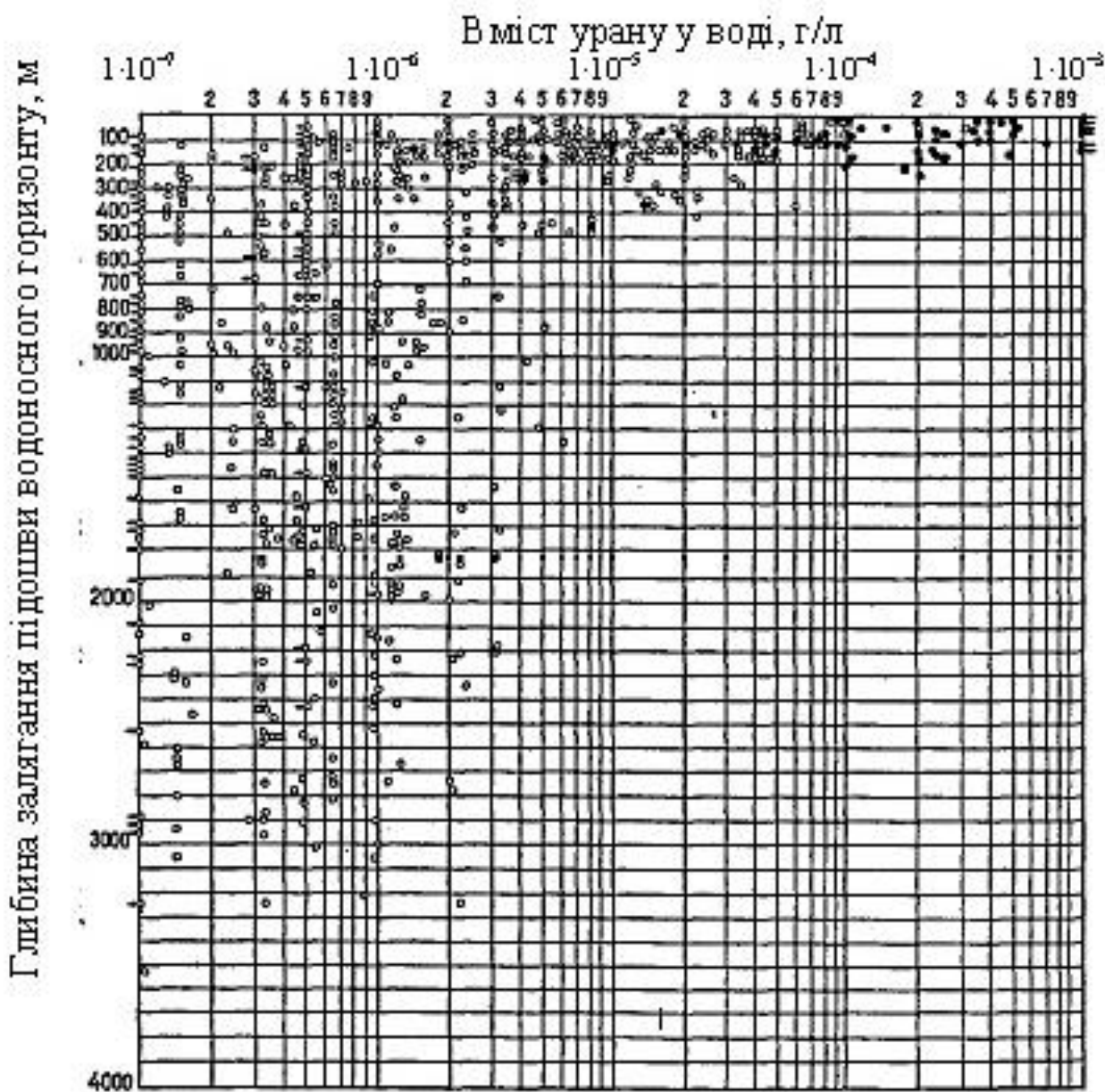


Рис. 4.1. Залежність вмісту урану в підземних водах від глибини залягання водоносного горизонту [16]

Так, фоновий вміст урану, що складає близько  $10^{-5}$  г/л, встановлений до глибини 200 – 300 м; на цьому інтервалі води можуть бути збагачені ураном до величини  $10^{-3}$  г/л. На глибинах понад 1 км вміст урану не перевищує  $10^{-6}$  г/л, а зі зростанням глибин спостерігається тенденція до подальшого зменшення його вмісту.

*Вертикальна зональність розподілу урану.* Розподіл урану та інших розчинених компонентів у природних водах також описується «вертикальною» зональністю, яка полягає в зміні складу та кількості розчинених солей, газів, мікроорганізмів, величин рН, Eh та інших показників з глибиною.

Згідно з дослідженням А.І. Германова [31] розрізняють два типи зональності. У першому типі вертикальної гідрогеохімічної зональності, на відмінну від другого типу, в нижніх частинах водоносного горизонту містяться біологічно активні речовини (бітуми та інші органічні сполуки), що здатні брати участь у біохімічних або хімічних реакціях як сильний відновник. Межі між гідрогеохімічними зонами проводяться умовно, згідно з кількістю розчинених солей. Даним розрізам притаманне зростання загальної мінералізації водоносного горизонту залежно від глибини його залягання.

У гідрогеохімічному розрізі першого (бітумінозного) типу спостерігається чотири геохімічні зони:

- кисневих вод (включає зону аерації, коливань рівня та насичення),
- безкисневих вод (вуглекисло-азотних та азотно-вуглекислих),
- вуглекисло-сірководневих вод,
- вуглеводневих вод.

У цьому розрізі чітко проявляється відмінність між крайніми зонами відносно розподілу в водах урану та інших показників.

Другий тип гідрогеохімічного розрізу складається із зон кисневих вод та безкисневих азотних або вуглекислих вод.

У кисневій зоні, де циркулюють води з високим окиснювально-відновним потенціалом (Eh перевищує +300 мВ), відбувається окиснення  $U^{4+}$ , уранових та урановмісних мінералів до  $U^{6+}$ , а також інтенсивний перехід урану з порід і руд у підземні води з подальшою його міграцією.

У нижній частині розрізу розвинені води з відновлювальними умовами, що характеризуються наявністю вуглеводневих газів, відносно великою кількістю органічної речовини та низькими значеннями Eh (від –50 до +400 мВ). Вони містять уран у дуже малих кількостях – від  $n \cdot 10^{-8}$  до  $n \cdot 10^{-7}$  г/л, зрідка до  $2 \cdot 10^{-6}$  г/л.

Уранові та урановмісні мінерали у зоні азотних або вуглекисло-азотних вод окиснюються швидко, оскільки підземні води характеризуються позитивними значеннями Eh (від +300 мВ до 0).

У тектонічно мобільних регіонах відбувається швидке розбавлення та витіснення ропи інфільтраційними водами за рахунок інтенсивного водообміну, що обумовлює циркуляцію прісних і солонуватих підземних вод на глибинах 3 – 4 км. Фактори, що визначають розподіл радіоактивних елементів у підземних водах цих регіонів, вивчені недостатньо. Наявні дані свідчать про широкий діапазон вмісту урану в мінеральних водах (від  $2 \cdot 10^{-8}$  до  $1 \cdot 10^{-4}$  г/л). У цих регіонах залягають сірководневі та вуглеводневі окисно-відновні води (Eh менше –50 мВ).

Мінеральні води в окисному середовищі (Eh перевищує +100 мВ) містять більше урану, якщо вони циркулюють у збагачених ураном породах. Вуглекислі води містять більше урану, ніж підземні води зони активного водообміну, що пов'язано з полегшеним переходом урану з більшої частини порід унаслідок інтенсивного впливу вуглекислих вод. Якщо ж у вуглекислих водах містяться відновники ( $H_2S$ , бітуми та інші органічні речовини), то вилуговування урану з порід практично не відбувається; за цих умов підземні води містять уран у кількостях  $n \cdot 10^{-7} - 10^{-6}$  г/л.

## 4.2. Хімічний склад природних вод

*Вплив аніонного складу. Вплив катіонного складу. Вплив мінералізації.*

*Вплив аніонного складу.* На збагачення природних вод ураном істотно впливає їх аніонний склад. Найбільший вплив на розчинність уранових мінералів мають гідрокарбонати, які утворюють легкорозчинні сполуки типу  $Na_4UO_2(HCO_3)_3$ , найменший – хлориди (табл. 4.1). Зазначена в табл. 4.1 нормальна концентрація еквіваленту – це кількість моль-еквівалентів речовини, що знаходяться в 1 л розчину. Наприклад, молярна маса  $H_2O$  складає 17,999 г/моль, що в перерахунку на концентрацію дорівнює 0,899 г/л.

Для підвищених концентрацій урану в підземних водах достатньо, аби в них містилося 100 – 300 мг/л  $HCO_3^-$ ; при вмісті  $HCO_3^-$  менше 100 мг/л концентрація урану в розчині знижується.

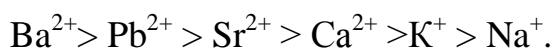
Аніони  $SO_4^{2-}$  та  $Cl^-$  при рН, близьких до нейтральних, не впливають на інтенсивність розчинення урану.

## Розчинність урану залежно від аніонного складу розчинів [31]

Руда	Вміст U у воді та в 0,05-нормальних сольових розчинах							
	$H_2O$		$NaCl$		$Na_2SO_4$		$NaHCO_3$	
	г/л	% від навішення	г/л	% від навішення	г/л	% від навішення	г/л	% від навішення
Кварцовий порфір з настураном	$5,4 \cdot 10^{-4}$	0,78	$3,3 \cdot 10^{-4}$	0,48	$2 \cdot 10^{-3}$	2,88	$4,3 \cdot 10^{-2}$	62,7
Кварцовий порфір з черню	$6,1 \cdot 10^{-3}$	5,1	$2,2 \cdot 10^{-3}$	1,8	$5,5 \cdot 10^{-3}$	4,9	$5,7 \cdot 10^{-2}$	47,6
Кварцовий порфір зі слюдками	$5,1 \cdot 10^{-4}$	1,2	$5,5 \cdot 10^{-4}$	0,13	$2,7 \cdot 10^{-4}$	0,56	$4,1 \cdot 10^{-2}$	93,1
Вапняк з черню	$4,3 \cdot 10^{-4}$	0,55	$3,2 \cdot 10^{-3}$	2,6	$3,7 \cdot 10^{-3}$	3,88	$8,3 \cdot 10^{-2}$	86

*Вплив катіонного складу.* Катіонний склад води помітно впливає на розчинність урану тільки в гідрокарбонатних водах. Серед поширених катіонів найбільше впливає  $Mg^{2+}$ , потім  $Ca^{2+}$  та  $Na^+$  – вони утворюють легкорозчинні сполуки урану.

На розчинність урану та вилуговування з порід мінералів радію більшою мірою впливає катіонний склад природних вод (рис. 4.2). Чим більше хімічна спорідненість елемента до радію, чим ближче його іонний радіус до іонного радіуса радію, тим сильніше він витісняє радій з мінералів та порід. За силою впливу на розчинність радію катіони розташовуються в такий ряд:



Отже, найбільш легко радій з порід обмінюється на катіон барію, розчинений у воді. Проте присутність у воді іона  $SO_4^{2-}$  сприяє утворенню важкорозчинної солі  $BaSO_4$ , яка випадає в осад. Унаслідок цього більшість радієносних вод не містять сульфатів.

*Вплив мінералізації.* Збільшення загальної мінералізації води мало позначається на збагаченні вод ураном. Лише збільшення гідрокарбонат іона підвищує можливість міграції урану. Підвищені концентрації солей у розчині значно інтенсифікують процес вилуговування радію з деяких руд (табл. 4.2).

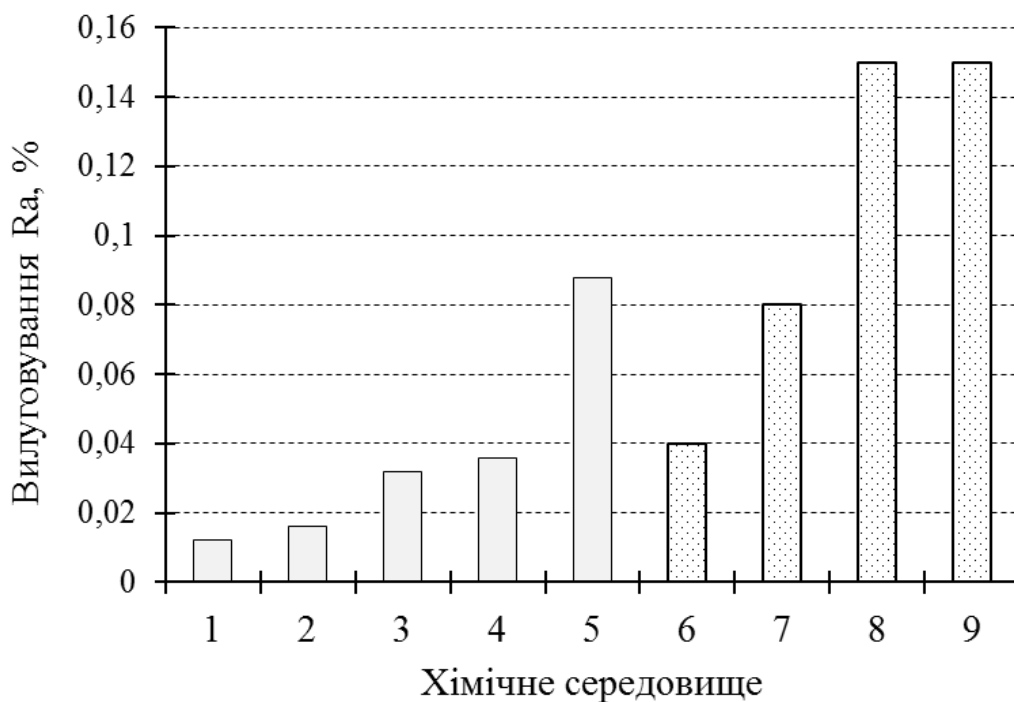


Рис. 4.2. Діаграма вилугування Ra солями [31]:  
 1 – 5 – 0,001-нормальні розчини  $H_2O$ , NaCl,  $CaCl_2$ ,  $SrCl_2$ ,  $PbCl_2$  відповідно;  
 6 – 9 – 0,00001 – 0,01-нормальні розчини  $BaCl_2$  відповідно

Таблиця 4.2

Розчинність урану та радію залежно від концентрації солей у розчині [31]

Руда	Вміст U та Ra (в г/л) у розчині NaCl з концентрацією (в г/л)							
	1		20		100		200	
	U	Ra	U	Ra	U	Ra	U	Ra
Гранодіорит зі слюдками	$2,7 \cdot 10^{-3}$	$3,1 \cdot 10^{-10}$	$2,8 \cdot 10^{-3}$	$1,8 \cdot 10^{-9}$	$3,6 \cdot 10^{-3}$	$5,4 \cdot 10^{-9}$	$7,2 \cdot 10^{-3}$	$1,8 \cdot 10^{-9}$
Гранодіорит з черню	$7,2 \cdot 10^{-4}$	$2,5 \cdot 10^{-10}$	$5,4 \cdot 10^{-3}$	$5 \cdot 10^{-10}$	$2,9 \cdot 10^{-2}$	–	$8,4 \cdot 10^{-3}$	–
Вапняк з черню	$7,8 \cdot 10^{-2}$	$5,2 \cdot 10^{-11}$	$1,8 \cdot 10^{-1}$	$6 \cdot 10^{-10}$	$1,8 \cdot 10^{-1}$	$2 \cdot 10^{-9}$	$1,8 \cdot 10^{-1}$	$2 \cdot 10^{-8}$
Вапняк з тюямунітом	$5,4 \cdot 10^{-4}$	$1,9 \cdot 10^{-11}$	$5,4 \cdot 10^{-4}$	$8,9 \cdot 10^{-10}$	$1,8 \cdot 10^{-3}$	$3,6 \cdot 10^{-9}$	$1,4 \cdot 10^{-3}$	$1,87 \cdot 10^{-9}$



Підземні води з високим вмістом радію формуються внаслідок омивання ними родовищ уранових руд. Високий вміст радію також притаманний сильно мінералізованим водам хлоридно-кальцієвого складу, тому висока мінералізація та присутність у них хлоридів лужних і лужноземельних металів, з одного боку, зменшують адсорбцію радію гірськими породами, а з іншого – сприяють процесам катіонного обміну та зростанню кінетики вилуговування радію.

#### **4.3. Вплив геохімічних умов на формування радіоактивних вод. Геохімічні бар'єри**

*Вплив газового складу. Вплив кислотності. Вплив окисно-відновного потенціалу.*

*Вплив газового складу.* Природні радіоактивні води формуються залежно від їх газового складу, концентрацій водневих іонів (рН) та окиснювально-відновного потенціалу (Eh).

Підземні води збагачені  $O_2$ ,  $CO_2$ ,  $CH_4$ , важкими вуглеводнями та благородними газами. Вільний кисень є визначальним у процесах окиснення. При цьому елементи зі змінною валентністю переходять в іони з більш високою валентністю. Наприклад, чотиривалентний важкорозчинний уран переходить у легкорозчинну шестивалентну форму. Вуглекислий газ відіграє основну роль у міграції урану. Вуглекислота, що присутня практично в усіх інфільтраційних водах, сприяє розчиненню уранових мінералів та створенню карбонатного середовища, у якому шестивалентний уран утворює легкорухливі комплексні карбонатні сполуки. Кисень найбільше сприяє переходу в розчин урану з настурану та черней, а вуглекислий газ – з карбонатних порід (рис. 4.3).

Насичення води вуглекислою призводить до її збагачення радієм (табл. 4.3).

Метан не впливає на міграцію урану, і лише в присутності сульфатів кальцію утворюється сірководень, який є осаджувачем урану. Азот та благородні гази не впливають на перехід урану з порід у воду. Сірководень, створюючи відновні умови, сприяє переведенню  $U^{6+}$  в  $U^{4+}$  та випаданню його в осад (табл. 4.4).

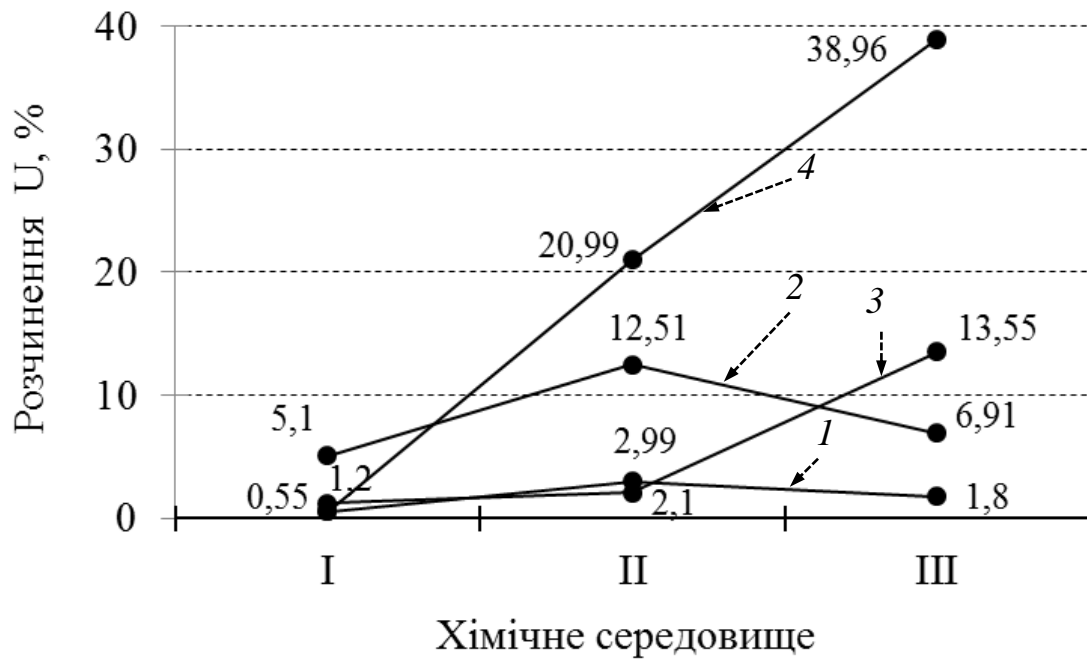


Рис. 4.3. Зміна розчинення урану із руди (1–4) залежно від газового складу вод I – III [31]: 1 – 3 – кварцовий порфір з настураном, черню та зі слюдками відповідно; 4 – вапняк з черню; I – III:  $H_2O$ ,  $H_2O + O_2$ ,  $H_2O + CO_2$

Таблиця 4.3

Розчинність радію залежно від газового складу вод [31]

Руда	Вміст Ra у розчинах, г/л					
	$Ca(HCO_3)_2$	$Ca(HCO_3)_2 + CO_2$	$CaSO_4$	$CaSO_4 + CO_2$	NaCl	NaCl + $CO_2$
Гранодіорит з черню	$6 \cdot 10^{-10}$	$7 \cdot 10^{-10}$	$2,6 \cdot 10^{-11}$	$2,3 \cdot 10^{-9}$	$2,5 \cdot 10^{-10}$	$7,2 \cdot 10^{-10}$
Кварцовий порфір	$2,3 \cdot 10^{-10}$	$1,5 \cdot 10^{-9}$	$1,2 \cdot 10^{-11}$	$2,8 \cdot 10^{-10}$	$3,1 \cdot 10^{-10}$	$6,9 \cdot 10^{-10}$
Вапняк з черню	$4,6 \cdot 10^{-9}$	$8,2 \cdot 10^{-9}$	$7 \cdot 10^{-10}$	$2,1 \cdot 10^{-9}$	$6 \cdot 10^{-10}$	$1 \cdot 10^{-8}$
Вапняк з туюмунітом	$7,1 \cdot 10^{-9}$	$8,7 \cdot 10^{-9}$	$6,6 \cdot 10^{-10}$	$9,8 \cdot 10^{-10}$	$8,9 \cdot 10^{-10}$	$5,1 \cdot 10^{-9}$

Випадання урану з розчинів при насиченні їх сірководнем [31]

Вміст урану, г/л	
у вихідному розчині	після насичення його $\text{H}_2\text{S}$
$6,7 \cdot 10^{-3}$	$5,6 \cdot 10^{-4}$
$8,2 \cdot 10^{-3}$	$3,5 \cdot 10^{-4}$
$1 \cdot 10^{-2}$	$4,3 \cdot 10^{-4}$
$1,3 \cdot 10^{-2}$	$4,4 \cdot 10^{-4}$
$2,8 \cdot 10^{-2}$	$5,7 \cdot 10^{-4}$
$5,7 \cdot 10^{-2}$	$2 \cdot 10^{-3}$

*Вплив кислотності.* Магматичні й осадові гірські породи, у яких уран знаходиться в розсіяному стані, а також мінерали урану, зазнаючи впливу природних вод з різним рН показником та хімічним складом, розчиняються неоднаково.

За даними А.І. Перельмана [25], у водах бікарбонатного складу із слаболужною реакцією (рН = 7,5 ... 8,0) легко розчиняються карбонати, сульфати, ванадати, а також оксиди урану.

У слабомінералізованих нейтральних бікарбонатних водах розчиняються сульфати, сульфокарбонати, карбонати та оксиди урану. У лужних карбонатних водах (рН більше 8), а також у кислих сульфатних водах розчиняються всі уранові мінерали, навіть складні окисли, що містять  $\text{U}^{4+}$ ; причому вторинні мінерали переходять у розчин інтенсивніше, ніж первинні. У нейтральних сульфатних і хлоридних водах добре розчиняються тільки мінерали групи сульфатів та деякі карбонати.

*Вплив окисно-відновного потенціалу.* Електрохімічна активність природних вод визначається, в першу чергу, величиною окисно-відновного потенціалу Eh. Величина Eh, що вимірюється потенціометрами, вказує на переважання процесів, що відбуваються під впливом природних вод – окиснення або відновлення. Величина Eh підземних вод закономірно зменшується з глибиною.

За даними А.В. Щербакова [31], Eh для нижньої межі зони окиснення складає близько 250 – 300 мВ. Отже, за величиною Eh можна визначати глибину зони окиснення, а також можливість збагачення вод ураном. Високий

Eh показник підземних вод (більше +250 мВ) призводить до окиснення та переходу уранових мінералів у розчинні шестивалентні сполуки. При низьких значеннях Eh (менше 0 мВ) у відновних умовах уран перебуває, головним чином, у чотиривалентній формі та не розчиняється у воді. Згідно з дослідженнями А.К. Лисицина [17] величина Eh є показником інтенсивності окиснення та залежить від сольового й газового складу природних вод, при цьому зі збільшенням вмісту у водах кисню величина Eh збільшується, а зі збільшенням вмісту сірководню – зменшується.

#### **4.4. Загальна класифікація радіоактивних вод**

*Класифікація О.М. Токарева. Радонові води кори вивітрювання, глибоких тектонічних тріщин, азотних терм, вуглекислі, еманувальних колекторів. Радієві води. Уранові води морів та океанів, річок та озер. Урано-радiєві води. Урано-радонові та урано-радоно-радiєві води. Води зони окиснення гідротермальних уранових родовищ. Води зони окиснення осадових уранових родовищ. Радоно-радiєві води.*

*Класифікація О.М. Токарева.* Перша спроба генетичної класифікації природних радіоактивних вод зроблена О.М. Токаревим у 1948 р. [35]. Вона базується на таких принципах:

а) збагачення природних вод радіоактивними елементами зумовлюється їх вмістом та формами знаходження у гірських породах;

б) геохімічні умови переходу радіоактивних елементів з гірських порід і руд у підземні води визначаються гідродинамічною зональністю стратисфери.

Згідно з класифікацією родовища радіоактивних вод поділяються на сім груп (табл. 4.5):

1) радонові води, притаманні масивам кислих магматичних порід зон інтенсивного та ускладненого водообміну;

2) радiєві води зони вельми ускладненого водообміну в осадових та метаморфічних породах;

3) уранові води поверхневих водоймищ або води, що циркулюють у зоні інтенсивного водообміну в осадових та метаморфічних породах, збагачених розсіяним ураном;

4) урано-радiєві підземні води, що залягають в осадових й метаморфічних породах зони ускладненого водообміну, які збагачені розсіяним ураном;

5) урано-радонові води, що циркулюють у зоні окиснення гідротермальних осадових родовищ урану, рідше – в зоні інтенсивного водообміну в збагачених акцесоріями або тріщинуватих магматичних породах, а також у зоні контакту магматичних порід з осадовими;

б) урано-радоно-радієві води, що розповсюджуються в зоні окиснення гідротермальних та осадових родовищ;

7) радоно-радієві води зон первинних руд та відновлення урану.

Згідно з дослідженнями О.М. Токарева радіоактивними є води, яким притаманний вміст елементів:  $U > 3 \cdot 10^{-5}$  г/л;  $Ra > 1 \cdot 10^{-11}$  г/л;  $Rn > 50$  еман.

*Радонові води* – найбільш поширена група радіоактивних вод. Вони формуються в районах розвитку кислих магматичних порід з підвищеним вмістом радіоактивних елементів за умов розкритих структур центральних та крайових зон гірничо-складчастих споруд. Вміст радону в них сягає 50 еман.

Залежно від характеру циркуляції, геотермічних, газових та гідрохімічних особливостей радонові води поділяються на:

- а) води кори вивітрювання;
- б) води глибоких тектонічних тріщин;
- в) води еманувальних колекторів.

*Радонові води кори вивітрювання* досить поширені. Це ґрунтові води кори вивітрювання та неглибоких тектонічних тріщин у кислих магматичних породах. Глибина їх циркуляції залежить від глибини розвитку «активної» тріщинуватості та зрідка перевищує 60 – 80 м. Хімічний склад цих вод переважно гідрокарбонатно-магнієвий та гідрокарбонатно-кальцієво-натрієвий, що зумовлено розкладанням силікатів під дією води й вуглекислоти, а мінералізація сягає 0,5 г/л; інколи спостерігається дещо підвищений вміст сульфатів. У водах цієї групи рН завжди більше 7. Температура радонових вод кори вивітрювання низька, а дебіт джерел залежить від інтенсивності атмосферних опадів.

Основним фізико-хімічним процесом, що визначає формування радонових вод кори вивітрювання, є еманування. Їх радіоактивність залежить від коефіцієнта еманування порід та абсолютного вмісту радіоактивних елементів у породах. Для цих вод характерний чіткий зв'язок радіоактивності з петрографічним складом і ступенем зруйнованості порід, у яких вони циркулюють.

Таблиця 4.5

## Порівняльна характеристика природних радіоактивних вод

Тип води	Глибина, м	Температура, °С	Хімічний склад	Мінералізація, г/л	pH	Водообмін
Радіонів. води	Кори вивітрювання	< 25	$\frac{HCO_3^-, SO_4^{2-}}{Mg^{2+}, Ca^{2+}, Na^+}$	< 0,5	> 7	Безнапірні / активний
	Глибоких тектонічних тріщин	До 100	$\frac{HCO_3^-, SO_4^{2-}, Cl^-, N_2^-}{Na^+}$	< 0,4	7,6 – 8,5	Напірні / активний
	– азотних терм	15 – 30	$\frac{HCO_3^-, CO_2^{2-}}{Ca^{2+}}$	< 0,5	> 7	Напірно-безнапірні / активний
	– вуглекислі	Фонові	$\frac{HCO_3^-}{Ca^{2+}, Fe^{2+}, Mn}$	< 1	> 7	Напірно-безнапірні / активний
Еманувальних колекторів	Декілька сотень	Підвищена	$\frac{Cl^-}{Ca^{2+}, Na^+, Br, J, H_2S, CH_4}$	> 10	Eh < 0, відновні умови	Напірні / утруднений
Радієві води	Декілька сотень	Фонові	$\frac{HCO_3^-, Cl^-, SO_4^{2-}}{Ca^{2+}, Na^+, Mg^{2+}, Fe^{2+}, Cu^{2+}}$	> 10	Широкий діапазон	Напірно-безнапірні / утруднений
Урано-радієві води	До декількох сотень	Фонові				

## Порівняльна характеристика природних радіоактивних вод

Тип води	Глибина, м	Температура, °C	Хімічний склад	Мінералізація, г/л	pH	Водообмін
Урано-радонові та урано-радоно-радієві води	Зони окиснення гідротермальних уранових родовищ	≈ 20	$\frac{HCO_3^-, SO_4^{2-}}{O_2, Fe^{2+}, Cu^{2+} \dots}$	До 1	< 7	Безнапірні
	Зони окиснення осадових родовищ урану	Підвищена, проте нижче 100	$\frac{HCO_3^-, Cl^-}{Na^+, Ca^{2+}}$	Широкий діапазон	< 7	Напірно-безнапірні
Радоно-радієві води	На родовищах U – декілька сотень	Фонові	$\frac{SO_4^{2-}, HCO_3^-}{Fe^{2+}, Cu^{2+}}$	> 10	< 7	Напірні

Вивітрювання кислих магматичних порід згідно із А.А. Сауковим [31] відбувається переважно під впливом води, яка містить  $\text{CO}_2$ , що сприяє вилуговуванню розчинних солей, які входять до складу силікатів. Особливо легко переходять у розчини одновалентні катіони ( $\text{Na}^+$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{Li}^{2+}$ ), дещо важче – двовалентні ( $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mn}^{2+}$ ,  $\text{Fe}^{2+}$  та ін.), ще важче – три- і чотиривалентні. Тому останні накопичуються на місці й переносяться механічним шляхом.

Особлива роль у циркуляції радонових вод належить пегматитовим жилам. Їм властива значна тріщинуватість, пористість, іноді навіть кавернозність. До цих пегматитових колекторів, як правило, і належать джерела радонових вод.

Прикладом радонових вод кори вивітрювання є води джерел Увільди і Сунгуля на Уралі.

*Радонові води глибоких тектонічних тріщин.* Напірні води цього типу циркулюють по тріщинах в областях альпійської складчастості та віднесені до зон деформацій у гранітних масивах. Їх живлення відбувається за рахунок атмосферних опадів. Завдяки глибокій циркуляції вони мають високу температуру, специфічний хімічний та газовий склад.

Розрізняють *радонові води азотних терм* та *радонові вуглекислі води*. Перші мають високу температуру (до  $100^\circ\text{C}$ ), незначну мінералізацію (0,2 – 0,4 г/л, зрідка до 1 г/л) та гідрокарбонатно-натрієвий або сульфатно-хлоридно-натрієвий склад, а другі – низьку температуру (40 –  $15^\circ\text{C}$ ) і гідрокарбонатно-кальцієвий склад.

*Радоновим водам азотних терм* притаманні високі значення рН (7,6 – 8,5) та значний вміст кремнезему (до 0,1 г/л). Серед газів, розчинених у цих водах, переважає  $\text{N}_2$ , вміст якого, наприклад у водах Терської-Алатау змінюється від 93,1 (джерело Бозщук) до 100 % (джерело Аксу). Інші гази ( $\text{CO}_2$ ,  $\text{H}_2\text{S}$ ,  $\text{O}_2$ ,  $\text{CH}_4$ ) мають другорядне значення. Вміст радону в них менше, ніж у водах кори вивітрювання і в середньому становить 50 еман, хоча в окремих випадках сягає до 200 – 300 еман. Режим радонових вод азотних терм не залежить від температури повітря та атмосферних опадів. Прикладами радонових вод азотних терм є води джерел Аксу в Киргизії та Белокурухи на Алтаї.

*Радонові вуглекислі води* також характеризуються низькою мінералізацією (0,2 – 0,5 г/л); вміст вуглекислоти в них досягає 3,6 г/л, а радону – 100 еман. Режим їх циркуляції тісно пов'язаний з атмосферними опадами та температурою повітря. Прикладами радонових вуглекислих вод є джерела Молоковки, Ургучана та Шивії в Забайкаллі.



*Радонові води еманувальних колекторів* локально поширені на стінках проникних для води тріщин, ділянках вторинної концентрації радію. Вторинне накопичення радію може відбуватися у разі втрати агресивності води внаслідок адсорбції (наприклад, в результаті взаємодії з карбонатними породами). Відтак утворюються активні еманувальні колектори.

Під час виходу на поверхню підземні води, що насичені вуглекислою, втрачають її та утворюють вапняні відклади (травертини). Одночасно із випаданням з води вуглекислого кальцію ( $\text{CaCO}_3$ ) випадають залізисті та залізо-марганцеві сполуки, які в результаті процесів співосідання захоплюють із собою в осад радій, що знаходиться у воді. Це призводить до сильного збагачення цих відкладів радієм. У звичайних карбонатних породах вміст радію становить  $n \cdot 10^{-11} \%$ , а в травертинах –  $n \cdot 10^{-8} \%$ . Повільна циркуляція вод у таких породах сприяє інтенсивному їх збагаченню радоном.

Приклад радонових вод даної групи – джерела Ямкун у Забайкалі, Джети-Огуз в Киргизії, П'ятигорська та Істису на Кавказі.

*Радієві води* формуються в закритих структурах з дуже ускладненим водообміном і характеризуються відновними умовами та наявністю сильно мінералізованих вод хлоридно-натрієво-кальцієвого складу. Найбільш часто радієві води пов'язані з нафтовими родовищами й мають підвищений вміст Br, J,  $\text{H}_2\text{S}$ ,  $\text{CH}_4$  та важких вуглеводнів.

Радієві води утворюються за рахунок вилуговування розсіяного радію внаслідок сприятливого хімічного складу і повільного руху води. Збагачення радієвих вод радоном через повільну циркуляцію не відбувається. Уран у радієвих водах присутній в незначних кількостях ( $n \cdot 10^{-8} - n \cdot 10^{-7}$  г/л), адже у відновних умовах він знаходиться у формі важкорозчинних сполук  $\text{U}^{4+}$ .

Вміст радію у воді залежить від вмісту урану та радію в породі. Підвищений вміст радію властивий водам, що циркулюють у метаморфічних сланцях –  $n \cdot 10^{-9}$  г/л; води піщаних порід містять радій у кількості  $2 \cdot 10^{-10} - 1,2 \cdot 10^{-9}$  г/л, а води карбонатних порід –  $n \cdot 10^{-11}$  г/л.

*Уранові води морів та океанів.* Головним джерелом їх радіоактивності є літосфера і меншою мірою атмосфера. Радіоактивні елементи та їх ізотопи надходять в океани та моря із річковим стоком, вилуговуються з порід, що складають дно водних об'єктів, і частково додаються з матеріалом підводних вулканічних вивержень. З атмосфери надходить незначна частина продуктів розпаду радону та ядерних реакцій.

Серед радіоактивних ізотопів у водах морів та океанів перше місце за поширеністю займає калій  $\text{K}^{40}$ , потім рубідій  $\text{Rb}^{87}$  та уран  $\text{U}^{238}$ . Їх середня

концентрація становить  $4,2 \cdot 10^{-3}$  г/л,  $3,3 \cdot 10^{-5}$  г/л та  $2 \cdot 10^{-6}$  г/л відповідно [38]. Отже, природна радіоактивність морів та океанів обумовлена, головним чином,  $K^{40}$ . За даними різних дослідників, вміст урану в цих водах коливається в діапазоні  $3,6 \cdot 10^{-8}$  –  $2,5 \cdot 10^{-6}$  г/л. Зміна концентрації урану за площею та глибиною обумовлена морськими течіями, впливом річкового стоку поблизу континентів та переміщенням планктону.

Вміст торію у водах морів та океанів значно нижче, ніж урану, і змінюється від  $1 \cdot 10^{-10}$  до  $7,9 \cdot 10^{-9}$  г/л, а радію – від  $3 \cdot 10^{-15}$  до  $3 \cdot 10^{-11}$  г/л. За даними Р. Еванса (1938), концентрація радію підвищується з глибиною. Так, від поверхні до глибини 1300 м вміст радію коливається від  $4 \cdot 10^{-16}$  до  $2,9 \cdot 10^{-15}$  г/л.

*Уранові води річок та озер.* Уран у цих водах розподіляється нерівномірно – залежно від кліматичної зональності. Вміст урану в річковій воді змінюється в широкому діапазоні від  $3 \cdot 10^{-8}$  до  $n \cdot 10^{-5}$  г/л, а в озерній – від  $3 \cdot 10^{-8}$  до  $n \cdot 10^{-4}$  г/л. Найбільш низькі концентрації урану спостерігаються в проточних високогірних озерах, а також у річках та озерах північних широт, які вирізняються також дуже низькою загальною мінералізацією води. У напрямку від областей з надлишковим зволоженням до аридних районів водночас зі зростанням загальної мінералізації озерної та річкової води відбувається зростання вмісту урану (від  $n \cdot 10^{-8}$  до  $n \cdot 10^{-6}$  г/л). Іноді вміст урану в водах малих річок та струмків сягає  $n \cdot 10^{-5}$  –  $n \cdot 10^{-4}$  г/л, що пов'язано із заляганням численних рудопроявів або родовищ урану. Однак підвищені концентрації урану мають місце на обмежених ділянках річкових долин. Середній вміст урану в водах річок та озер складає близько  $1 \cdot 10^{-6}$  г/л.

Вміст торію у річках та озерах коливається в межах  $n \cdot 10^{-7}$  –  $n \cdot 10^{-8}$  г/л. Вміст радію становить  $n \cdot 10^{-14}$  –  $n \cdot 10^{-12}$  г/л при середньому вмісті  $1 \cdot 10^{-13}$  г/л. У районах уранових родовищ концентрація радію в поверхневих водах досягає  $n \cdot 10^{-11}$  г/л.

Вміст радону в цих водах дорівнює долям або першим одиницям еману ( $10^{-10}$  Кі/л) і лише в окремих випадках концентрація радону може зростати до сотень еман, що характерно для невеликих річок та струмків у місцях виходу підземних вод, збагачених радоном. Основна радіоактивність річок та озер обумовлена радоном.

*Урано-радієві води* доволі поширені в напіврозкритих структурах з утрудненим водообміном, яким властиві окиснювально-відновні умови та циркуляція сильно мінералізованих вод різного хімічного складу. Урано-радієві

води пов'язані з осадовими і метаморфічними породами: залізисто-силікатними сланцями, піщаниками, сполуками міді, заліза та ін.

Ці води утворюються внаслідок вилуговування розсіяного в породі урану, чому сприяють хімічний склад та повільний рух води. Урано-радієві води збагачуються виключно ураном у разі, якщо вони формуються в розкритих структурах з інтенсивним водообміном. Збагачення радієм не відбувається при малій мінералізації та інтенсивному водообміні. У зоні ускладненого водообміну води збагачуються ураном та радієм, причому з глибиною вміст радію збільшується, а урану – зменшується.

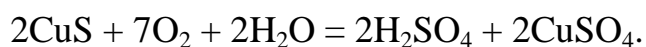
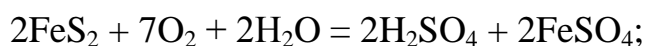
*Урано-радонові та урано-радоно-радієві води* формуються безпосередньо на родовищах уранових руд, унаслідок чого мають локальне поширення. Пов'язані вони, головним чином, з центральними та крайовими зонами гірсько-складчастих структур, де в минулі геологічні епохи розвантажувалися ураноносні розчини й утворювалися уранові родовища. Ці води відрізняються високим вмістом усіх радіоактивних елементів: урану – до  $9 \cdot 10^{-2}$  г/л, радію – до  $9 \cdot 10^{-9}$  г/л та радону – до 50000 еман.

За умовами формування та радіохімічним складом у даних групах радіоактивних вод можна виділити:

- 1) води зони окиснення гідротермальних уранових родовищ;
- 2) води зони окиснення осадових уранових родовищ.

*Води зони окиснення гідротермальних уранових родовищ* циркулюють по тріщинах або зонах тектонічного дроблення в масивах кислих магматичних або осадово-метаморфічних порід. Ці води зазвичай безнапірні з низькою температурою та мінералізацією. У деяких випадках вони можуть змішуватися з атмосферними опадами або напірними водами, що циркулюють по великих тектонічних розломах.

Супутниками гіпогенних уранових мінералів є сульфіди заліза, міді та інших металів. Атмосферні опади містять вільний кисень і вуглекислоту та, проникаючи в зону уранового зрудніння, окиснюють сульфіди заліза, міді та інших металів. Формування урано-радонових і урано-радоно-радієвих вод зони окиснення гідротермальних уранових родовищ відбувається за реакціями [31]:



При цьому утворюються сульфати та сірчана кислота, унаслідок чого води стають кислими й агресивними, що призводить до активного розчинення

уранових сполук. У водах накопичується шестивалентний уран у формі сірчаноокислих сполук типу  $UO_2SO_4$ . Вміст урану може досягати  $n \cdot 10^{-2}$  г/л. У водах також накопичуються радій та радон у кількостях до  $n \cdot 10^{-9}$  г/л та 50000 еман.

Утворені урано-радоно-радієві води можуть разом з потоком підземних вод виходити за межі родовища або проникати в зону його цементації (рис. 4.4).

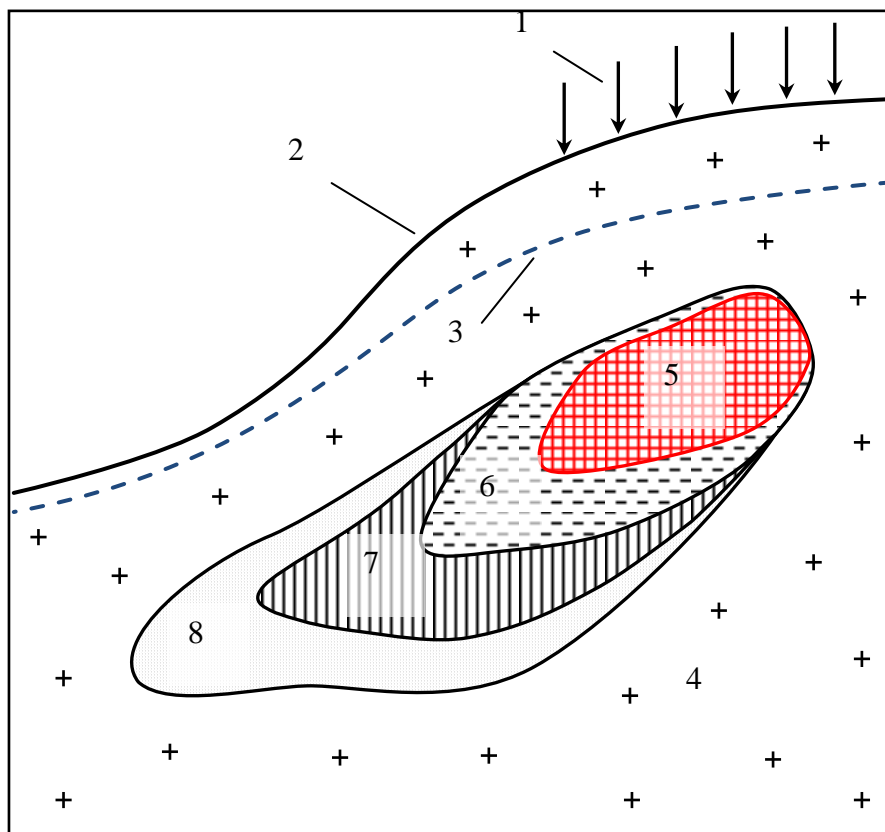


Рис. 4.4. Схема ореолів розсіювання U - Rn - Ra (6), U - Rn (7) та U (8) вод навколо гідротермальних родовищ урану (5): 1 – атмосферні опади; 2 – поверхня землі; 3 – рівень ґрунтових вод; 4 – кислі магматичні породи

Оскільки сірчаноокислі сполуки урану нестійкі, у зоні цементації відбувається відновлення урану до  $U^{4+}$  і утворення важкорозчинних сполук типу уранових черней. У верхній частині родовища сполуки  $UO_2SO_4$  переходять у менш розчинні карбонати, арсенати, фосфати й силікати та разом з водою мігрують за межі родовища.

За рахунок циркуляції урано-радоно-радієвих вод по породах, що не містять уранових сполук, а також сульфідів, їх склад змінюється. Внаслідок адсорбції вміст радію зменшується. При віддаленні від уранового родовища

вміст радону й урану в підземних водах зменшується і їх можна класифікувати як урано-радонові. Ореол аномальних урано-радоно-радієвих вод може розповсюджуватися від родовища вниз по течії підземних вод на відстані в десятки метрів, а урано-радонових вод – у сотні метрів. За сприятливих умов у підземних водах може спостерігатися підвищений вміст урану на відстанях кілька сотень метрів від родовища (рис. 4.4). Таким чином, відбувається роздільна міграція U, Ra та Rn.

Під час розробки гідротермальних родовищ урану гірничими виробками, процес окиснення сульфідів і збагачення підземних вод сірчаноокислими сполуками урану посилюється. З іншого боку, унаслідок утворення депресійної воронки до родовища надходять прісні гідрокарбонатно-кальцієві води, що може призвести до випадання сульфатів урану з розчину.

*Води зони окиснення осадових уранових родовищ.* У цій зоні також формуються урано-радоно-радієві води, а в ореолі розсіювання – урано-радонові та уранові води. Процес їх формування в основному схожий на процес формування радіоактивних вод у зоні окиснення гідротермальних родовищ урану, проте є деякі відмінності.

Відомо, що осадові родовища урану, такі як *урано-ванадати*, *ураноносне вугілля* та *сланці*, пов'язані з крайовими зонами гірських структур, ускладненими вторинними тектонічними порушеннями. Тому радіоактивні води, що сформовані на них, являють собою лінзоподібні та пластові тіла моноклінальних структур або лінзоподібні тіла дрібних антиклінальних структур і можуть бути як ґрунтовими, так і артезіанськими, як прісними гідрокарбонатно-кальцієвими, так і сильномінералізованими хлоридно-натрієво-кальцієвими.

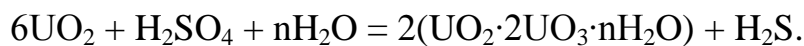
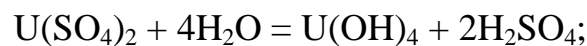
*Родовища урано-ванадатів* збереглися в умовах посушливого клімату, для них характерні незначні витрати води у слабопромитах породах. Тут зустрічаються сильномінералізовані хлоридно-натрієві води, а також води нафтового типу зі значним вмістом сірководню.

*Родовища ураноносних типів вугілля* також слабо обводнені та зустрічаються в областях з аридним кліматом, де поширені слабокислі сульфатно-натрієво-кальцієві води з мінералізацією 2 – 5 г/л. Вони формуються за рахунок окиснення піриту, розсіяного у вугіллі, розчинення вторинного гіпсу та катіонного обміну.

На *родовищах ураноносних сланців* формуються слабкомінералізовані гідрокарбонатно-кальцієві води, а за наявності піриту – води з підвищеним вмістом сульфатів.

Вміст радіоактивних елементів у водах зони окиснення осадових родовищ урану може досягати: урану – до  $7,5 \cdot 10^{-3}$  г/л, радію – до  $2,2 \cdot 10^{-9}$  г/л, радону – 200 – 300 еман (в окремих випадках – до 3000 еман).

*Радіо-радієві води* формуються в неокисненій зоні первинних руд. Так, кислі підземні води, що містять солі сульфідів заліза, міді й урану ( $\text{FeSO}_4$ ,  $\text{CuSO}_4$  і  $\text{UO}_2\text{SO}_4$ ), на деякій глибині утворюють зони цементації або вторинного збагачення. У цій зоні сульфати урану переходять у малорозчинні уранові черні ( $\text{UO}_2 \cdot 2\text{UO}_3 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ ) за такими реакціями:



Вміст урану у воді зменшується внаслідок слабкої розчинності уранових черней. Урано-радоно-радієві води стають радіо-радієвими.

Загалом зона цементації розповсюджується на глибину проникнення кислих розчинів, насичених ураном. Нижче залягає зона первинних сульфідних та уранових руд, де циркулюють лужні гідрокарбонатні води.

### ***Питання для самоконтролю***

1. Охарактеризуйте вплив геолого-структурних факторів на формування радіоактивних вод.

2. Які фактори відіграють провідну роль у збагаченні природних вод радіоактивними елементами? Опишіть вплив кліматичних та гідрогеологічних умов на формування радіоактивних вод?

3. Дайте визначення поняттю «зональність водообміну»? Які закономірності розподілу урану в природних водах спостерігаються зі збільшенням глибини?

4. Охарактеризуйте вплив Eh та pH на формування радіоактивних вод.

5. Охарактеризуйте вплив мінералізації та хімічного складу природних вод на розчинність урану.

6. Охарактеризуйте вплив катіонно-аніонного складу природних вод на формування радіоактивних вод.

7. Як впливає газовий склад вод на вміст урану в підземних водах?

8. Які родовища природних радіоактивних вод вам відомі?
9. Охарактеризуйте роль літологічних факторів у формуванні радіоактивних вод.
10. Опишіть, яку роль у формуванні радіоактивних вод відіграють фізико-хімічні фактори.
11. Як впливають органічні сполуки на формування радіоактивних вод?
12. Вплив інтенсивності водообміну на формування радіоактивних вод.
13. Охарактеризуйте фактори формування вод з високим вмістом урану.
14. Які умови формування притаманні радієвим водам?
15. Охарактеризуйте умови формування радонових вод.
16. Порівняйте основні особливості формування радонових вод кори вивітрювання та глибоких тектонічних тріщин.
17. Якими радіонуклідами обумовлена радіоактивність поверхневих вод?
18. Які особливості формування притаманні водам зони окиснення гідротермальних уранових родовищ?
19. Охарактеризуйте умови формування радіоактивних вод зони окиснення осадових уранових родовищ.

## 5. МІГРАЦІЯ ПРИРОДНИХ РАДІОНУКЛІДІВ У ПІДЗЕМНИХ ВОДАХ

### 5.1. Радіоактивність природних вод

Радіоактивність природних вод зумовлена знаходженням у них розчинених урану, радію, радону. Вміст радіоактивних елементів у підземних водах змінюється залежно від форми знаходження радіоактивних елементів у гірських породах, від хімічного складу підземних вод та швидкості міграції.

Усі природні води можна об'єднати в декілька груп, вміст радіоактивних елементів у яких є більш-менш усталеним (табл. 5.1).

Таблиця 5.1

Групи природних вод за вмістом у них урану [31]

Тип води	Природні умови	Вміст, г/л	
		Діапазон	Середнє
Поверхневі	Океани та моря	$3,6 \cdot 10^{-8} - 2,5 \cdot 10^{-6}$	$2 \cdot 10^{-6}$
	Озера	$2 \cdot 10^{-7} - 2 \cdot 10^{-2}$	$8 \cdot 10^{-6}$
	Річки	$2 \cdot 10^{-8} - 5 \cdot 10^{-5}$	$6 \cdot 10^{-7}$
Осадових порід	Зона інтенсивного водообміну	$2 \cdot 10^{-7} - 8 \cdot 10^{-6}$	$5 \cdot 10^{-6}$
	Зона сильно ускладненого водообміну	$2 \cdot 10^{-8} - 6 \cdot 10^{-6}$	$2 \cdot 10^{-7}$
Кислих магматичних порід	Зона інтенсивного водообміну (води кори вивітрювання)	$2 \cdot 10^{-7} - 3 \cdot 10^{-5}$	$7 \cdot 10^{-6}$
	Зона ускладненого водообміну (води глибоких тектонічних тріщин)	$2 \cdot 10^{-7} - 8 \cdot 10^{-6}$	$4 \cdot 10^{-6}$
Уранових родовищ	Зона інтенсивного водообміну (води зони окиснення)	$5 \cdot 10^{-5} - 9 \cdot 10^{-2}$	$6 \cdot 10^{-4}$
	Зона ускладненого водообміну (води зони відновлення)	$2 \cdot 10^{-6} - 3 \cdot 10^{-5}$	$8 \cdot 10^{-6}$



Згідно з таблицею вміст урану різко підвищується в природних водах, які циркулюють на площах уранових родовищ.

У цих водах вміст урану досягає  $9 \cdot 10^{-2}$  г/л, радію – до  $9 \cdot 10^{-9}$  г/л та радону – до 50000 еман. Такі води заміщуються менш активними ореольними водами з ділянок, віддалених від руди, які переходять у води безрудних порід, що містять нормальну кількість урану для даного району.

За межами уранових родовищ в умовах інтенсивного водообміну підвищений вміст радіоактивних елементів спостерігається у водах кислих магматичних порід, переважно в гранітних масивах – урану до  $3 \cdot 10^{-5}$  г/л, радію –  $6 \cdot 10^{-12}$  г/л і радону – до 400 еман; у водах осадових та метаморфічних гірських порід – урану до  $6 \cdot 10^{-4}$  г/л, радію – до  $5 \cdot 10^{-10}$  г/л, радону – до 150 еман. У зоні уповільненого водообміну підвищений вміст радіоактивних елементів притаманний осадовим гірським породам з нормальним вмістом радіоактивних елементів – урану до  $3 \cdot 10^{-6}$  г/л, радію –  $2 \cdot 10^{-8}$  г/л.

## 5.2. Міграція урану

*Процеси окиснення. Формування зони окиснення. Розчинення й вилуговування урану. Осадження урану.*

Міграція урану відбувається в зоні окиснення, при вилуговуванні з руд та мінералів, при осадженні та адсорбції.

*Процеси окиснення* суттєво залежать від хімізму вод і складу первинних руд, клімату, особливостей металогенії, структури і текстури первинних руд, умов залягання та характеру вміщувальних порід.

В.В. Щербина [38] зазначає, що зоні окиснення уранових родовищ властиві такі реакції:

- 1) окиснення, що переводить  $U^{4+}$  в  $U^{6+}$ ,  $Fe^{2+}$  в  $Fe^{3+}$ ;
- 2) утворення важкорозчинних сполук у результаті взаємодії уранілу з аніонами  $PO_4^{3-}$ ,  $AsO_4^{3-}$ ,  $VO_4^{3-}$ ;
- 3) гідроліз;
- 4) сорбція урану гідроксидами заліза, глинистими мінералами, опалом та іншими адсорбентами.

*Формування зони окиснення* супроводжується зміною нейтральних та слаболужних умов на сірчаноокислі й навпаки. Це обумовлює стадійність розвитку процесів окиснення. Так, Г.С. Грицаєнко [22] виділяє три основні

стадії формування зони окиснення сульфідно-уранових родовищ: гідроокисно-силікатну, слюдкову та силікатну.

*Гідроокисно-силікатна стадія* проявляється лише в карбонатних рудах. При окисненні цих руд утворюється лужне середовище та відбувається окиснення настурану. Лужне середовище сприяє рухливості кремнезему та осадженню урану у формі силікатів уранілу. Цей процес протікає раніше, ніж окиснення основної маси сульфідів.

*Слюдкова стадія* супроводжується окисненням сульфідів, появою кислих розчинів та утворенням слюдок.

*Силікатна стадія* інтенсифікується, коли зменшується вміст сульфідів, при цьому рН води підвищується. Ця стадія супроводжується утворенням невеликих кількостей скупіту і параскупіту.

На думку Г.С. Грицаєнко [22] за умови тривалого розвитку процесу у верхній частині рудного тіла окиснюються всі сульфіди й настуран, утворюється зона повного окиснення.

Л.С. Євсєєва та О.І. Перельман [25] відзначають три типи особливостей окиснювальних процесів на уранових родовищах залежно від характеру водоносних порід.

I. Породи однорідного складу, що обводнені рівномірно. У цих умовах окиснення відбувається рівномірно, з чітко обмеженою зоною. Подібні умови притаманні пластам піщаних та уламкових порід.

II. Нерівномірно тріщинуваті, низько обводнені породи, з погано розвиненою дренажною гідрографічною мережею. Тут не спостерігається чітких меж зони окиснення. Поруч з повністю окисненими мінералами зустрічаються черні та настуран.

III. Водоносні породи сильнотріщинуваті, схильні до процесів карстоутворення, проте обводнені нерівномірно. Тут процеси окиснення проникають по окремих тріщинах на значну глибину та у разі бічного стоку підземних вод відбувається збіднювання родовища.

Формування зони окиснення екзогенних родовищ відрізняється від процесів, що відбуваються в ендегенних родовищах. Розчини, які циркулюють у верхній частині екзогенних родовищ, менш кислі, що спричинено невеликим вмістом дисульфідів у рудах.

Зонам окиснення багатьох осадових родовищ властиві силікати уранілу: уранофан та казоліт. Уран у зоні окиснення осадових родовищ мігрує у складі солей гідроокису та комплексних солей органічних кислот.

Збагачення підземних вод ураном відбувається внаслідок *розчинення й вилуговування урану*, що знаходиться в породі в розсіяному вигляді, або у вигляді рудних концентрацій. Інтенсивність надходження урану в природні води залежить від таких чинників:

- 1) хімічного та газового складів природних вод;
- 2) речовинного складу порід і руд, форми присутності урану в породах;
- 3) гідродинамічних умов циркуляції підземних вод.

Експериментальним шляхом встановлено, що розчинність урану підвищується зі збільшенням кислотності або лужності розчину [31].

У карбонатному середовищі добре розчиняються прості й комплексні арсенати, карбонати, молібдати, фосфати, сульфати, ванадати шестивалентного урану. Окисли  $U^{4+}$  в карбонатному середовищі розчиняються тільки за наявності окиснювача. У лужному середовищі розчиняються фосфати та гумати урану.

У водах бікарбонатного складу із слаболужною реакцією при  $pH = 7,5 \dots 8,0$  відбувається інтенсивне розчинення карбонатів, сульфатів, ванадатів та окислів урану. У цих слабомінералізованих і нейтральних водах найбільш розчинні сульфати, сульфокарбонати та карбонати урану, які не дають високих концентрацій урану у воді.

Води карбонатного типу з  $pH = 8$  активно розчиняють як первинні, так і вторинні уранові мінерали. Уранові мінерали силікатної групи активно розчиняються завдяки лужній реакції.

Сульфатні кислі води є добрим розчинником для всіх уранових мінералів, у тому числі й для складних оксидів, що містять  $UO_2$ .

Розчинність уранових мінералів у нейтральних сульфатних та хлоридних водах подібна дистильованій воді.

Слід зазначити, що одні й ті самі мінерали, але з різних родовищ, мають різну розчинність.

На швидкість розчинення мінералів урану впливають такі фактори, як склад та швидкість руху води, характер розподілу мінералів у водоносних породах, агрегатний стан мінералів тощо.

Форми перенесення урану в природних водах залежать від  $pH$  розчину та хімічного складу води [38].

1. Кислим сульфатним водам властиве перенесення урану у вигляді сульфатних сполук. Ці води при взаємодії з первинними мінералами урану збагачуються іоном  $U^{4+}$ . Тому сульфатні сполуки  $U^{4+}$  добре розчинні. Міграція  $U^{4+}$  в таких умовах відбувається лише на близькій відстані.

2. Більшості природних вод притаманне рН в діапазоні від 6 до 8. При значенні рН = 4,5 ... 7,5 уран у розчині знаходиться переважно у вигляді йонів  $\text{UO}_2^{2+}$  та  $\text{UO}_2(\text{OH})^+$ , а також недисоційованих молекул  $\text{UO}_3 \cdot \text{H}_2\text{O}$  або  $\text{UO}_3 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ . Гідрат триокису урану утворює колоїдні агрегати, і перенесення урану може відбуватися у вигляді золь гідроокису. Золі утворюються в розчині при рН близькому до нейтрального.

3. Перенесення урану у вигляді йонів  $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_2^{2-}$  та  $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3^{4-}$  може відбуватися у водах, що містять  $\text{HCO}_3^-$  та  $\text{CO}_3^{2-}$  іони.

4. Уран-органічні сполуки існують у слаболужних і слабокислих водах у формі лужно-гуматних сполук.

Перенесення U від джерела його збагачення призводить до зміни хімічної формули речовин, які мігрують, що пояснюється зміною рН та хімічного складу води.

*Осадження урану з водних розчинів відбувається внаслідок хімічних процесів, серед яких виділяються такі дві групи [38]:*

I. Процеси, у яких провідна роль належить реакціям взаємодії порід з розчинним ураном.

II. Процеси, пов'язані з метаморфізмом хімічного складу вод, впливом випаровування, змішанням вод різних типів тощо.

Відомі хімічні реакції осаження урану з водних розчинів аніонами  $\text{PO}_4^{3-}$ ,  $\text{VO}_4^{3-}$ ,  $\text{AsO}_4^{3-}$ , унаслідок яких виникають стійкі мінерали: фосфати, ванадати, арсенати. Завдяки реакції відновлення  $\text{U}^{6+}$  утворюються важкорозчинні сполуки  $\text{U}^{4+}$ .

Сульфіди, сполуки заліза, фосфати та глинисті мінерали, а також гази – сірководень, водень, метан – добрі осаджувачі урану.

У процесі нейтралізації водних розчинів водоносними породами створюються відновні умови та відбувається випадання урану з розчину. Присутність у розчині заліза також призводить до осаження урану. Фосфати, що містять до 2 %  $\text{CO}_2$ , утворюють з ураном важкорозчинні уранофосфатні сполуки, які випадають в осад.

Уран може осідати з більшістю солей, що випадають з природних вод. У окиснювальних умовах такими солями є карбонати та сульфати кальцію, магнію, гідроксиди заліза, марганцю, міді, фосфати кальцію, кремнекислота. У відновлювальних умовах уран може осідати із солями двовалентного заліза та інших металів, карбонатами, кремнекислотою, фосфатом кальцію та сульфідами. Крім того, уран з ґрунтових вод може осаджуватися в результаті

випаровування. При цьому осідають силікати, ванадати, сульфат-карбонати уранілу та ін.

При коагуляції колоїду, що присутній у водному розчині як гідроксид  $[\text{UO}_2(\text{OH})_2]_n$ , відбувається осадження урану. Таке саме явище спостерігається і при коагуляції колоїдів кремнекислоти та заліза, добре адсорбуючих уран. Якщо в природних водах порушується карбонатна рівновага, то виділяється вуглекислота, і в результаті дегазації уран осідає.

Радіоактивні елементи, що знаходяться в природних водах, адсорбуються різними колоїдами, що призводить до їх видалення з природних вод.

*Адсорбційні властивості* стосовно ураніл-іону притаманні деяким глинистим мінералам (монтморилоніт), органічним речовинам, а також гідроксидам заліза та марганцю.

Уран зв'язується органічними речовинами за рахунок явищ адсорбції, іонного обміну, осадження урану під дією відновлювальних властивостей органічних речовин та пов'язаних з ними газів.

Шляхом адсорбції сполук урану глинистими та органічними речовинами, що знаходяться в сланцях, відбулося збагачення ураноносних сланців у багатьох морських басейнах.

В результаті інтенсивної адсорбції урану гідроксидами заліза та марганцю утворилися родовища ураноносних типів вугілля і «залізних капелюхів». У природних водах широко розповсюджений процес осадження урану фосфатами, пов'язаний з процесами адсорбції.

Міграційна здатність урану визначається [38] такими чинниками, як:

1) різна валентність урану в зоні гіпергенезу, мала рухливість з'єднань  $\text{U}^{4+}$  та висока рухливість  $\text{U}^{6+}$ , причому значна роль у міграції та осадженні належить окисно-відновним реакціям;

2) утворення завдяки  $\text{U}^{6+}$  катіону ураніту, що відрізняється великими розмірами та рухливістю в кислих розчинах;

3) легка розчинність карбонатних комплексів уранілу, стійких у нейтральних та слаболужних середовищах;

4) утворення уранілом важкорозчинних сполук з  $\text{PO}_4^{3-}$ ,  $\text{AsO}_4^{3-}$ ,  $\text{VO}_4^{3-}$ ,  $\text{SiO}_2$ ;

5) адсорбція йону уранілу негативно зарядженими колоїдами.

### 5.3. Міграція радію

Міграція радію визначається його хімічними властивостями, особливостями його стану в мінералах та розчинах. Радій утворюється в ланцюгу розпаду урану після трьох  $\alpha$ - та двох  $\beta$ -перетворень. Для проходження радієм декількох десятків міжвузлових відстаней у кристалічній решітці мінералу достатньо енергії, що утворилася в результаті одного  $\alpha$ -розпаду. Атоми радію можуть віддалятися на значну відстань від материнського атома та потрапляти в механічні порушення кристалічної решітки мінералу (так звані «капіляри»), звідки згодом вони легко вилуговуються.

На міграцію радію сильно впливає склад та концентрація катіонів, величина їх рН. Ступінь вилуговування радіоактивних елементів безпосередньо залежить від стану мінералів. Зі збільшенням кількості порушень зростає вірогідність потрапляння атомів, утворених за рахунок енергії радіоактивного розпаду, в зазначені зони.

Радіоактивні атоми, що потрапили в порушені частини мінералів, можуть частково адсорбуватися на стінках капілярів і тріщин, а частково розчинитися за умови, що в решітці мінералу немає хімічних аналогів даних атомів. Між розчиненими й адсорбованими атомами встановлюється рухлива рівновага. Проте вилуговування порушує радіоактивну рівновагу. Радій мігрує з уранових мінералів, у результаті чого в мінералах виникає нестача радію, отже, міграція радію пов'язана з частковим вилуговуванням порід.

Максимальна концентрація радію в природних водах сягає  $n \cdot 10^{-7}$  г/л.

Вилуговування сильно позначається на вторинних уранових мінералах, з яких радій може мігрувати в значних кількостях – до 85 – 90 % від загального об'єму.

Розрізняють три стадії в процесі вилуговування [34]:

- 1) радій скупчується в капілярах породи, заповнених водою;
- 2) встановлюється адсорбційна рівновага між радієм в розчині та на стінках капілярів;
- 3) завдяки дифузії формується рівновага: вміст Ra у воді в капілярах дорівнює вмісту Ra у гравітаційній воді.

За даними І.Є. Старика [34], при зіткненні радіоактивних гірських порід з природною водою починається повільна дифузія радію з капілярів у воду внаслідок різниці концентрацій. Швидкість дифузії радію залежить від питомої поверхні частинок породи (рис. 5.1).

Радій мігрує на незначну відстань від уранових руд, що пояснюється поганою розчинністю його вторинних солей та його схильністю до сорбції.

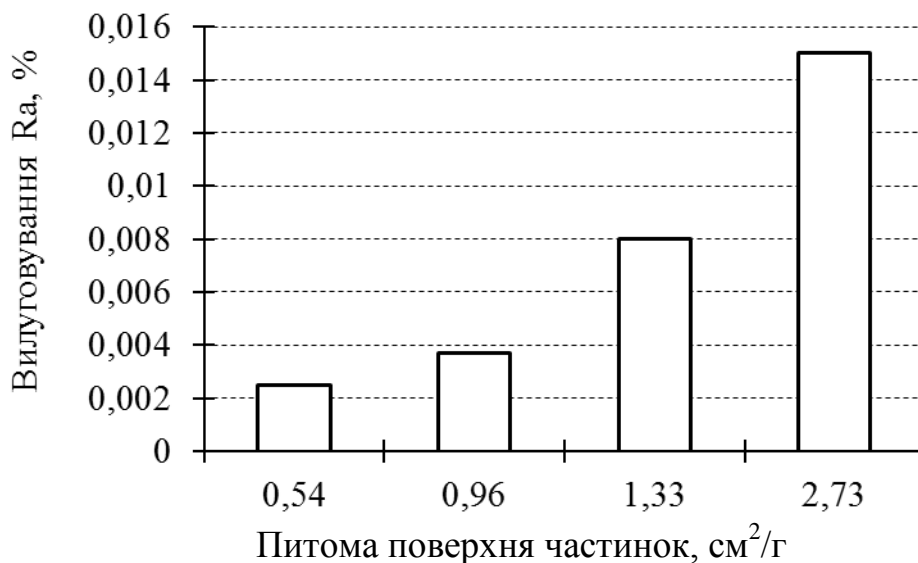


Рис. 5.1. Діаграма залежності вилугування радію від дисперсності породи

#### 5.4. Міграція радону

Міграція радону сильно відрізняється від міграції радію. Процес міграції радону називається емануванням та визначається, насамперед, наявністю та ступенем розвитку мережі капілярів у породі, які дозволяють радону, утвореному всередині породи, виділятися назовні.

Радон <sup>222</sup>Rn є короткоживучим дочірнім ізотопом <sup>226</sup>Ra ( $T_{1/2} \approx 3,8$  доби), тому при помірних швидкостях фільтрації він не розповсюджується на великі відстані від джерела збагачення.

Враховуючи невеликий період піврозпаду радону, радонові води зустрічаються серед ґрунтових та артезіанських вод у зонах інтенсивного водообміну, що залягають неглибоко.

Усі гірські породи можуть еманувати та збагачувати радоном циркулюючі води, оскільки в них міститься розсіяний радій.

Унаслідок еманування вміст радону в водах може сягати порядку декількох десятків еман, а, циркулюючи в уранових рудах, – сотень і тисяч еман.

На заваді руху радону часто стають водонепроникні породи. Пересуваючись угору по тріщинах, порожнинах і порах, радон досить часто накопичується під водотривами.

## 5.5. Ореоли розсіювання навколо родовищ урану

Унаслідок складних процесів міграції радіоактивних елементів у верхніх частинах земної кори навколо покладів уранових руд утворюються ореоли розсіювання радіоактивних елементів і елементів-супутників (рис. 5.2).

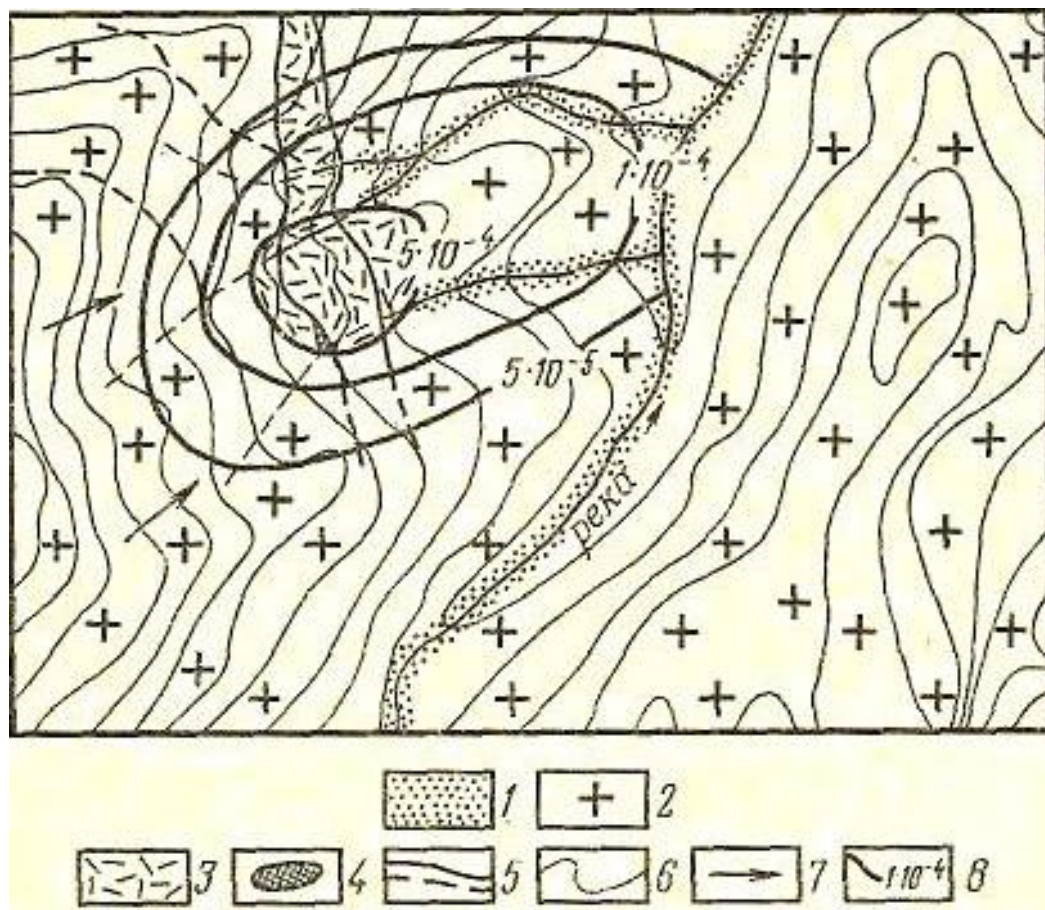


Рис. 5.2. Карта розповсюдження урану в підземних водах гідротермальних родовищ урану [16]: 1 – алювіальні відклади; 2 – граніти; 3 – дислоковані породи; 4 – зона зрудніння; 5 – тектонічні порушення; 6 – ізогіпси поверхні; 7 – напрямок руху підземних вод; 8 – ізолінії вмісту урану в підземних водах

За походженням розрізняють первинні (ендогенні) та вторинні (гіпергенні) ореоли розсіювання.

*Первинні ореоли* виникають одночасно з формуванням уранового родовища. Це зовнішні зони підвищених концентрацій хімічних елементів навколо рудних скупчень та корінних порід. Елементарний склад ендеогенних ореолів схожий зі складом рудних покладів. Форми ендеогенних ореолів подібні формам рудних тіл.



Розміри ореолів різні та залежать від ступеня водовіддачі порід, хімізму процесів, що відбуваються у породах та водному середовищі, і можуть досягати сотень метрів у напрямку потоку підземних вод.

Якщо водна аномалія генетично пов'язана з урановими рудами, то ореольні води, окрім урану, містять індикаторні елементи: радон, радій, ізотопи урану та радію. Внаслідок леткості та короткого періоду напіврозпаду радон розповсюджується на меншу відстань, ніж уран – до 100 м.

*Вторинні ореоли* розсіювання уранових родовищ утворюються в сучасних континентальних відкладах.

До факторів, що зумовлюють утворення вторинних ореолів, належать хімічне переміщення й перевідкладення рудного матеріалу, розчинення, осадження солей, адсорбція колоїдами та ін. Утворення вторинних ореолів розсіювання уранових мінералів взаємопов'язане з геохімічними та геологічними умовами.

Радіоактивні аномалії утворюються в елювіальних відкладах. На великих родовищах аномалії простежуються на відстані до 1600 м вниз за течією. Вторинні ореоли розсіювання в корінних породах формуються в результаті процесів окиснення, розчинення, а також шляхом виносу урану з рудного покладу та наступного виділення з водних розчинів у вигляді важкорозчинних солей або в результаті сорбції гірськими породами.

Зазвичай ореоли просторово та генетично пов'язані з тріщинами й порами в зоні сезонних і багаторічних коливань рівня ґрунтових вод та капілярного підняття вологи. Ореоли розсіювання урану мають різну форму, що залежить від положення рудного тіла відносно рівня ґрунтових вод.

У разі, якщо рудне тіло знаходиться вище зони сезонних коливань рівня ґрунтових вод (РГВ) і його зволоження відбувається за рахунок інфільтрації, то ореол розсіювання поширюється лише вниз від рудного тіла до РГВ. Якщо ж рудне тіло знаходиться в зоні сезонних коливань РГВ, то ореол розсіювання поширюється в напрямку руху ґрунтових вод і тільки на незначну відстань вгору за рахунок дифузії. Якщо рудне тіло перебуває в умовах аридного клімату, коли накопичення елемента в корі вивітрювання переважає над виносом, то в ореолах розсіювання спостерігається високий вміст урану, який може бути у вигляді вторинних мінералів-силікатів, ванадатів, фосфатів тощо.

Первинні та вторинні ореоли розсіювання використовуються як пошукові ознаки на уранове зрудніння.

## 5.6. Глобальний кругообіг радіонуклідів

Походження гідросфери Землі тісно пов'язане з виникненням самої планети та особливостями її внутрішньої будови.

Унаслідок плавлення та дегазації мантиї дотепер сформувалася гідросфера з обсягом вільних вод  $1,85 \cdot 10^{24}$  см<sup>3</sup>.

Природні води – атмосферні, поверхневі та підземні – знаходяться в постійному кругообігу, утворюючи єдину гідросферу. Разом з ними залучаються хімічні елементи, відносні кількості яких у різних частинах гідросфери неоднакові.

Природні води знаходяться в складних динамічних відношеннях з гірськими породами (літосферою), атмосферою та організмами. Згідно з висновками В.І. Вернадського водна рівновага земної кори виражається схемою, що наведена на рис. 5.3.

Уран, розчинений у природних водах, бере участь у загальному кругообігу вод планети. Значна кількість розчиненого урану знаходиться у безперервній міграції як у гідросфері (включаючи підземну), так і в атмосфері. Біосфера є проміжною ланкою в ланцюгу міграції природних радіонуклідів (рис. 5.4).

Найбільша кількість розчиненого урану перебуває в світовому океані – близько 98 % (приблизно 2 млрд т). На другому місці за кількістю розчиненого урану знаходяться підземні води.

Щорічно в океан надходять десятки, а можливо й сотні тонн розчиненого урану. Приблизно така ж кількість урану осідає разом з мулами і тимчасово виходить з кругообігу природних вод. Осадження спричиняється сорбцією глинистих частинок, поглинанням живими істотами, залишки яких осідають на дні, та відновленням  $U^{6+}$  до  $U^{4+}$ .

Кругообіг природних радіонуклідів у кожній кліматичній зоні, на континентах та в світовому океані відрізняється за масштабом та напрямком міграції компонентів.

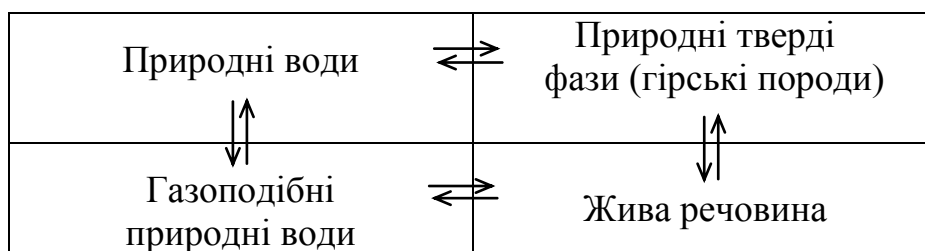


Рис. 5.3. Схема водної рівноваги земної кори

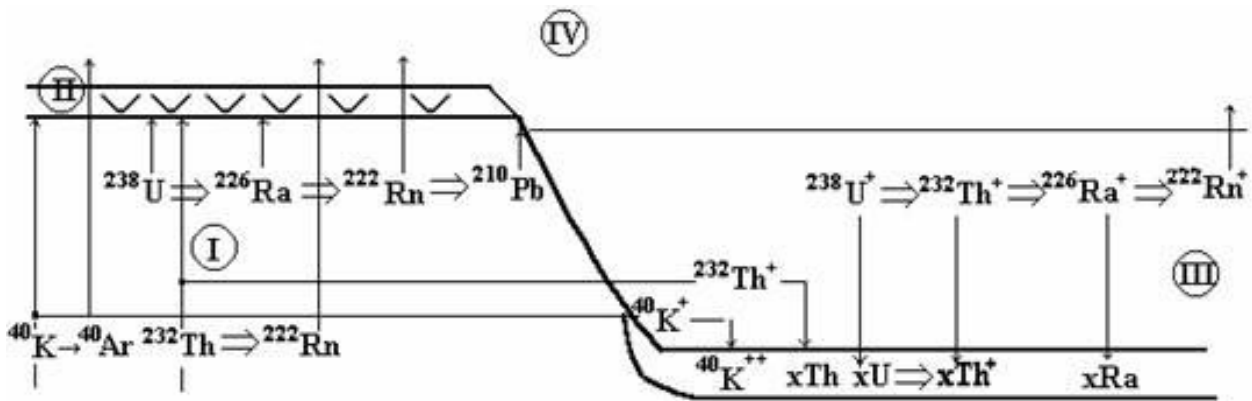


Рис. 5.4. Схема кругообігу природних радіонуклідів у системі літосфера (I) – гідросфера (II) – біосфера (III) – атмосфера (IV). Перехід унаслідок радіоактивного розпаду ( $\Rightarrow$ ); дифузійне та механічне перенесення з водою, газами ( $\rightarrow$ ) іонів та хімічних з'єднань  $xK$ ,  $xU$ ,  $xTh$  [21]

### Питання для самоконтролю

1. Як впливає інтенсивність водообміну на формування радіоактивних вод?
2. Як впливає дисперсивність порід на ступінь вилуговування радію?
3. Охарактеризуйте особливості міграції урану в зоні окиснення.
4. Опишіть особливості міграції урану внаслідок вилуговування його із порід.
5. Як впливає рН та хімічний склад розчину на форми перенесення урану?
6. Охарактеризуйте, як відбувається збагачення підземних вод ураном за рахунок його осадження та адсорбції.
7. Охарактеризуйте особливості міграції радію.
8. У чому полягають відмінності в процесах міграції радію та радону?
9. Порівняйте умови формування первинних та вторинних ореолів розсіювання навколо родовищ урану.
10. Опишіть, за якою схемою протікає кругообіг радіоактивних елементів у природі.

## 6. ОБҐРУНТУВАННЯ РАДІОГІДРОГЕОЛОГІЧНИХ ДОСЛІДЖЕНЬ ТА ПОШУКОВІ КРИТЕРІЇ

### 6.1. Радіогідрогеохімічний метод

*Радіометричні методи. Геохімічні методи. Радіогідрогеохімічний метод.*

Для пошуків родовищ урану використовують комплекс різноманітних геологічних, геофізичних та геохімічних методів. Вибір методів визначається відповідно до поставлених завдань, геологічної будови і природних умов. До основних методів пошуків відносять: радіометричні, газові та геохімічні. Існуючі методи ґрунтуються на прийомах виявлення тих чи інших пошукових ознак урану у вигляді корінних виходів руд і ореолів розсіювання навколо ураново-рудних покладів.

*Радіометричні методи* спрямовані на виявлення радіаційних ореолів уранових родовищ; подальші детальні пошуки та розвідка уранових родовищ виконуються методами еманувальних та гелієвих зйомок.

*Геохімічні методи* пошуків використовуються для виявлення первинних та вторинних ореолів розсіювання урану в корінних породах, корах вивітрювання і пухких відкладах, а також водних та біохімічних ореолів радіоактивних елементів.

Останнім часом широкий розвиток у практиці геологічних досліджень набули геохімічні методи пошуків уранових родовищ за ореолами розсіювання урану в корінних породах, пухких відкладах, природних водах та рослинах. Серед різних методів пошуків за вторинними геохімічними ореолами провідне місце посідає радіогідрогеохімічний метод, що дозволяє виявляти ореоли розсіювання радіоактивних та супутніх елементів у природних водах.

*Радіогідрогеохімічний метод* полягає у відборі проб поверхневих та підземних вод, аналізі цих проб на вміст урану ( $U^{238}$ ), продуктів його розпаду (радон, радій та в деяких випадках  $U^{234}$ ) й елементів-супутників (зазвичай це молібден, свинець, миш'як, ванадій, фосфор, селен), а також у з'ясуванні закономірностей розміщення їх водних ореолів. Результати аналізів проб води наносяться на спеціальну радіогідрогеологічну (або геологічну) карту. Оцінку радіогідрогеологічних даних слід здійснювати з урахуванням матеріалів геологічних, геофізичних, геохімічних та інших досліджень, що дозволить уникнути помилок у визначенні їх пошукової цінності.

Основне завдання радіогідрогеохімічного методу пошуків – визначення аномальних концентрацій урану, радію, радону в водах, що перевищують їх фонові концентрації у 3 – 5 разів та більше. Тому для коректного виявлення аномальних значень, встановлення форми та розмірів ореолів розсіювання надто важливо визначити місцевий радіогідрогеохімічний фон для кожного елемента, який знаходиться в тісній залежності від кліматичних, геолого-гідрогеологічних, геоморфологічних та фізико-хімічних умов.

Ореол зазвичай витягнутий у напрямку руху підземних вод. На розміри ореолу чимало впливає інтенсивність водообміну. Великі за протяжністю ореоли властиві водам зони активного водообміну (у гірських районах вони досягають 800 м і навіть 1,5 – 2 км, а в рівнинних – лише 50 – 70 м). Згідно з [16, 17] ця закономірність справедлива для горизонтальних та вертикальних розмірів ореолу.

## **6.2. Вміст радіоактивних елементів у підземних водах як пошуковий критерій уранового зрудніння**

*Пошукові критерії. Вміст радону, радію й урану як пошукові критерії.*

*Пошукові критерії* – це сукупність даних про природні води (мінералізація, хімічний склад, радіоактивність, умови циркуляції тощо), що дозволяють виявити їх роль у формуванні урану та оцінки ураноносності геологічної структури. Пошукові критерії можуть бути місцевими, що вказують на зв'язок підземних вод із зруднінням, та регіональними, що дозволяють встановлювати взаємозв'язок між радіоактивністю підземних вод і геологічними структурами.

Іншими словами, пошукові критерії – це певні ознаки, на підставі яких може бути встановлений генетичний зв'язок підземних радіоактивних вод з первинними концентраціями уранових руд.

Г.С. Грицаєнко виділяє такі три пошукові ознаки [22]:

1) спільне, аномальне знаходження у водах урану, радію та радону; причому різко підвищені концентрації радону вказують на близькість урано-рудних концентрацій;

2) сприятливий ізотопний склад радіоактивних елементів у водах, зокрема, відносно низьке відношення  $U^{234}/U^{238}$  при високому вмісті урану;

3) підвищений вміст у водах елементів-супутників урану – молібдену, свинцю, міді, цинку та ін.

Радіогідрогеологічні пошукові критерії встановлюються на основі вивчення таких чинників:

- 1) особливостей формування різних типів природних радіоактивних вод;
- 2) умов розчинення, перенесення та відкладення радіоактивних елементів у підземних водах;
- 3) геолого-гідрогеологічних умов утворення уранового зрудніння.

Абсолютний вміст радіоактивних елементів у воді не є достатньо надійним та достовірним пошуковим критерієм, адже радіоактивні води можуть формуватися не лише в гірських породах з концентраціями урану та радію, але й в гірських породах з кларковим вмістом радіоактивних елементів.

*Вміст радону як пошуковий критерій.* Більшості підземних вод притаманний підвищений вміст радону. Цей елемент досить легко мігрує по тріщинах у гірських породах, розчиняється в природних водах та поширюється на значні відстані від місця свого утворення (кілька сотень метрів).

Підвищені концентрації радону спостерігаються у підземних водах унаслідок:

- 1) високого коефіцієнта еманування за рахунок підвищеної роздробленості порід (у зонах тектонічних порушень);
- 2) вторинного збагачення порід радієм у результаті сорбції («еманувальні колектори»);
- 3) рудних концентрацій урану в породах.

Для порід з нормальним розсіяним вмістом радіоактивних елементів вміст радону залежить від петрографічного складу порід. Наприклад, у підземних водах осадових, метаморфічних та основних магматичних порід вміст складає 20 – 50 еман [31]. Для підземних вод, що циркулюють у кислих магматичних та метаморфічних породах, концентрація радону може досягати 100 – 300 еман. У водах, що контактують з породами, які містять адсорбований радій, концентрація радону може сягати 1000 еман і більше. У водах гідротермальних уранових родовищ вміст радону складає десятки тисяч еман, тоді як у водах осадових родовищ урану – не більше 50 еман, у виняткових випадках – до 200 – 300 еман.

Отже, вміст радону у підземних водах – задовільний пошуковий критерій для осадових родовищ урану, у той же час він є достовірною ознакою уранового зрудніння гідротермального типу, особливо у масивах кислих магматичних порід.

Навіть значні концентрації радону в природних водах не завжди є ознакою наявності уранового зрудніння. Для однозначної відповіді слід виключити його взаємозв'язок з вторинними еманувальними колекторами та з'ясувати, чи є підвищений вміст радону аномальним відносно радіогідрогеохімічного фону. Крім того, необхідно враховувати величини витрат води (дебітів свердловин, джерел), адже в природних умовах у водах джерел з малими дебітами концентрації радону зазвичай більше, ніж у водах високодебітних джерел. Великі концентрації радону при значних дебітах спостерігаються лише у випадках омивання потужних еманувальних колекторів та рудних тіл.

*Вміст радію як пошуковий критерій.* Радій у гірських породах може перебувати:

- 1) у розсіяному стані в товщі порід;
- 2) в адсорбованому стані на стінках водопровідних тріщин, у відкладах джерел (травертини, охри тощо), в ізоморфній суміші з іншими елементами (радіобарити);
- 3) в рудних концентраціях урану.

Радій може переходити з гірських порід у підземні води внаслідок їх розчинення та вилуговування, тому для збагачення вод радієм найважливіше значення має їх хімічний склад. Кислі води є найбільш сприятливими для розчинення та вилуговування уранових руд.

Вміст радію в підземних водах добре корелюється з їх загальною мінералізацією. Найнижчі концентрації радію ( $n \cdot 10^{-13} - n \cdot 10^{-12}$  г/л) властиві холодним водам низької мінералізації; в сильно мінералізованих водах концентрація радію може досягати  $n \cdot 10^{-9}$  г/л і визначається вона хімічним складом [16, 17]. У мінералізованих водах осадових порід високі концентрації радію ( $n \cdot 10^{-11} - n \cdot 10^{-9}$  г/л) притаманні лише хлоридно-натрієво-кальцієвим водам. У сульфатних та гідрокарбонатних водах концентрація радію коливається в діапазоні  $n \cdot 10^{-13} - n \cdot 10^{-12}$  г/л.

Підвищені концентрації радію ( $5 \cdot 10^{-11}$  г/л та вище) часто спостерігаються у вуглекислих гідрокарбонатно-кальцієвих водах, з кислими магматичними породами [31]. У слабомінералізованих холодних та термальних неуглекислих водах концентрація радію зазвичай не перевищує  $1 \cdot 10^{-12} - 2 \cdot 10^{-12}$  г/л. Таким чином, високий вміст радію в підземних водах необов'язково є ознакою уранового зрудніння. Для встановлення зв'язку між підвищеними концентраціями радію в підземних водах з урановим зруднінням доцільно

враховувати хімічний склад вод, а також вміст у них інших радіоактивних елементів.

Ознаками уранового зрудніння можуть вважатися такі умови:

1) підвищена концентрація радію в сульфатних, сульфатно-хлоридних або гідрокарбонатних водах осадових порід (вапняки, вугілля, пісковики, сланці тощо) – понад  $1 \cdot 10^{-10}$  г/л;

2) підвищені концентрації радію та радону в водах, що циркулюють в осадових породах;

3) підвищені концентрації радію або радію і радону в водах магматичних порід.

*Вміст урану як пошуковий критерій.* Підземні води можуть збагачуватися ураном унаслідок розчинення уранових мінералів, що містяться в гірських породах у вигляді рудних концентрацій чи в розсіяному стані. Тому на перехід урану в воду суттєво впливає її хімічний склад.

За даними А.І. Германова [11], вміст урану в підземних водах варіює в широкому діапазоні – від  $1 \cdot 10^{-8}$  до 2 г/л. Найвищі концентрації урану виявлені в кислих рудникових водах ( $n \cdot 10^{-2}$  – 2 г/л). У породах з нормальним розсіяним вмістом радіоактивних елементів підземні води містять уран в значно менших кількостях ( $n \cdot 10^{-6}$  –  $n \cdot 10^{-7}$  г/л). Концентрація урану понад  $n \cdot 10^{-4}$  г/л є ознакою підвищеного вмісту його в гірських породах, а в хлоридно-натрієво-кальцієвих водах осадових гірських порід цей показник досягає  $n \cdot 10^{-5}$  г/л. Уран з підвищеним вмістом у воді розповсюджується на значні відстані від родовища внаслідок його задовільної міграційної здатності.

З метою достовірного прогнозу промислового зрудніння урану доцільно враховувати хімічний та газовий склади підземних вод, геохімічні умови середовища та вміст у водах інших радіоактивних елементів.

До надійних ознак уранового зрудніння належать:

1) підвищені концентрації урану й радону в підземних водах магматичних порід;

2) підвищені концентрації урану і радію в підземних водах осадових і осадово-метаморфічних порід.

Таким чином, оцінюючи вміст радону, радію та урану в підземних водах, слід враховувати гідрогеохімічні умови, хімічний і газовий склади вод, літологію порід та їх еманувальну здатність, умови циркуляції води й інші фактори.



### 6.3. Стадії та завдання радіогідрогеологічних досліджень

Радіогідрогеологічні дослідження, що виконуються з метою виявлення уранових родовищ та радіоактивних вод бальнеологічного та промислового призначення, поділяються на такі стадії:

- рекогносцирувальну;
- пошукову;
- детальну.

*Рекогносцирувальні* радіогідрогеологічні дослідження слугують для виявлення ділянок з підвищеною радіоактивністю підземних вод у сприятливих для уранового зрудніння геологічних структурах. Вони охоплюють значні території і виконуються на геологічній основі масштабів 1:500000 – 1:200000. Опробування водопунктів здійснюється окремими маршрутами. Проби води відбираються рівномірно з усієї території пошукового району. Одна проба має бути відібрана з площі 3,5 – 35,0 км<sup>2</sup> [15] з урахуванням складності геолого-гідрогеологічних умов району. Згідно з даними досліджень складаються схематичні радіогідрогеологічні карти.

*Пошукові* радіогідрогеологічні дослідження відрізняються від рекогносцирувальних значно більшою щільністю та виконуються у масштабі 1:100000 – 1:50000. Вони полягають в опробуванні всіх наявних на території природних та штучних водопунктів, при цьому одна проба має бути відібрана з площі 0,5 – 2,5 км<sup>2</sup> [15]. Згідно з матеріалами, отриманими на даній стадії досліджень, складаються середньомасштабні радіогідрогеологічні карти, що дозволяють установлювати зв'язок підвищених концентрацій радіоактивних елементів у підземних водах з певними типами гірських порід, оцінювати виявлені радіогідрогеологічні аномалії та ореоли розсіювання урану в природних водах, а також визначати напрямки подальших, більш детальних досліджень.

*Детальні* радіогідрогеологічні дослідження здійснюються в масштабі 1:25000 – 1:5000 та слугують задля деталізації раніше виявлених аномалій. Вони супроводжуються розвідувальними роботами та спостереженнями за режимом підземних вод. Дана стадія досліджень дозволяє:

1) визначати контури ореолів розсіювання урану в підземних водах шляхом суцільного їх опробування по площі та у вертикальному розрізі (одна проба має відбиратися з площі 0,05 – 0,35 км<sup>2</sup> [15]);

2) встановлювати умови розповсюдження, глибину залягання та водну рясність водоносних горизонтів, з якими пов'язані осередки радіоактивних вод, а також умови живлення та стоку підземних вод;

3) виявляти умови руху підземних вод та положення ділянок з радіоактивними водами відносно водоносних горизонтів, з якими вони пов'язані;

4) установлювати умови формування підземних радіоактивних вод та виявляти ймовірні осередки збагачення вод радіоактивними елементами.

Радіогідрогеологічні дослідження на даній стадії виконуються також з метою детальної розвідки раніше виявлених ділянок уранового зрудніння та задля промислової оцінки родовища. За таких обставин радіогідрогеологічне картування здійснюється у масштабі 1:5000 та супроводжується великим об'ємом бурових робіт. За даними досліджень має бути отримана геолого-гідрогеологічна характеристика родовища.

### ***Питання для самоконтролю***

1. Які методи пошуку уранового зрудніння вам відомі? Охарактеризуйте їх.
2. Який метод набув широкого використання при пошуку уранових родовищ за вторинними ореолами розсіювання. У чому його суть?
3. Охарактеризуйте мету радіогідрогеологічних досліджень.
4. У чому полягає суть радіогідрогеохімічного методу пошуку уранових родовищ?
5. Дайте визначення поняттю «пошукові критерії». Які критерії пошуку уранових родовищ вам відомі?
6. Які ознаки можуть слугувати пошуковими на уранове зрудніння?
7. Унаслідок яких процесів підземним водам притаманні підвищені концентрації радону?
8. На що вказує вміст радону в підземних водах?
9. Які закономірності вмісту у водах радію слугують пошуковими ознаками уранового зрудніння?
10. Охарактеризуйте вміст у водах урану як пошуковий критерій.
11. У чому полягає відмінність між рекогносцирувальними та пошуковими радіогідрогеологічними дослідженнями?
12. Охарактеризуйте основні завдання детальних радіогідрогеологічних досліджень.

## 7. ГІДРОГЕОЛОГІЧНІ ТА ГЕОЕКОЛОГІЧНІ ПРОБЛЕМИ ПРИ ПІДЗЕМНОМУ ВИЛУГОВУВАННІ УРАНУ

### 7.1. Сутність способу підземного вилуговування та його вплив на підземні води

*Переваги способу підземного вилуговування. Гідрогеологічні типи родовищ урану. Гідрогеохімічні особливості родовищ урану. Принципова схема свердловинного вилуговування. Техногенний вплив при підземному вилуговуванні (ПВ). Масштаб і склад забруднення підземних вод і ґрунтів при ПВ.*

*Переваги способу підземного вилуговування. Підземне вилуговування (ПВ) визнано в останні роки найбільш екологічно чистим і маловідходним серед усіх сучасних способів видобування урану та первинної переробки уранових руд [3, 14, 28]. Відпадає необхідність будівництва дорогих рудників, кар'єрів і гідрометалургійних заводів, знижується витрата багатьох матеріалів; збільшується ступінь вилучення природних ресурсів у родовищах з низьким вмістом урану в рудах, що залягають у складних гідрогеологічних умовах, де їх розробка традиційними способами економічно не вигідна. Технологія ПВ забезпечує комплексну переробку сировини з високим вилученням цінних мікрокомпонентів.*

Інші способи видобутку урану – підземний та відкритий (у кар'єрах) – пов'язані з переміщенням великого об'єму гірських порід, неконтрольованим розчиненням урану атмосферними опадами, а також зберіганням відходів на поверхні. Блочне або кучне вилуговування мають обмежені умови застосування.

При підземному вилуговуванні урану мають враховуватися гідрогеологічні умови та геохімічна зональність навколо рудного тіла.

*Гідрогеологічні типи родовищ урану класифікуються за видами рудоутворюючих підземних вод [28]:*

- 1) пластово-інфільтраційні – утворені пластовими напірними водами при бічному русі;
- 2) ґрунтово-інфільтраційні – утворені ґрунтовими водами при низхідному русі;
- 3) урановугільні – утворені слабо-напірними або безнапірними водами при низхідному русі;
- 4) тріщинно-інфільтраційні;
- 5) карстово-інфільтраційні.

Останні два типи утворені безнапірними водами. Для підземного вилуговування безперспективні родовища урановугільного типу, а відпрацювання тріщинно- і карстово-інфільтраційних родовищ свердловинним вилуговуванням неприйнятне через техніко-економічні міркування. Головне значення для підземного вилуговування мають перші два типи родовищ.

Геотехнологічні умови для розробки ґрунтово-інфільтраційних родовищ, характерних для Українського кристалічного щита (Девладівське, Братське), менш сприятливі. Якщо коефіцієнт фільтрації на пластових родовищах сягає 5 – 20 м/добу, то для ґрунтових він становить зазвичай 1 – 2 м/добу. Ґрунтово-інфільтраційні родовища, як правило, невеликі, що обмежує розмір та продуктивність видобувних підприємств. Рудні тіла розташовуються на нижній межі зони окиснення, а також на контакті другого від поверхні водоносного горизонту з глинистим водотривом. Потужність рудних тіл становить 0,5 – 5 м, вміст урану в них зазвичай 0,01 – 0,1 %, а його запаси – від 1 до 3 тис. т. Більш сприятливі в гідрогеологічному відношенні для ПВ пластово-інфільтраційні родовища в Казахстані, Середній Азії та Росії. Отже, найбільшого поширення набуло свердловинне підземне вилуговування, орієнтоване на видобуток урану в пухких породах, зокрема, в ураноносних пісках.

*Гідрогеохімічні особливості родовищ урану* визначаються зональністю рудного тіла, рН і Eh підземних вод. Так, у різних частинах рудного тіла ступінь вилуговування різний (рис. 7.1).

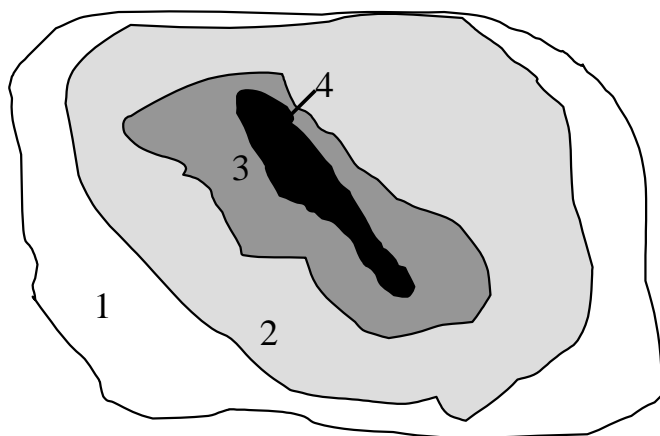


Рис. 7.1. Схема рудного тіла: 1 – водонесний пласт навколо рудного тіла, 2 – ореол підвищених концентрацій урану та елементів-супутників, 3 – зона «сірих» руд, 4 – зона «чорних» руд

Найбільша концентрація урану зазвичай спостерігається в зоні «чорних» руд. У зонах окиснення і в ореолі підвищених концентрацій вміст металу незначний, хоча тут він вилуговується досить легко. Якщо в зоні бідних «сірих» руд до 20 % урану може вилуговуватися чистою водою, то в ореолі рудного тіла – до 50 %. Найбільша витрата розчинника потрібна саме для зони «чорних» руд зі «старими», не окисненими урановими мінералами. Тут чистою водою можна вилучити не більше 5 % урану. Кожній із зон рудного тіла відповідають свої показники кислотності, окисно-відновлювального потенціалу.

Навколо рудного тіла формуються кислотно-лужний, окиснювально-відновний і сорбційний бар'єри. Поблизу них відзначається підвищення концентрації таких елементів, як Cs, Rb, Ag, Mo, Se. З початком вилуговування відбувається руйнування і переміщення цих бар'єрів.

Взаємодія розчинників з рудним тілом при вилуговуванні ґрунтується на дифузійно-кінетичній теорії гетерогенних процесів. У реакціях розчинення виділяються такі три стадії:

1) надходження розчинника до поверхні твердої речовини, де відбувається реакція;

2) хімічної взаємодії на межі розділу фаз;

3) видалення продуктів реакції.

Підсумкова швидкість вилуговування визначається швидкостями всіх трьох етапів, а по суті – швидкістю самої повільної реакції.

Якщо швидкість міжфазної взаємодії на поверхні більше швидкості підведення і відведення продуктів реакції, то сумарна швидкість вилуговування визначається дифузією і швидкістю фільтрації (дифузійний режим). Якщо швидкість міжфазної взаємодії мала, то інтенсивність процесу визначається кінетикою хімічних реакцій (кінетичний режим). При порівнянних швидкостях фільтрації і хімічних реакцій має місце перехідний режим. Досвід відпрацювання уранових родовищ свідчить, що в переважній більшості випадків при ПВ має місце дифузійний режим.

*Принципова схема свердловинного вилуговування наведена на рис. 7.2 [28].*

На ділянці родовища, що відпрацьовується, облаштовується система закачувальних та відкачувальних свердловин. Через закачувальні свердловини подається технологічний розчин, а через відкачувальні свердловини відбирається продуктивний розчин, що збагачений ураном та його елементами-супутниками внаслідок хімічних реакцій вилуговування. Як правило, свердловини розміщуються на відстані кількох десятків метрів одна від одної залежно від проникності порід та вмісту урану в рудних тілах. Відкачувальні

свердловини створюють локальні зони фільтраційної депресії, що попереджує втрату продуктивних розчинів. Через певний проміжок часу концентрація урану в продуктивному розчині падає, що потребує буріння нових свердловин після відпрацювання певної ділянки родовища.

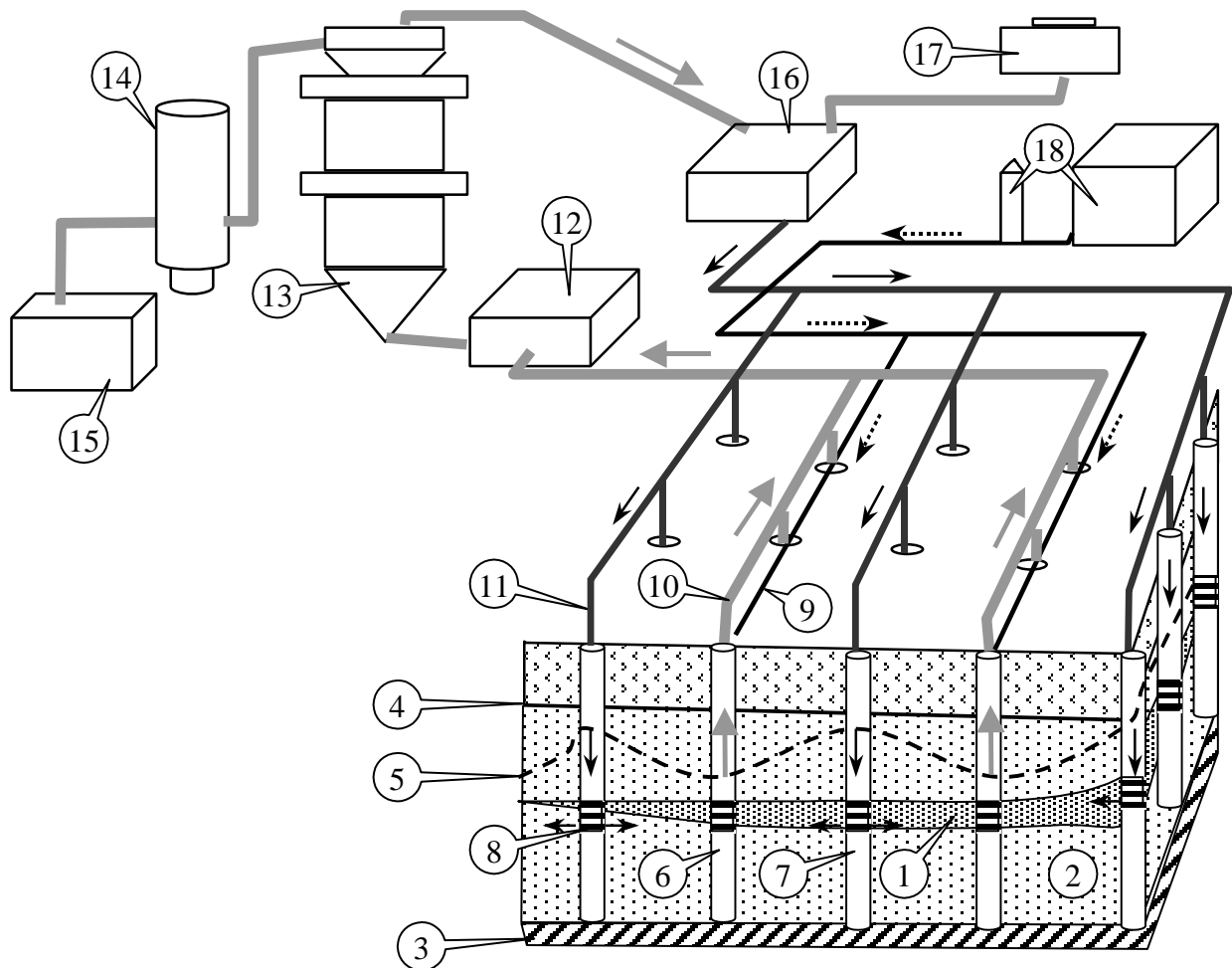


Рис. 7.2. Свердловинна система розробки родовищ у водоносних проникних породах: 1 – рудне тіло, 2 – рудоносні піски, 3 – глинистий водотрив, 4, 5 – рівень підземних вод до і після початку відкачки відповідно; 6 – відкачувальні свердловини, 7 – закачувальні свердловини, 8 – фільтри свердловин; 9 – 11 – трубопроводи: 9 – стисненого повітря, 10 – відкачаних розчинів, 11 – закачаних розчинів; 12 – 18 – споруди поверхневого технологічного комплексу: 12 – відстійник, 13 – сорбційний вузол, 14 – десорбційний вузол, 15 – склад готової продукції, 16 – вузол підкріплення розчинів реагентами, 17 – склад реагентів, 18 – компресорна

Техногенний вплив при ПВ (рис. 7.3) спрямований на:

- 1) рудоносні пласти, де природні води при експлуатації заміщуються робочими розчинами,
- 2) верхні шари ґрунту і водоносні горизонти при розливах розчинів з розподільних труб,
- 3) атмосферу при емануванні радону, що міститься в розчинах у ставках-відстійниках.

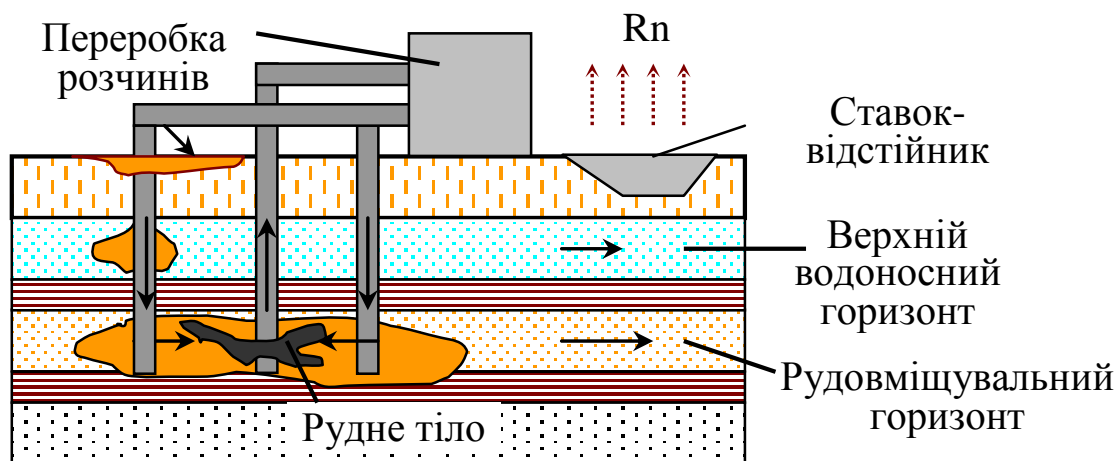


Рис. 7.3. Схема техногенного впливу ПВ на навколишнє середовище

Крім того, ПВ призводить до формування зон зниженого рівня підземних вод з високою кислотністю (лужністю) та підвищеними концентраціями урану і токсичних елементів-супутників (Se, Vn, Wo та ін.). У процесі ПВ утворюється велика кількість рідких відходів з високим вмістом радіонуклідів та важких металів.

Масштаб і склад забруднення підземних вод і ґрунтів при ПВ залежать від гідрогеологічних, гідрохімічних і геотехнологічних умов на розроблюваному родовищі, а також системи вилуговування, складу реагентів і побічних процесів у гірських породах. У багатьох випадках інтенсивний вплив на водоносний горизонт не створює додаткової екологічної небезпеки, оскільки на цих родовищах підземні води вже містять велику кількість урану і супутніх токсичних компонентів, мають підвищену мінералізацію та непридатні для господарсько-питних цілей. Крім того, гідрогеологічні особливості ПВ (формування зон фільтраційної депресії) перешкоджають розтіканню технологічних розчинів за контури блоків, що відпрацьовуються. Рудоносний

горизонт часто може розглядатися як пласт-колектор для безпечного захоронення рідких відходів (Долматівське родовище в Західному Сибіру) [28].

Проте в деяких випадках можуть забруднюватися водоносні горизонти, придатні для господарсько-питного водопостачання (Девладівське і Братське родовища в Україні). Розробка родовищ такого типу можлива тільки за певних умов, що виключають потрапляння залишкових розчинів до водозаборів.

## 7.2. Кислотний та лужний способи вилуговування урану

*Два способи підземного вилуговування урану. Хімічні реакції при кислотному та лужному вилуговуванні. Фізико-хімічні процеси, що супроводжують ПВ урану.*

*Два способи підземного вилуговування урану.* У колишньому СРСР і країнах Південно-Східної та Центральної Європи як реагент використовувалася сірчана або азотна кислота, що є достатньо ефективними реагентами, але є потенційно більш небезпечними для навколишнього середовища.

Як альтернатива у США, Канаді та деяких інших країнах використовується лужне вилуговування [43, 44, 46], що робить менший вплив на оточуюче середовище. Одна з причин цього полягала в тому, що рудоносні горизонти на багатьох родовищах урану в цих країнах були придатні для водопостачання. На початковому етапі використовувався бікарбонат амонію, коли виникли труднощі з відновленням якості підземних вод, основним реагентом став карбонат і бікарбонат натрію. Концентрація робочих розчинів становила 0,3 – 1,5 г/л, при цьому рН змінювався від 6,5 до 7,6. З метою попередження випадіння кальцію в осад іноді використовуються добавки, наприклад  $\text{CO}_2$ . У 1989 р. комісія з ядерного регулювання США визнала, що ПВ не несе значної екологічної загрози [46], хоча є багато прикладів тривалого забруднення підземних вод навколо розроблюваних родовищ урану.

Порівняння основних показників кислотного і карбонатного способів ПВ на основі оглядів [43, 44] наведено в табл. 7.1.

*Хімічні реакції при кислотному та лужному вилуговуванні.* Сполуки урану на родовищах – це зазвичай оксиди чотири- і шестивалентного урану  $\text{UO}_2$  і  $\text{UO}_3$ , іноді кофініт  $\text{USiO}_4$ . Для відпрацювання руд використовуються сірчана кислота у концентрації 0,3 – 0,5 % або карбонати і бікарбонати натрію чи амонію в концентрації 0,5 – 5,0 % з добавками перекису водню, кисню та інших



окиснювачів. Породоутворюючими мінералами є кварц і польові шпати, стійкі до даних розчинників.

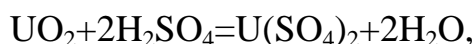
Таблиця 7.1

Показники кислотного і карбонатного способів ПВ урану

Показник	Кислотне вилуговування	Лужне вилуговування
Ступінь вилучення урану з розчину	Висока, 70 – 90 %	Помірна, 60 – 70 %
Швидкість розчинення	Висока, потрібно лише 40 – 70 порових об'ємів	Повільна, потребує більшої кількості розчину
Вміст розчинених мінералів у продуктивних розчинах	Високий (10 – 25 г/л)	Несуттєво підвищений
Застосовність до руд з карбонатами	Погана, потрібне додавання розчину	Добра
Додатковий окиснювач	Часто не потрібен	Потрібен (наприклад, $\text{KMnO}_4$ )
Можливість вилучення супутніх елементів	Є	Незначна, через селективність до урану
Необхідність додаткового очищення	Потрібна у деяких випадках	Не потрібна у разі використання йонного обміну
Вплив на проникність рудоносного горизонту	Зменшення через хімічну та газову кольматацію	Зменшення через карбонатну або сульфатну кольматацію
Роль природних бар'єрів у локалізації забруднення	Висока за рахунок сорбції та кольматації	Існує можливість міграції за контур вилуговування

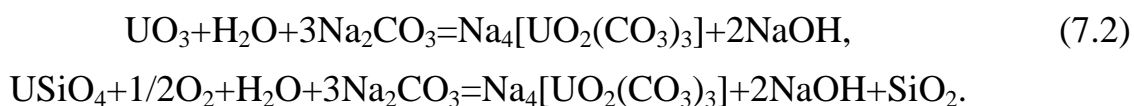
Реакції взаємодії розчинників з різними формами урану мають вигляд:

а) при кислотному способі вилуговування



б) при лужному способі вилуговування





У результаті реакцій (7.1) – (7.2) утворюються добре розчинні сполуки  $\text{U}^{4+}$  і ураніл-іона. Для сульфатів розчинність становить не менше 10 г в 100 г води, для карбонатів вона значно вища. Крім того, у кислих розчинах з  $\text{pH} < 2$  навіть без урахування комплексоутворення із сульфат-іоном можливі стійкі концентрації простого урану – кілька десятків мг/л.

Відповідно рівнянню (7.1) витрата сірчаної кислоти на вилучення 1 кг урану має становити для чотиривалентних форм 0,8 кг, а для шестивалентних – 0,4 кг. На практиці питома витрата кислоти сягає кількох десятків кілограм на кілограм видобутого металу, що є наслідком реакцій з породоутворюючими мінералами в рудному тілі та вміщувальних породах. Найбільше поглинають кислоту карбонати (кальцит, доломіт) і деякі глини.

*Фізико-хімічні процеси, що супроводжують ПВ урану.* Реакції розчинників з породами призводять до кольматації і формування рухливих фізико-хімічних бар'єрів. У результаті кольматації пори заповнюються газом або твердими відкладами, що знижує проникність порід. Це спричиняє зменшення дебітів і підвищення тиску в свердловинах, збільшення витрат на відкачування та зниження продуктивності відпрацьовуваної ділянки.

Можливі два типи рухливих бар'єрів: кислотно-лужний і окиснювально-відновлюваний. На передньому фронті бар'єра формується і рухається «хвиля» високих концентрацій у твердій фазі, що виноситься на поверхню порціями розчинника, що надходять ззаду. Осадження гідроксиду уранілу починається при  $\text{pH} = 3,8 \dots 5,0$ . Аналогічний процес, хоча й при значно меншій інтенсивності, триває в природних умовах і призводить до утворення родовищ урану. Кількісна оцінка ефекту перевідкладання визначається довжиною ліній течії і швидкостями фільтрації в зоні вилуговування.

На гідрохімічний режим у процесі підземного вилуговування впливають такі чинники:

1. Неоднорідність порід водоносного горизонту призводить до сповільнення масообміну.
2. Поглинання на водотриві й глинистих прошарках, а також витікання розчинів через «літологічні вікна» (зони підвищеної проникності й ділянки вклинювання водотриву) додатково зменшує концентрацію реагенту що, у свою чергу, зменшує концентрацію урану в продуктивному розчині.

3. Порушення структури порід у зоні відпрацювання змінює питому поверхню порід і їх сорбційну ємність.

4. Через залежність масообміну від швидкості фільтрації у застійних зонах може поглинутися більша кількість речовин за триваліший час.

### **7.3. Гідродинамічні особливості підземного вилуговування урану**

*Параметри ПВ урану. Основні закономірності процесу ПВ. Схеми розташування свердловин. Визначення довжини міграції залишкових розчинів. Дебаланс закачаних та відкачаних розчинів.*

*Параметри ПВ урану.* У зоні вилуговування зазвичай формується невелике зниження рівня підземних вод за рахунок переважання відкачаних розчинів над закачаними. Відстані, на яких були знайдені залишки технологічних розчинів за межами зон відпрацювання, становили кілька десятків метрів, максимум 100 – 150 м [28].

Тому в період відпрацювання тривалістю 3 – 5 років для окремих блоків ділянки вилуговування не становлять небезпеку по відношенню до водозаборів, розташованих на відстані 1,5 – 2 км і більше. Однак навіть у цьому випадку проекти відпрацювання родовищ урану методом ПВ мають бути обґрунтовані фільтраційними і міграційними розрахунками. Найбільш важливим є період після відпрацювання, коли поступово зникає зона зниження підземних вод і ореол залишкових розчинів зміщується під впливом градієнта підземних вод, що поступово відновлюється.

Прогноз міграції урану і залишкових розчинів має враховувати фільтраційні, міграційні та геотехнологічні параметри ПВ.

До фільтраційних параметрів належать глибина до покрівлі водоносного горизонту, його потужність, статичний (природний) рівень підземних вод, коефіцієнт фільтрації пісків і рудного тіла, проникність і п'єзопровідність, пористість і дебіти свердловин.

Міграційні параметри включають швидкість фільтрації, швидкість розчинення сполук урану, коефіцієнт дифузії, параметри сорбції, а також характеристики рудного тіла: його потужність, вміст металу, розташування в пласті.

До геотехнологічних параметрів відносять швидкість вилуговування, ступінь вилучення металу, відношення обсягу або маси рідких розчинів до

обсягу або маси твердого вилученого урану, концентрації закачних розчинів і вихідні концентрації металів, відстані між свердловинами, схеми їх розташування.

*Основні закономірності процесу ПВ* пов'язують швидкість вилуговування зі швидкістю фільтрації реагентів, а вихідні концентрації урану – з тривалістю міграції, рудоносності й витратами розчинників. Під швидкістю вилуговування розуміється відношення довжини шару рудоносних порід до часу, протягом якого з нього виноситься певна частина металу. Експериментально встановлено, що швидкість вилуговування  $v_l$  практично пропорційна швидкості фільтрації  $v_s$ , тобто

$$v_l = \beta v_s, \quad (7.3)$$

де  $\beta$  – емпіричний коефіцієнт, що залежить від комбінації «рудний матеріал – розчинник». Виходячи зі співвідношення (7.3), можна оцінити об'єм розчинника, який потрібно подавати для вилучення певної кількості металу.

Тривалість вилуговування шару рудоносного матеріалу пропорційна його довжині  $l$ , отже

$$t_l = l / v_l = l / (\beta v_s). \quad (7.4)$$

Об'єм розчину  $W$ , що проходить за час  $t_l$  через перетин площею  $S$ , складе

$$W = v_s S t_l = S l / \beta. \quad (7.5)$$

Оскільки густина розчинів близька до  $1 \text{ г/см}^3$ , то відношення Р:Т (маси розчину до маси твердої руди) буде

$$f = l / (\beta \gamma), \quad (7.6)$$

де  $\gamma$  – об'ємна маса руди. На практиці можна задавати з достатньою точністю  $f = 0,6/\beta$  [28].

Співвідношення (7.3) – (7.6) підтверджені експериментально для одновимірного потоку при швидкості фільтрації в діапазоні від 0,05 до 10 м/добу. У разі двовимірних течій, що виникають у процесі ПВ (рис. 7.4), можуть виникати зони з різним ступенем вилучення металу і кислотністю підземних вод. Наявність ліній течії з різними швидкостями фільтрації збільшує тривалість обробки і розтягує у часі процес вилуговування.

*Схеми розташування свердловин.* Найбільш поширеною схемою в практиці видобувних підприємств колишнього СРСР є розташування лінійних рядів відкачувальних і закачувальних свердловин з відстанями 15 – 40 м між свердловинами і 30 – 80 м – між рядами. Для витягнутих родовищ застосовується рядна схема, коли по краях розташовані закачувальні, в центрі –

відкачувальні свердловини. Для слабопроникних покладів доцільна гексагональна схема або квадратна сітка (рис. 7.5).

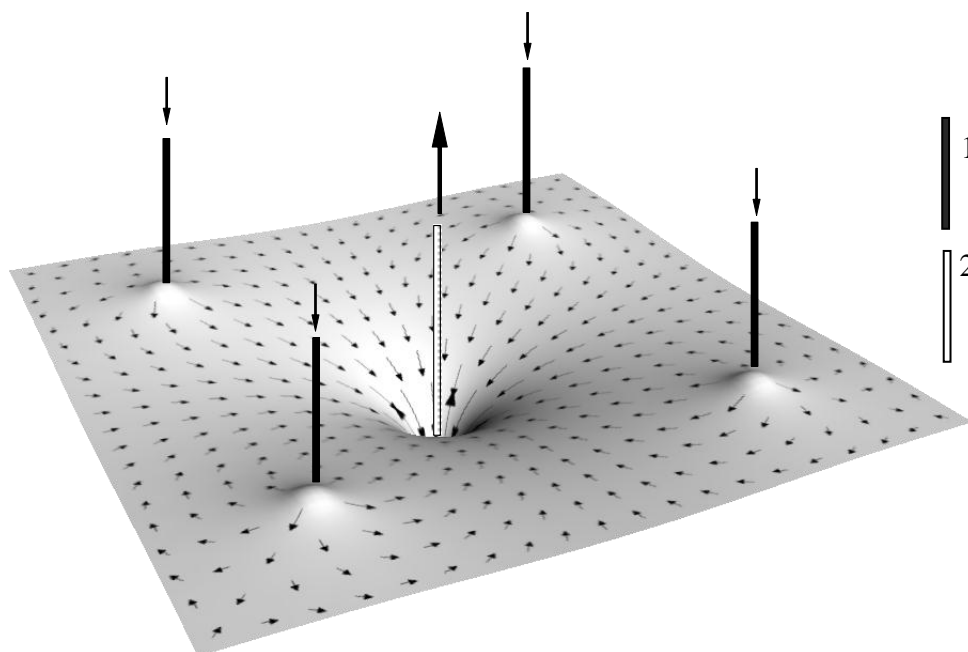


Рис. 7.4. Напрямки течії продуктивних розчинів та рівень підземних вод при ПВ: 1 – закачувальні свердловини, 2 – відкачувальна свердловина

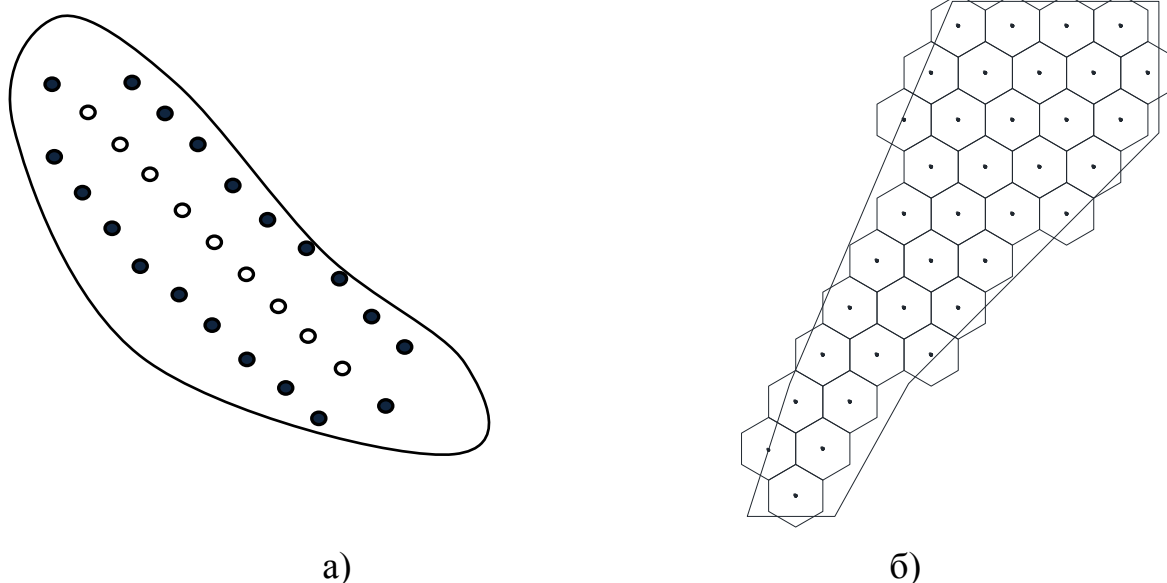


Рис. 7.5. Рядна (а) і гексагональна (б) схеми розташування свердловин при ПВ урану

*Визначення довжини міграції залишкових розчинів.* Після закінчення ПВ і відновлення природної течії підземних вод починається міграція залишкових розчинів і їх поступова нейтралізація за рахунок взаємодії з породами. Довжина

шляху  $x_n$  і тривалість нейтралізації кислотності  $t_n$  можуть визначатися за залежностями (див. схему на рис. 7.6):

$$x_n = \bar{K}_d l_0, t_n = l_0(1 + \bar{K}_d) / v_s, \quad (7.7)$$

$$\bar{K}_d = C_0 n / (R \rho),$$

де  $\bar{K}_d$  – коефіцієнт розподілу між компонентами розчинів у рідкій і твердій фазах, б/р;  $C_0$  – вихідна концентрація кислоти в залишкових розчинах, кг/м<sup>3</sup>;  $R$  – кислотність, %,  $v_s$  – швидкість фільтрації, м/добу;  $\rho$  – об'ємна маса порід, кг/м<sup>3</sup>;  $n$  – активна пористість, %.

Залежності (7.7) отримані на основі балансу іона Н<sup>+</sup> при нейтралізації кислоти породами в умовах необоротної рівноважної сорбції аналогічно ізотермам сорбції розчинених речовин у пористому середовищі. Однак нейтралізація кислотності не виводить із розчинів сульфати й карбонати, які можуть мігрувати на значні відстані.

Швидкість міграції розчинів у процесі та після відпрацювання блоків ПВ змінюється на ділянці вилуговування і залежить від часу відновлення рівня підземних вод. У той же час швидкість міграції в рудоносних пластах зазвичай невелика. Припускаючи, що коефіцієнт фільтрації змінюється від 1 до 5 м/добу, гідравлічний градієнт – від 0,0005 до 0,005, пористість – від 0,1 до 0,2, можна отримати оцінку дійсної швидкості фільтрації в діапазоні 0,9 – 90 м/рік.



Рис. 7.6. Схема нейтралізації залишкових розчинів у фільтраційному потоці

Співвідношення (7.3) – (7.7) дозволяють зробити попередні оцінки параметрів міграції. Більш детально прогноз відновлення рівня і міграції залишкових розчинів має виконуватися на основі чисельного моделювання з урахуванням реакцій розпаду і нейтралізації.

При поширенні залишкових розчинів можливі такі ситуації: міграція в сусідній блок і міграція до водозаборів. У першому випадку слід проводити поетапне відпрацювання сусідніх блоків, що забезпечує залучення та збір залишкових розчинів новими відкачувальними свердловинами.

*Дебаланс закачаних та відкачаних розчинів.* Ідеальна робота замкненої безвідходної системи базується на принципі балансу розчинів, що відкачуються та закачуються. Цим забезпечується стаціонарний режим фільтрації на ділянці ПВ з мінімальним розведенням розчинів. На практиці через їх часткові втрати на поверхні (розливи, випаровування у ставках-відстійниках) свердловинні системи працюють в умовах дебалансу – перевищення об'єму відкачаних розчинів над закачаними. При невеликому дебалансі (до 10 %) забезпечується стабільне положення контуру вилуговування. Формування нової депресійної воронки в безпосередній близькості від відпрацьованого блоку призводить до стягування залишкових розчинів з нього в новий блок. Тим самим забезпечується попутна рекультивация відпрацьованих площ без будь-яких додаткових витрат.

Практична реалізація ідеї попутної рекультивации передбачає обґрунтування послідовності відпрацьовання блоків. Цей процес залежить від схем розташування свердловин, тривалості вилуговування, розведення розчинів тощо.

Приклад. Необхідно визначити час стягування залишкових розчинів до контуру експлуатованого блоку. Розміри блоків такі:  $l_x = 200$  м,  $l_y = 100$  м, потужність водоносного горизонту  $m = 8$  м, пористість  $n = 0,2$ , дебаланс закачаних і відкачаних розчинів  $\Delta Q = 120$  м<sup>3</sup>/добу. При відпрацьованні нового блоку в його центрі утворюється депресійна воронка. Відстань від її центру до далекого кінця відпрацьованого блоку  $R_1 = 180$  м, а до «входу» в блок з цього ж напрямку  $R_0 = 60$  м (рис. 7.7). Припускається, що залишкові розчини рівномірно розподілені в об'ємі пор відпрацьованого блоку.

Час стягування розчинів до контуру експлуатованого блоку при відсутності поблизу інших депресійних воронок можна визначити як відношення об'єму залишкових розчинів до дебалансу в сусідньому блоці  $\Delta Q$ , тобто

$$t_c = \frac{\pi(R_1^2 - R_0^2)mn}{\Delta Q} = 1205 \text{ діб} \approx 3,3 \text{ роки.}$$

Тривалість перетікання залишкових розчинів у сусідній блок у даному прикладі порівнянна з тривалістю відпрацьовання окремих блоків. Таким чином, за час відпрацьовання сусідній блок здатний прийняти більшу частину залишкових розчинів з площі сусіднього відпрацьованого блоку.

Наслідком дебалансу є те, що в процесі збору технологічних розчинів надходить частина пластових вод, що не містять реагентів і продуктів вилуговування. Розведення розчинів у відкачувальній свердловині пластовими

водами призводить до зниження кислотності (лужності) продуктивних розчинів. Так, п'ятикратне розбавлення збільшує рН на 0,7. Однак, при використанні розчинів сірчаної кислоти 5–30 г/л (рН = 0,55 ... 1,35) підсумкова величина рН розбавлених розчинів залишається менше 2,5, що достатньо для підтримки урану в розчиненому вигляді в концентраціях до сотень мг/л. Те ж має місце і для величини Eh при карбонатному вилуговуванні. Досліди на родовищах Казахстану підтвердили, що навіть 4–5-кратне розбавлення не призводить до випадання металу в осад [43].

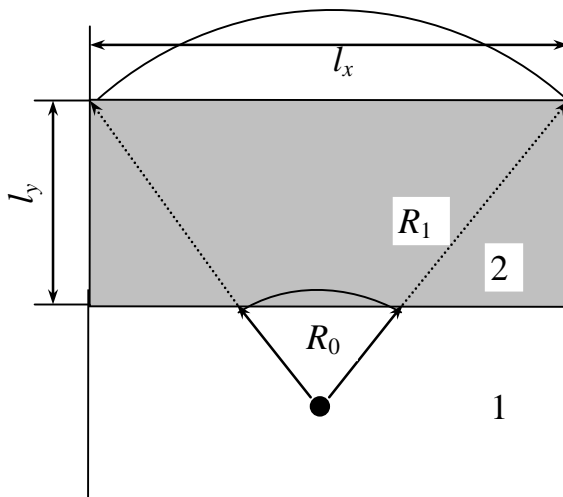


Рис. 7.7. Схема до розрахунку збору залишкових розчинів при послідовному відпрацюванні: 1) блок, що відпрацьовується, 2) відпрацьований блок

#### 7.4. Захист підземних вод при підземному вилуговуванні урану

*Приклади забруднення підземних вод. Заходи захисту підземних вод при підземному вилуговуванні урану: гідродинамічна локалізація, фізико-хімічна нейтралізація, застосування сульфатредукувальних бактерій.*

*Приклади забруднення підземних вод при розробці уранових родовищ досить численні. Аналіз досвіду відпрацювання і подальшої реабілітації родовищ урану способом ПВ висвітлювався в багатьох публікаціях, огляд яких дано в [43, 44, 46].*

Незважаючи на очевидні переваги технології ПВ порівняно з традиційними способами видобутку, ряд родовищ у 1970–1990-х рр. відпрацьовувалися без дотримання відповідних норм. Це відбувалося і в західних країнах до 1980-х рр., коли були встановлені вимоги безпечного відпрацьовування родовищ урану способом ПВ. У Східній Європі найбільш



відомі приклади забруднення підземних вод на родовищах Девладівському (Україна), Königstein (Східна Німеччина), Stráz Pod Ralskem (Чехія), а також «Орлов Дол» (Болгарія) (табл. 7.2, 7.3).

У 1960 – 1980-х рр. в Україні способом ПВ відпрацьовувалися Девладівське (Дніпропетровська обл.) та Братське родовища (Миколаївська обл.). У період освоєння Девладівського родовища основними джерелами забруднення підземних вод були технологічні розчини. Концентрація сірчаної кислоти сягала 10 г/л, в окремі періоди – 50 г/л, азотної – 2 г/л. За весь період відпрацювання в рудоносний бучацький горизонт було подано 200 тис. тонн сульфат-іона у вигляді сірчаної кислоти і 18570 тонн нітрат-іона.

У межах майданчика полігону ПВ за даними режимних спостережень за 1998 р. відзначено забруднення підземних вод бучацького горизонту. Межі зони залишкових розчинів охоплюють площу полігону і відпрацьованих рудних покладів, поширюючись у напрямку руху підземних вод уздовж палеодолини в напрямку р. Саксагань. У значній кількості пунктів спостереження перевищені гранично допустимі концентрації; через 15 років після припинення видобутку концентрація сульфатів в окремих свердловинах на полігоні видобутку та нижче за течією підземних вод сягала 2 – 4 г/л, урану – до 900 Бк/л,  $^{210}\text{Pb}$  – до 15 Бк/л,  $^{210}\text{Po}$  – до 0,7 Бк/л.

На родовищі Stráz Pod Ralskem протягом понад 20 років застосовувалися підземний видобуток і ПВ. Це призвело до забруднення підземних вод на площі 25 км<sup>2</sup>, причому частина цієї області перебувала за межами контуру вилуговування. Ситуація тут ускладнена інтенсивним використанням хімікатів, що спричинило додаткове забруднення підземних вод.

*Заходи захисту підземних вод при ПВ урану.* Отже, видобуток урану способом ПВ становить потенційну загрозу забруднення підземних вод. На першому етапі розвитку технології ПВ у 1960 – 1970 рр. питанням охорони навколишнього середовища приділялася недостатня увага. Тому забруднення підземних вод на родовищах урану, що відпрацьовувалися способом ПВ, сприймалося як невідворотне. В результаті розвитку технологій та підвищення вимог до екологічної безпеки сформувалися сучасні стандарти екологічної безпеки на ділянках ПВ. Їх неухильне дотримання дозволяє запобігти забрудненню підземних вод при підземному вилуговуванні. Разом з тим існує проблема рекультивації ділянок колишнього видобутку урану способом ПВ.

Якість підземних вод до і після відпрацювання  
родовища Stráz Pod Ralskem (Чехія)

Місця відбору проб	pH	Розчинні солі, г/л	SO <sub>4</sub> , г/л	NO <sub>3</sub> , мг/л	F, мг/л	U, мг/л	Ra, Бк/л	H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> , г/л
Залишкові розчини	0,5	50 – 100	33 – 80	600 – 1400	150 – 250	1 – 30	50 – 90	15 – 20
Верхній горизонт, до/після	6,7	0,14	0,033	<1	<1	0,02	8,74	Відсутня
	1,8 – 2,8	5 – 20	3,3 – 13	5 – 100	5 – 50	0 – 15	30 – 70	0,5 – 5
Нижній горизонт, до/після	6,7	0,1	0,035	5,2	<1	0,01	0,07	Відсутня
	2,5 – 7,0	0,5 – 5,5	0,05 – 3,3	5 – 1000	0,5 – 25	<1	0,1 – 1,0	<0,5

Таблиця 7.3

Вміст макро- й мікроелементів у залишкових розчинах (мг/л)  
на ділянках ПВ родовища «Орлов Дол» у Болгарії (за даними з 13 об'єктів)

pH	Розчинні солі	Na	K	Ca	Mg	SO <sub>4</sub>	V
1,4 – 2,0	15000 – 20000	30 – 900	30 – 200	140 – 600	140 – 330	10000 – 12000	1,0 – 18
Al	Fe	Mn	Zn	HSiO <sub>4</sub> <sup>-</sup>	U	Ra (Бк/л)	
310 – 840	700 – 2200	6 – 61	2,1 – 7,3	210 – 350	5 – 30	1 – 2	

Очищення відпрацьованих ділянок ПВ від залишкових розчинів і продуктів вилуговування пов'язане зі значними витратами. Орієнтовна кількість води, необхідна для очищення водоносних горизонтів, становить 1 поровий об'єм для досягнення 70 % очистки, 5 порових об'ємів – для

досягнення 90 % очистки. Тоді, наприклад, для очищення ділянки площею 50 га при товщині пласта 15 м з пористістю 0,2 необхідно прокачати  $1,5 \cdot 10^6$  м<sup>3</sup> чистої води. Цей обсяг прокачування можуть забезпечити кілька свердловин дебітом до 200 м<sup>3</sup>/добу, які працюють протягом декількох років. Однак така очистка пов'язана з вирішенням нових проблем, серед яких подача й утилізація відкачаної води, оптимальне розташування свердловин.

Сучасна стратегія рекультивації відпрацьованих ділянок ПВ на родовищах урану, рідкоземельних та радіоактивних металів ґрунтується на комплексі заходів профілактичного й активного характеру [43]:

- профілактичні заходи та технологічні прийоми: послідовне відпрацювання, цементація затрубного простору робочих свердловин;

- використання захисних властивостей природних бар'єрів: поглинання залишкових розчинів породами рудоносного горизонту, розтягнення в часі проміжку надходження залишкових розчинів у водозабори, що знижує інтенсивність забруднення підземних і поверхневих вод;

- моніторинг підземних вод на основі принципу «контрольованого забруднення»: контроль міграції та своєчасне попередження про необхідність прийняття активних захисних заходів;

- гідродинамічна локалізація забруднених ділянок шляхом зміни швидкості природної течії підземних вод, дренаж забруднених вод;

- фізико-хімічна нейтралізація залишкових розчинів шляхом змін рН і Eh підземних вод: закачування вапняних розчинів, використання спеціальних добавок;

- промивання забруднених ділянок на поверхні ґрунту;

- застосування сульфатредукувальних бактерій для зниження концентрації сульфатів.

*Гідродинамічна локалізація* ділянок ПВ здійснюється шляхом зміни напрямку фільтраційного потоку внаслідок створення так званих гідрозавіс. На шляху міграції змінюється гідравлічний градієнт, аж до зміни напрямку потоку на протилежний. Тим самим можна загальмувати поширення плями залишкових розчинів. Положення і дебіти свердловин, а також динаміку зони забруднення в умовах зміненого поля швидкостей слід оцінювати за допомогою моделювання фільтрації та міграції.

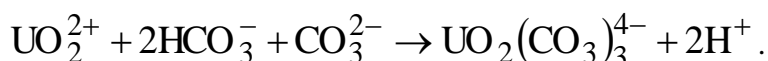
*Фізико-хімічна нейтралізація* ділянок кислотного забруднення здійснюється закачуванням вапняних розчинів з подальшою зміною рН підземних вод (рис. 7.8). На шляху поширення залишкових розчинів формуються ділянки зі зміненими фізико-хімічними характеристиками.

Розташування місць закачування вапняних розчинів, їх концентрація мають оцінюватися на основі розрахунків міграції у забрудненому водоносному горизонті з урахуванням сорбційної ємності та швидкостей осадження продуктів вилуговування.



Рис. 7.8. Принципи фізико-хімічної нейтралізації залишкових розчинів ПВ

Технологія очищення поверхневих шарів порід на ділянках ПВ передбачає відбір забрудненого ґрунту, промивку лужним реагентом у насичених умовах з утворенням розчиненого трикарбонатного уранілу [42]:



Отриманий розчин реагує з фосфорною кислотою, що дозволяє витягти понад 99 % урану. Глинисті частинки відділяються за допомогою сульфату алюмінію, після чого рідка фаза сепарується у фільтраційних колонках. Відфільтрований розчинник використовується вдруге, а очищений ґрунт поміщається на колишнє місце. При цьому вилучення урану складає 75 – 90 %. Аналогічні технології, що застосовуються в США, Канаді та інших країнах, використовують флотацію, хімічне та ультразвукове вилуговування в поєднанні з мікрофільтрацією. Широке застосування подібних методів очищення поки стримується значними витратами.

*Застосування сульфатредукувальних бактерій.* Для зниження рівня сульфатів у забруднених водах на ділянках ПВ доцільно застосування сульфатредукувальних бактерій, які використовують сполуки сірки для своєї

життєдіяльності. До їх складу входять два основних роди: *Desulfovibrio* і *Desulfotomaculum*. Вони ростуть при температурі від 3 – 15 до 35 – 400 °С при рН від 4,2 до 10,5. У процесі біохімічної очистки з додаванням органічного джерела живлення ці бактерії в анаеробних умовах відновлюють сульфати до сірководню. Технологічні проблеми полягають у забезпеченні оптимальних умов відновлення сульфідів та виборі місць закачування розчинів, що містять бактерії. Технологію осадження урану в доступну форму за допомогою мікроорганізмів було апробовано в лабораторних умовах [45].

Експерименти в Казахстані в лабораторних і польових умовах показали зменшення концентрації сульфатів у залишкових розчинах з 10 до 0,5 г/л, на родовищі Карамурун їх концентрація знизилася з 5,4 до 2,7 г/л [43]. У цілому вміст сульфатів вдалося знизити в 3 – 10 разів протягом декількох місяців.

Підземні води поблизу ділянок ПВ, відпрацьованих кислотним способом, характеризуються підвищеними концентраціями сульфатів, трансуранових елементів, токсичних мікрокомпонентів (наприклад, Se, Va), а також підвищеною жорсткістю і низьким показником рН. Для відновлення якості таких вод доцільне застосувати очищення від зважених речовин, пом'якшення, стабілізаційну обробку, денітрифікацію, вугільну адсорбцію.

### ***Питання для самоконтролю***

1. У чому полягають переваги способу підземного вилуговування урану порівняно з шахтним способом та видобутком у кар'єрах?
2. Порівняйте пластово-інфільтраційні та ґрунтово-інфільтраційні родовища урану.
3. Охарактеризуйте зональність розподілу урану в рудних тілах.
4. Опишіть принципи підземного вилуговування урану.
5. Як визначаються швидкість та час вилуговування урану з породи?
6. Як впливає підземне вилуговування на стан підземних вод, ґрунтів та атмосфери?
7. Які геотехнологічні відмінності кислотного та лужного способів підземного вилуговування?
8. Які розчинники використовуються та кінцеві продукти утворюються при кислотному і лужному вилуговуванні урану?
9. Які причини та наслідки кольматації при підземному вилуговуванні урану?

10. Що таке фізико-хімічні бар'єри при підземному вилуговуванні урану?
11. Як локалізуються ділянки підземного вилуговування урану в гідродинамічному відношенні?
12. Охарактеризуйте основні параметри підземного вилуговування урану.
13. Як визначається кількість розчину, необхідна для вилуговування певного об'єму руди при підземному вилуговуванні урану?
14. Які є способи розміщення свердловин при підземному вилуговуванні урану?
15. Як відбувається нейтралізація залишкових розчинів підземного вилуговування урану?
16. Чому необхідно підтримувати дебаланс при підземному вилуговуванні урану?
17. Що таке послідовне відпрацювання блоків при підземному вилуговуванні?
18. Охарактеризуйте масштаби та інтенсивність забруднення підземних вод після підземного вилуговування урану: а) в Україні, б) у країнах Східної Європи.
19. Опишіть заходи захисту підземних вод при підземному вилуговуванні урану?
20. Як проводиться фізико-хімічна нейтралізація залишкових розчинів після підземного вилуговування?
21. Які переваги використання сульфатредукувальних бактерій для відновлення якості підземних вод після підземного вилуговування урану?

## 8. РАДІОАКТИВНЕ ЗАБРУДНЕННЯ ҐРУНТІВ ТА ПІДЗЕМНИХ ВОД

### 8.1. Забруднення ґрунтів та підземних вод після радіоактивних випадань з атмосфери

*Найпотужніші аварії на АЕС. Механізми міграції радіонуклідів у ґрунтах. Особливості міграції  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  та  $^{241}\text{Am}$  у ґрунтах.*

*Найпотужніші аварії на АЕС.* Радіонукліди на поверхню ґрунтів надходять після аварійних викидів на АЕС та комбінатах, що переробляють радіоактивні матеріали. Газоподібні відходи, частинки твердого палива з реактора та рідкі аерозолі можуть поширюватися вітром на далекі відстані. Їх осідання на поверхню ґрунту відбувається за рахунок сухого та «мокрого» осадження (вимивання дощами та снігом).

Типові рівні радіоактивного забруднення ґрунтів після викидів складають від 5 до 100 Кі/км<sup>2</sup>. Вони змінюються внаслідок повторних випадань, розпаду, утворення дочірніх елементів, вітрового перенесення, поверхневого стоку та низхідної міграції в ґрунти.

За всю історію існування атомної енергетики трапилася ціла низка інцидентів та аварій на окремих реакторах, АЕС, сховищах радіоактивних матеріалів. Основні відомості про найбільш відомі аварії в історії атомної енергетики наведені в табл. 8.1.

Таблиця 8.1

Найбільш потужні аварії в історії атомної енергетики

Рік	Країна	Назва об'єкта	Склад викидів, їх сумарна радіоактивність
1957	СРСР	Комбінат «Маяк» поблизу м. Челябінська	Рідкі аерозолі, 20 млн Кі
1979	США	АЕС «Три-майл Айленд»	Переважно радіоактивні гази, від 2 до 13 млн Кі
1986	СРСР	Чорнобильська АЕС	Частинки твердого палива, 50 млн Кі
2011	Японія	АЕС «Фукусіма-1»	Гази та радіоактивна вода, 5 млн Кі

Найбільш масштабне забруднення ґрунтів та природних вод трапилося після аварії на Чорнобильській АЕС. Уже в перші дні після 26 квітня 1986 р. радіоактивні аерозолі надійшли до водойм і дощем змивалися із забруднених водозборів. Рівні радіоактивного забруднення природних вод визначалися відстанню від ЧАЕС та інтенсивністю випадання аерозолів, змивом з території водозбору в дніпровські водоймища. За даними Держкомгеології України 130 тис. км<sup>2</sup> (20 % всій території країни) були забруднені <sup>137</sup>Cs з рівнем від 1,8·10<sup>10</sup> Бк/км<sup>2</sup> і вище (понад 10 доаварійних значень фону). У цілому на території України розсіяно до 1,1·10<sup>16</sup> Бк радіонуклідів, з яких 90 % припало на <sup>137</sup>Cs. Головну небезпеку становлять <sup>90</sup>Sr, <sup>137</sup>Cs та ізотопи плутонію, причому найбільш небезпечним є стронцій, оскільки для нього не існує ефективних природних геохімічних бар'єрів.

Вміст <sup>137</sup>Cs у донних відкладах Київського водосховища досяг максимуму в середині літа 1986 р. (185 – 29600 Бк/кг), а в представниках іхтіофауни – взимку 1987 – 1988 рр. (370 – 29000 Бк/кг сирої маси). Радіоактивний мул поступово рухався вниз по каскаду водосховищ, а питомі запаси <sup>137</sup>Cs в донних відкладах Київського і Канівського водосховищ зрівнялися вже до 2005 р. У Кременчуцькому водосховищі запаси <sup>137</sup>Cs на 2005 р. оцінювалися в 1,1·10<sup>13</sup> Бк. До Каховського водосховища потрапляла найбільш дрібна колоїдна суспензія, і тому істотного збільшення запасів <sup>137</sup>Cs в мулах не відбувається. Для поливного землеробства потенційно небезпечним є <sup>90</sup>Sr, що може поступово накопичуватися в ґрунтах і переходити до сільськогосподарської продукції.

Основними завданнями контролю радіоактивного забруднення поверхневих і підземних вод є утримування <sup>90</sup>Sr у лівобережній заплаві р. Прип'ять, де знаходиться близько 3,7·10<sup>14</sup> Бк його активності й у численних пунктах тимчасового захоронення та локалізації радіоактивних відходів у 30-кілометровій зоні (близько 800 таких пунктів). Заплаву необхідно підтримувати в сухому стані, запобігаючи її затопленню паводковими водами, що є досить складним завданням, зважаючи на стан дренажних систем у зоні ЧАЕС. Тимчасові радіоактивні могильники слід перетворити у довготривалі, провести їх паспортизацію та обстеження.

У березні 2011 р. на АЕС «Фукусіма-1» (Японія), що розташована на березі Тихого океану, в результаті найсильнішого в історії країни землетрусу і наступного за ним цунамі сталася потужна радіаційна аварія, що була потім оцінена, як і аварія на ЧАЕС, за найвищим ступенем небезпеки. Внаслідок вибухів і розгерметизації активної зони, оболонок тепловиділяючих елементів



(твелів) до атмосфери, моря та підземних вод надійшла велика кількість радіоактивних матеріалів.

Навіть до середини 2013 р. через неможливість повної герметизації аварійного блоку до моря виливалися сотні тонн радіоактивної води, що використовується для охолодження реакторів. Тому концентрація  $^{137}\text{Cs}$  у морській воді на відстанях до 1 км від станції перевищувала допустимі значення у сотні й тисячі разів. Невелике підвищення радіоактивності в повітрі та на поверхні ґрунту спостерігалось місцями у Північній півкулі приблизно на широті аварії, від Тихого океану, США до Західної Європи. Вміст радіонуклідів у ґрунтах на узбережжі біля станції перевищував фон у сотні разів у кінці 2012 р., а повна дезактивація й очистка ґрунтів, за оцінками фахівців, буде тривати ще років 30.

*Механізми міграції радіонуклідів у ґрунтах* включають вилуговування з твердих частинок, перенос з інфільтраційним потоком вологи, дифузію та сорбцію, при цьому слід враховувати радіоактивний розпад з утворенням дочірніх компонент, поглинання радіонуклідів рослинністю, вітровий винос та поверхневий стік. Детально міграція радіонуклідів у ґрунтах та водонасичених породах розглянута в [32].

Інтенсивність вилуговування з переходом у розчинний стан може бути розрахована за формулою (8.1) [13]

$$q(t) = A_{\Sigma} \frac{\kappa}{F} \exp(-(\kappa + \lambda)t), \quad (8.1)$$

де  $A_{\Sigma}$  – початкові запаси радіонукліда на ділянці площею  $F$ ;  $\kappa$  – константа швидкості переходу радіонукліда з твердої фази до рідкої,  $\text{дб}^{-1}$ ,  $\kappa = \ln 2/T_p$ ;  $T_p$  – період піввиведення радіонукліда з твердої фази, наприклад з частинок палива, дб. За період  $T_p$  з твердої фази до рідкої перейде половина початкової активності.

Швидкість вертикального переносу з інфільтрацією визначається за формулою (8.2)

$$v_z = \frac{w}{n}, \quad (8.2)$$

де  $w$  – інфільтрація;  $n$  – активна пористість ґрунту.

Дифузія радіонуклідів в умовах відносно низької швидкості вертикального руху води переважно визначається молекулярною дифузією. Коефіцієнт молекулярної дифузії водних розчинів у пористому середовищі складає близько  $10^{-5} \text{ м}^2/\text{с}$ .

На тривалих проміжках часу поглинання радіонуклідів ґрунтами може бути описане лінійною ізотермою рівноважної сорбції (ізотермою Генрі)

$$N = \bar{K}_d C. \quad (8.3)$$

У формулі (8.3)  $N$  та  $C$  – концентрації радіонуклідів у твердій фазі ґрунту та у поровому розчині відповідно, г/см<sup>3</sup>;  $\bar{K}_d$  – безрозмірний коефіцієнт розподілу, що залежить від властивостей ґрунтів та радіонукліда і визначається як

$$\bar{K}_d = n \rho_p K_d / n_p, \quad (8.4)$$

де  $K_d$  – коефіцієнт розподілу, см<sup>3</sup>/г;  $\rho_p$  – об'ємна вага породи, г/см<sup>3</sup>;  $n_p$  – загальна пористість.

З урахуванням сорбції швидкість міграції визначається так:

$$v_z = \frac{w}{n + \bar{K}_d}. \quad (8.5)$$

Приклад. Інфільтрація дорівнює 100 мм/рік, активна і загальна пористість – 0,2 і 0,3 відповідно, коефіцієнт розподілу  $K_d = 1,7$  см<sup>3</sup>/г, об'ємна вага породи 1,6 г/см<sup>3</sup>. Тоді коефіцієнт  $\bar{K}_d$ , обчислений за формулою (8.4), становитиме 10,7. Визначивши швидкість  $v_z$  за формулою (8.5) встановлюємо, що за 50 років фронт міграції просунеться на глибину 0,47 м.

Захищеність підземних вод залежить від наявності сортувального шару на поверхні, сезонних чинників (промерзання поверхні, повінь, посухи), утворення рухливих та небезпечних дочірніх форм, «старіння» твердих частинок радіонуклідів. Міграція найбільш активна в зонах тектонічних порушень (розломів, підвищеної проникності водотривів тощо).

*Особливості міграції <sup>90</sup>Sr, <sup>137</sup>Cs та <sup>241</sup>Am у ґрунтах [1, 40].* Радіонуклід <sup>90</sup>Sr характеризується більшою рухливістю в ґрунтах порівняно з <sup>137</sup>Cs. Поглинання <sup>90</sup>Sr у ґрунтах в основному обумовлено іонним обміном. Значна частина радіонукліду затримується в верхніх горизонтах, причому <sup>90</sup>Sr концентрується значною мірою в ґрунтовому перегнійному прошарку, розташованому під дерниною. У таких ґрунтах, як дерново-підзолисті піщані, перегнійно-торф'янисто-глейові суглинки на піску, чорноземно-лугові опідзолені, вилужений чорнозем, спостерігається деяке збільшення вмісту радіонукліда у верхній частині алювіального горизонту. У засолених ґрунтах також може спостерігатися максимум, пов'язаний з меншою розчинністю сульфату стронцію та його рухливістю. У верхньому горизонті стронцій затримується в сольовій кірці. Концентрування в перегнійному горизонті

пояснюється високим вмістом гумусу, великою ємністю поглинання катіонів та утворенням малорухливих сполук з органічною речовиною в ґрунтах.

Експериментально встановлено, що швидкість міграції  $^{90}\text{Sr}$  зростає зі збільшенням вмісту обмінного кальцію в ґрунті, це явище спостерігається й у польових умовах. Міграція стронцію активізується також зі збільшенням кислотності й вмісту органічної речовини. Взагалі  $^{90}\text{Sr}$  слабо утримується ґрунтами та біотою і найменше – ґрунтовим гумусом. Тому стронцій у зоні аерації рухається з помітною швидкістю.

Рослинність, особливо лісова, відіграє значну роль у міграції  $^{90}\text{Sr}$ . Радіонуклід, затриманий рослинністю після випадань з атмосфери, надходить на поверхню ґрунту з опалим листям і хвоєю. У листяних підстилках вміст  $^{90}\text{Sr}$  поступово падає від верхнього шару до нижнього, а у хвойних – відбувається значне накопичення радіонукліда в нижній гумусовій підстилці.

Радіонуклід  $^{137}\text{Cs}$ , що випав на ґрунт, міцно утримується в верхньому гумусовому шарі. З часом відбуваються його фізико-хімічні перетворення, йде низхідна міграція та його накопичення рослинністю. Для цезію характерно поглинання мінеральною частиною ґрунтів. Елемент входить до кристалічних решіток глинистих мінералів, міцно зв'язуючись з дрібнодисперсною фракцією ґрунту. Експериментально встановлено, що за сім років частка цезію, фіксованого мінеральною частиною ґрунту, збільшилася в сірих лісових ґрунтах у 2,5 рази, дерново-підзолистих – у 4,5, а у чорноземних – у 7 разів і може досягати 80–95 % від валового вмісту елемента в ґрунті. Цезій міцно зв'язується органічними речовинами, утворюючи комплекси, зокрема, гумати і фульвати. Останні характеризуються значно більшою рухливістю. Збільшують рухливість металу водорозчинні органічні речовини, що утворюються при розкладанні рослинності. При міграції виділяють швидку міграцію з дрібнодисперсними частинками й повільну, зумовлену пересуванням водорозчинних форм. У дерново-підзолистих ґрунтах спостерігається тільки повільний перенос, у супіщаних і піщаних – обидва типи з переважанням швидкої міграції.

Сорбція  $^{137}\text{Cs}$  слабо залежить від рН ґрунтового розчину. У разі високого вмісту гумусу  $^{137}\text{Cs}$ , як правило, затримується у верхньому шарі товщиною кілька сантиметрів. Якщо поверхневі шари мають підвищену проникність і низький вміст гумусу,  $^{137}\text{Cs}$  мігрує до нижніх шарів. Мобільність  $^{137}\text{Cs}$  підвищена в деяких торф'яних ґрунтах. Японські дослідники відзначають факти проникнення  $^{137}\text{Cs}$  в породи (не вивітрені базальти) на глибину 3–5 см.

Цезій добре поглинається рослинністю, причому  $^{137}\text{Cs}$  накопичується переважно в надземній фітомасі (до 60 %). Інтенсивне залучення цього елемента в біологічний кругообіг у зоні ЧАЕС зумовлено кислотністю поліських ґрунтів, що сприяли накопиченню металу організмами, і його аналогією з калієм – біохімічно активним елементом, який життєво необхідний рослинам.

Після аварії в зоні ЧАЕС з часом зростає кількість  $^{241}\text{Am}$ , який є дочірнім ізотопом для  $^{241}\text{Pu}$ . Підвищення мобільності америцію в зоні ЧАЕС обумовлено руйнуванням частинок твердого палива й переходом інертних форм радіонукліда в біологічно доступні. Враховуючи великий період напіврозпаду америцію, ці проблеми будуть актуальними для зони ЧАЕС. Так само, як ізотопи плутонію, америцій знаходиться у верхньому шарі ґрунту. На відміну від плутонію, частина рухливих форм  $^{241}\text{Am}$  становить 32 %, тоді як для плутонію – 4 – 15 %.

Співвідношення сумарної активності  $^{241}\text{Am}$  до активності материнського плутонію з кожним роком збільшується. Сучасні рівні забруднення території зони відчуження по  $^{241}\text{Am}$  сягають місцями  $1 \text{ Ки/км}^2$ , при цьому співвідношення між активністю ізотопів Pu і  $^{241}\text{Am}$  у ґрунтах зони відчуження становить 1,5 – 2,5 з переважанням Pu. Вміст  $^{241}\text{Am}$  в рослинній біомасі чорнобильської зони в 10 разів вище ніж вміст Pu, при цьому америцій більше накопичується у вегетативних органах рослин, ніж у коренях.

## **8.2. Забруднення підземних вод при видобутку урану**

*Відвали радіоактивних руд на родовищах урану. Хвостосховища відходів переробки уранових руд. Радіоактивне забруднення внаслідок видобутку урану в Україні.*

Уран та інші природні радіонукліди потрапляють до навколишнього середовища на різних етапах видобутку та виробництва урану:

- з шахт та кар'єрів на родовищах урану у вигляді твердих мінералів та дренажних вод,
- при транспортуванні руди до місць її переробки,
- на гідрометалургійних заводах та комбінатах, що переробляють радіоактивні матеріали.

*Відвали радіоактивних руд на родовищах урану.* На цей час у різних країнах світу відкриті та розробляються родовища із запасами у десятки й сотні тисяч тонн урану. При цьому з уранової руди вилучається лише незначна частина радіонуклідів, переважно уран, і не повністю (до 90 – 95 %), іноді торій та радій. Але практично весь об'єм гірської маси з більшою частиною радіонуклідів, не витягнутих з руди, склався у відвалах або хвостосховищах, часто поблизу місць видобутку, а інші радіоактивні елементи і більшість супутніх мікроелементів залишаються у відвалах. За даними [22, 39], 1 т відвалів перероблених уранових руд містить 230 – 260 г/т рідкоземельних металів, з них 100 г галію, 55 г германію, 20 г скандію.

Хоча промисловий вміст урану в рудах складає 0,02 – 0,03 %, створюване ним випромінювання становить значну небезпеку для живих істот: потужність експозиційної дози (ПЕД) гамма-випромінювання від руди з 0,02% урану, становить близько 200 мкР/год. Навіть так звані позабалансові руди та «порожні» породи з вмістом урану у кілька тисячних процента є небезпечними: на відстані 10 см від їх поверхні потужність еквівалентної дози перевищує 0,1 мЗв/год.

У цих відвалах утворюється радон, під впливом атмосферних опадів вилуговуються природні радіонукліди та нерадіоактивні токсичні елементи, передусім, важкі метали. Уран та радій створюють дуже високий радіаційний фон – до кількох тисяч мкР/год. Наприклад, на місці вилучення урану і торію з Ухтинського родовища (Республіка Комі, Росія) у середині ХХ ст. на поверхні у відвалах залишилося понад 10 тис. тонн шлаків з 10 г радію. Тут виявлено понад 700 ділянок площею від 10 до 10000 м<sup>2</sup> з ПЕД гамма-випромінювання до 2500 мкР/год.

Відвали з довгоживучими радіонуклідами займають значну площу на діючих та покинутих рудниках і кар'єрах і є постійними джерелами локального забруднення місцевості за рахунок вітрової та водної ерозії (рис. 8.1). При вітровій ерозії відбувається здування пилу з поверхні відвалів, а з твердих матеріалів постійно виділяється радон, який переноситься на сотні метрів. Відвали позабалансових руд і порожньої породи піддаються постійному впливу атмосферних опадів, внаслідок чого радіонукліди вилуговуються і у розчиненому вигляді переносяться через зону аерації до ґрунтових вод, потрапляють до гідрографічної мережі, де накопичуються у донних відкладах.

Додатковим джерелом надходження радіонуклідів до навколишнього середовища у місцях видобутку є дренажні води з уранових шахт та руд інших

металів з підвищеною радіоактивністю, наприклад, шахтні води на залізо-уранових родовищах.

Крім того, радіоактивні руди часто транспортувалися залізницею з грубими порушеннями техніки безпеки.

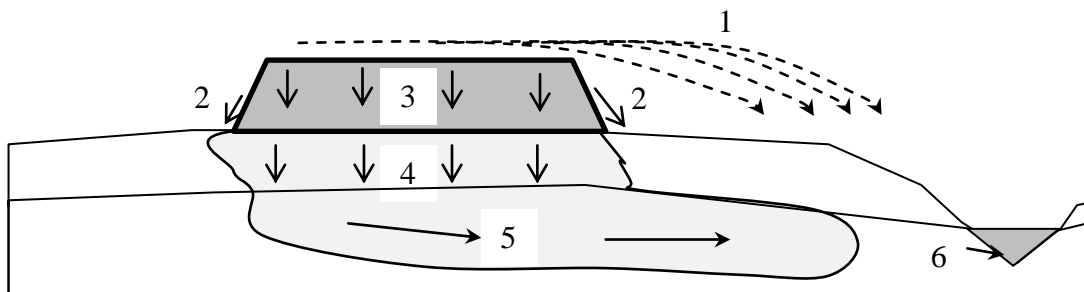


Рис. 8.1. Схема міграції радіоактивних елементів з відвалів: 1 – розсіювання радіоактивного пилу, 2 – змивання радіоактивних частинок з відвалів у ґрунт, 3 – вилуговування радіонуклідів у відвалах, 4 – міграція радіонуклідів у ґрунті, 5 – міграція радіонуклідів у підземних водах, 6 – надходження до поверхневих водотоків та водойм

*Хвостосховища відходів переробки уранових руд.* Наступним етапом уранового виробництва є збагачувальні підприємства і заводи з гідрометалургійної переробки, де головний вид відходів – хвости переробки рудної маси, насичені радіоактивними розчинами.

На уранових збагачувальних фабриках уран відділяється від інших радіоактивних та нерадіоактивних елементів, що містяться в руді. Залишкові матеріали (хвости) складуються у наливних хвостосховищах, які є невід’ємною частиною гідрометалургійного виробництва й одночасно – головним джерелом місцевого забруднення навколишнього середовища радіонуклідами. У підземних водах навколо хвостосховищ з часом утворюються ореоли поширення радіонуклідів.

Суха поверхня хвостосховищ сприяє потраплянню радіоактивних газів до атмосфери. Тому для запобігання викидам радону відходи доцільно тримати під шаром води. Але їх зволожений стан та дощ активізують міграцію радію, частина якого потрапляє до ґрунтових вод. Згідно із стандартами поводження з відходами збагачення дно відстійників необхідно герметизувати й ущільнювати пластиком. Однак навряд чи можна забезпечити герметичність такого екрану

протягом тривалого періоду зберігання відходів з періодом піврозпаду радіонуклідів сотні й десятки тисяч років.

Проблеми з рекультивацією території від відходів уранової промисловості з'явилися ще на початку ХХ ст. Частина цих відходів потрапила у звалища побутових відходів, а потім на деяких з цих місць або поруч з ними стали будувати будинки. Радіоактивні матеріали використовували в будівництві, що призвело до підвищеного фону в помешканнях. Близько багатьох нафтових свердловин, де видобуток проводився вторинними методами, так само є ділянки з підвищеним вмістом  $^{226}\text{Ra}$ .

Радієм забруднюються також ґрунти навколо уранових збагачувальних фабрик. У Північній Америці екологічні стандарти обмежують концентрацію радію не більше ніж 5 пКі/г поблизу поверхні і 15 пКі/г на глибині понад 15 см, при цьому природний вміст радію в ґрунті зазвичай становить 1 – 3 пКі/г.

Додатковим джерелом природних радіонуклідів до навколишнього середовища є відходи виробництва фосфорних добрив, оскільки фосфорити й апатитова руда характеризуються підвищеним вмістом природного урану. Крім того, зола та шлаки ТЕЦ, що працюють на вугіллі, мають суттєво підвищену радіоактивність через більшу концентрацію природних радіонуклідів у органічній речовині природних копалин.

*Радіоактивне забруднення внаслідок видобутку урану в Україні.* Потужний центр переробки уранових руд, рудних концентратів і шлаків на основі Придніпровського хімічного заводу (ПХЗ) функціонував у м. Дніпродзержинську Дніпропетровської області з 1949 по 1991 р. [27, 37]. На території заводу проводилися екстракція та афінаж (різновид рафінування) уранового концентрату вилуговуванням і екстракцією солянокислими та азотнокислими розчинами. Залишки гідрометалургійного виробництва урану нейтралізували лужними і крейдяними розчинами, а потім транспортували у вигляді пульпи по трубопроводах і складували у розташованих поблизу глиняних кар'єрах і ярах на схилах і терасі р. Дніпро. Більшість з цих сховищ як засоби інженерної підготовки мали побудовані дамби, але дно й борти не були підготовлені для тривалого та безпечного зберігання радіоактивних матеріалів.

За період роботи на території підприємства та за його межами було утворено шість хвостосховищ відходів переробки уранових руд і три сховища відходів уранового виробництва. У хвостосховищах накопичено близько 42 млн тонн відходів загальною активністю близько  $2,7 \cdot 10^{15}$  Бк. Крім того, у сховищах відходів уранового виробництва також складувалося виробниче й будівельне сміття, забруднене обладнання та інші відходи масою до

0,2 млн тонн із загальною активністю  $4,4 \cdot 10^{14}$  Бк. Середня питома активність відходів становить 2,2 МБк/кг. Загальна площа хвостосховищ перевищує 243 га, а сховищ відходів уранового виробництва становить близько 25 га.

Більшість цих хвостосховищ розташована на території м. Дніпродзержинська у заплаві р. Дніпро і недостатньо захищена від атмосферних опадів. Радіоактивні речовини з інфільтрацією потрапляють до підземних вод і з підземним стоком – частково до р. Дніпро.

За даними НАН України та експертів МАГАТЕ, хімічний та радіонуклідний склад води характеризується значним перевищенням фонових показників, властивих природним водам. Допустимі концентрації більшості хімічних компонентів і всіх радіонуклідів перевищені у 10 – 20 разів, що свідчить про вилуговування хімічних сполук і радіонуклідів з твердих відходів та їх подальшу водну міграцію. У районі хвостосховищ утворилися ореоли забруднення підземних вод, що сягає рік Коноплянка і Дніпро, де відбувається розвантаження забруднених підземних вод у поверхневі води. Екологічна ситуація погіршується, оскільки зростає рівень ґрунтових вод, а дамби хвостосховищ втрачають утримуючу здатність.

### **8.3. Радіоактивні відходи**

*Джерела радіоактивних відходів. Тверді, рідкі та газоподібні радіоактивні відходи.*

*Джерелами радіоактивних відходів (РАВ) є радіоактивні руди, шлами, стічні води та відпрацьоване ядерне паливо АЕС і дослідницьких та військових атомних реакторів, медична та вимірювальна техніка з відпрацьованими джерелами випромінювання, викиди комбінатів з виробництва збройового плутонію та вторинної переробки відпрацьованого ядерного палива. При нормальній роботі АЕС у повітря викидаються інертні радіоактивні гази – газоподібні РАВ.*

Усі відходи за агрегатним станом поділяються на тверді, рідкі та газоподібні [33].

*Тверді радіоактивні відходи (ТРВ) включають такі компоненти:*

- 1) відходи переробки уранових руд;
- 2) інструменти, матеріали;
- 3) будівельне сміття;



- 4) спецодяг;
- 5) відпрацьовані джерела іонізуючого випромінювання;
- 6) відходи АЕС (графітові стрижні, тепловиділяючі елементи – твели).

Як правило, ці речовини та матеріали неможливо використати та дезактивувати, тобто радіонукліди міцно фіксуються у твердій фазі. До ТРВ відносять речовини з питомою активністю понад 74 кБк/кг (для  $\beta$ -розпаду), понад 7,4 кБк/кг (для  $\alpha$ -розпаду), понад  $1 \cdot 10^{-7}$  г-екв Ra/кг (для  $\gamma$ -розпаду).

Високоактивні ТРВ при зберіганні виділяють теплову енергію, причому температура відходів може сягати 300 – 400 °С.

Частина ТРВ утворюється переведенням рідких відходів у твердий стан (отвердженням) шляхом цементування, оскловування, бітумізацією з метою зв'язати радіонукліди в неактивній формі. Але при контакті з водою можливе вилуговування.

Цементация є менш ефективною і використовується переважно для низькоактивних відходів активністю до  $10^6$  кБк/кг через порівняно високу швидкість вилуговування, порядку  $10^{-2}$  г/(см<sup>2</sup>добу). Бітумізація дає значно менші швидкості вилуговування – від  $10^{-6}$  до  $10^{-4}$  г/(см<sup>2</sup>добу). Мінімальну швидкість вилуговування, близько  $10^{-7}$  г/(см<sup>2</sup>добу), забезпечує оскловування.

*Рідкі радіоактивні відходи (РРВ)* включають продуктивні розчини уранодобувних підприємств, стічні води АЕС та підприємств, що використовують джерела випромінювання.

З активністю до 0,37 МБк/л РРВ класифікують як низькоактивні, від 0,37 МБк/л до 37 ГБк/л – середньоактивні, понад 37 ГБк/л – високоактивні. Зазвичай активність відходів змінюється в діапазоні 50 кБк/л – 500 МБк/л [41].

Рідкі відходи часто містять солі, органічні домішки і поверхнево активні речовини, оскільки останні часто використовуються при дезактивації радіоактивно забруднених матеріалів. Приблизний склад рідких відходів включає <sup>90</sup>Sr у концентрації близько  $5 \cdot 10^{-8}$  Кі/л, <sup>137</sup>Cs –  $2,8 \cdot 10^{-8}$  Кі/л, <sup>144</sup>Ce –  $2 \cdot 10^{-7}$  Кі/л, <sup>95</sup>Zr, <sup>95</sup>Nb, <sup>106</sup>Ru, <sup>131</sup>I –  $10^{-7}$  Кі/л. Для зниження активності рідких відходів за рахунок розпаду короткоживучих ізотопів їх витримують певний час у залізобетонних або сталевих ємностях, контейнерах, цистернах.

*Газоподібні відходи* утворюються переважно при роботі АЕС і включають гази, аерозолі, дими і тумани, що містять у своєму складі радіонукліди: інертні радіоактивні гази, зокрема, аргон та криптон, також <sup>3</sup>H, <sup>14</sup>C, аерозольні викиди <sup>89</sup>Sr, <sup>90</sup>Sr, <sup>134</sup>Cs, <sup>137</sup>Cs та інші. При нормальній роботі кількість викидів не призводить до збільшення радіоактивного фону.

#### 8.4. Підземна міграція радіонуклідів зі сховищ радіоактивних відходів

*Способи приповерхневого розміщення РАВ. Шляхи міграції радіонуклідів до підземних вод. Принципи безпечної локалізації РАВ у геологічному середовищі. Мультибар'єрний захист при похованні радіоактивних відходів.*

*Способи приповерхневого розміщення РАВ.* Основним способом зберігання РАВ, що утворюються в енергетиці й промисловості, є тимчасове приповерхнєве розміщення відходів у залізобетонних та сталевих конструкціях і ємностях (контейнерах) (рис. 8.2). Можливе використання залізобетонних ємностей, облицьованих сталлю, або сталевих ємностей з товщиною стінок не менш 5 мм.

Одна з технологій тимчасового захоронення передбачає, що після завантаження ємностей вони перекривалися зверху залізобетонними плитами товщиною до 0,4 м (рис. 8.2, б). При тривалому зберіганні можливе осідання ґрунту поблизу ємностей, крім того, на їх дні утворюється монолітний шар осаду з переважанням жорстких солей, де також концентруються радіонукліди і через корозію можливе їх витікання.

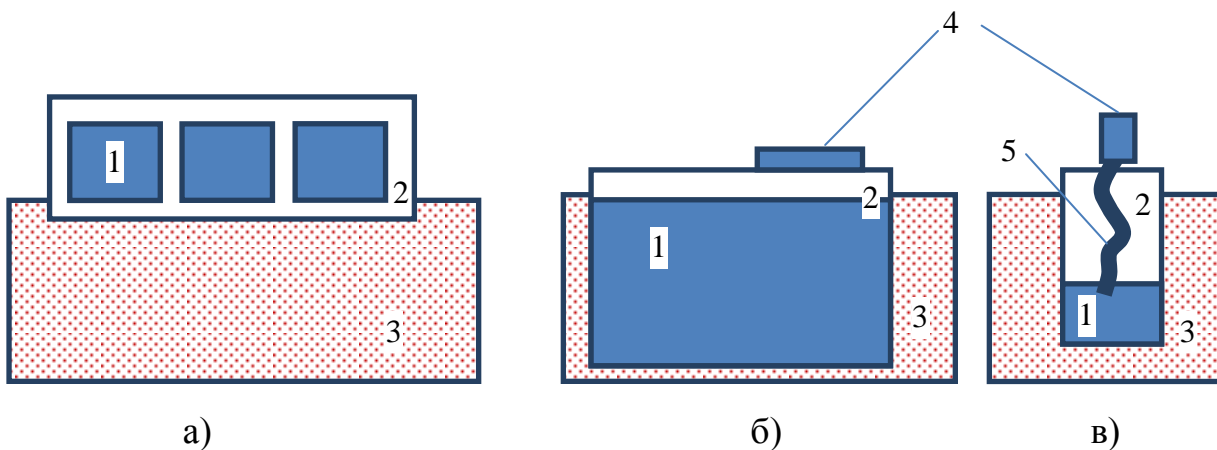


Рис. 8.2. Схеми приповерхневих сховищ РАВ: а) тверді відходи в контейнерах у наземному сховищі, б) рідкі відходи, в) тверді відходи; 1 – РАВ, 2 – залізобетонні перекриття та металеві стінки, 3 – ґрунт, 4 – отвори для подачі та герметизації ємностей, 5 – канал подачі РАВ до сховищ

На даний час більшість високоактивних РАВ на АЕС тимчасово зберігається у контейнерах, розміщених у залізобетонних конструкціях [26, 30, 33]. Вимоги до механічної стійкості контейнерів, їх герметичності, зручності

транспортування та зниження радіоактивного випромінювання залежать від типу й активності відходів, що зберігаються. Розробляються та використовуються контейнери з терміном експлуатації до та понад 30 років, здатні зберігати матеріали з коротко- або довгоживучими радіонуклідами. На АЕС України використовують контейнери ємністю переважно від 0,2 до 4 м<sup>3</sup>, іноді – з більшим об'ємом.

Після аварії на ЧАЕС у зоні відчуження терміново була створена ціла низка так званих пунктів тимчасової локалізації радіоактивних відходів (ПТЛРВ) та пунктів захоронення радіоактивних відходів (ПЗРВ). Особливо небезпечними є ПТЛРВ, які розташовані у заплаві р. Прип'ять і включають захоронення траншейного типу, значна частина яких затоплюється у весняну повінь. Сумарна активність РАВ у ПТЛРВ у зоні ЧАЕС після аварії оцінювалася в  $5 \cdot 10^5$  Кі. Через постійний контакт з ґрунтовими водами та атмосферні опади відбувається вилуговування радіонуклідів з твердої фази відходів і їх підземна водна міграція вбік р. Прип'ять та у нижні водоносні горизонти [13]. Разом з цим підземний стік до ріки на цій ділянці є незначним порівняно з витратою р. Прип'ять, тому суттєвого збільшення радіоактивності річкових вод за рахунок підземного стоку не відбулося.

Остаточне захоронення твердих чи стверділих високоактивних РАВ за рекомендаціями МАГАТЕ має проводитися в глибоких геологічних формаціях, переважно в гранітних і базальтових породах на глибині понад 500 м або у соляних шахтах [9].

*Шляхи міграції радіонуклідів до підземних вод.* Міграція радіонуклідів до підземних вод можлива [8]:

1) через непорушену поверхню землі з атмосферними опадами, періодично з атмосферними опадами, таненням снігу тощо;

2) з забруднених відкритих родовищ:

а) у районах із закарстованими породами шляхом поглинання в порожнини та тріщини,

б) під час повеней, коли затоплюються низини, пойми на значних територіях, алювіальні відклади заплавних терас,

в) при організованому зберіганні РАВ у природних і штучних басейнах;

3) у разі безпосереднього закачування рідких РАВ до глибоких колекторів – водоносних горизонтів,

4) через гірничі виробки,

5) при підземних ядерних вибухах.

Основним шляхом надходження радіоактивних речовин до ґрунтів є витікання через дно та борта ємностей на поверхні та з поверхневих тимчасових сховищ РАВ, із хвостосховищ РАВ, радіоактивні випадіння на ґрунт після аварій на АЕС. Значна частина ємностей, де зберігаються РАВ, була створена в 1970 – 1980-х рр., коли питанням радіаційної безпеки не приділялося відповідної уваги. Зараз будуються більш сучасні та герметичні сховища.

*Принципи безпечної локалізації РАВ у геологічному середовищі* базуються на рекомендаціях МАГАТЕ [9]. Вони включають такі умови:

1. Остаточне розміщення РАВ має бути проведено в геологічних формаціях з низькою гідравлічною проникністю та необхідним тепло-відведенням на значних глибинах.

2. Могильник повинен бути огороженим буферною зоною з інженерними бар'єрами, де вміст радіонуклідів має бути нижче за гранично-допустимі концентрації.

3. Має здійснюватися постійний контроль за станом РАВ, інженерних бар'єрів та вмістом радіонуклідів у ґрунтах, воді та повітрі в межах буферної зони (так званої «зони відчуження»).

До ділянок для геологічного захоронення РАВ висуваються такі вимоги:

- проникність до 1 мілідарсі, що приблизно відповідає коефіцієнту фільтрації 0,001 м/добу;
- віддаленість місць будівництва на  $3 \cdot R_{C33}$  – три відстані зони санітарного захисту від розташування могильника;
- розміщення поза межами зони активного водообміну;
- вилучення цієї території з господарського використання на весь час розміщення РАВ;
- розміщення не ближче ніж  $3 \cdot R_{C33}$  (три відстані зони санітарного захисту) від зон тектонічних порушень, розломів, підвищеної тріщинуватості;
- обов'язковий моніторинг території сховища, особливо за тиском і концентраціями радіонуклідів;
- стабільний стан відходів.

*Мультибар'єрний захист при похованні радіоактивних відходів.* У багатьох країнах з розвинутою атомною енергетикою, що стикаються з проблемами захоронення високоактивних ядерних відходів, за рекомендаціями МАГАТЕ прийнята мультибар'єрна концепція ізоляції РАВ у геологічному середовищі. Її принципова схема подана на рис. 8.3.

За цією концепцією виділяються штучні бар'єри в «ближній» зоні захоронення та природні бар'єри в його «дальній» зоні. Штучні бар'єри

призначені для максимальної ізоляції РАВ і зменшення ризиків потрапляння небезпечних радіонуклідів до навколишнього середовища. Природні бар'єри мають максимально уповільнити можливу водну міграцію радіонуклідів до зон санітарної охорони в підземних водах, зокрема, до водозаборів, поверхневих водойм, місць проживання населення.



Рис. 8.3. Принципова схема мультибар'єрної концепції ізоляції РАВ у геологічному середовищі

### ***Питання для самоконтролю***

1. Охарактеризуйте масштаби та інтенсивність радіоактивного забруднення поверхневих вод після аварії на Чорнобильській АЕС.
2. Охарактеризуйте масштаби та інтенсивність радіоактивного забруднення підземних вод після аварії на Чорнобильській АЕС.
3. Охарактеризуйте масштаби та інтенсивність радіоактивного забруднення навколишнього середовища і природних вод після аварії на АЕС «Фукусіма-1».
4. Як визначаються параметри вилуговування та міграції радіонуклідів у верхньому шарі ґрунту після випадань з атмосфери?
5. Які особливості має міграція  $^{90}\text{Sr}$  у верхніх шарах ґрунту?
6. Які особливості має міграція  $^{137}\text{Cs}$  у верхніх шарах ґрунту?
7. Які особливості має міграція  $^{241}\text{Am}$  і  $^{241}\text{Pu}$  у верхніх шарах ґрунту?
8. Охарактеризуйте масштаб та особливості забруднення підземних вод біля місць видобутку урану.
9. Охарактеризуйте масштаб та особливості забруднення підземних вод біля хвостосховищ переробки радіоактивних руд.
10. Який склад та активність мають тверді радіоактивні відходи?
11. Який склад та активність мають рідкі радіоактивні відходи?
12. Охарактеризуйте шляхи міграції радіонуклідів до водоносних горизонтів.
13. Які вимоги ставляться до місць остаточного розміщення радіоактивних відходів у геологічному середовищі?
14. Які бар'єри на шляху поширення радіоактивних речовин є штучними, а які – природними?

## 9. МЕТОДИ ВИЗНАЧЕННЯ РАДІОАКТИВНИХ ЕЛЕМЕНТІВ У ПРИРОДНИХ ВОДАХ

### 9.1. Визначення вмісту урану спектрофотометричним та люмінесцентним методами

*Вагові та радіометричні методи. Спектрофотометрія. Люмінесценція.*

*Вагові та радіометричні методи.* Для визначення вмісту радіоактивних елементів у воді використовуються вагові та радіометричні методи. Перші використовують для вимірювань маси елемента в розчині, за допомогою других вимірюють активність продуктів розпаду.

До вагових належать люмінесцентний та колориметричний методи; зараз також дуже поширений спектрофотометричний метод. Ці методи застосовуються переважно для визначення вмісту урану [6]. Радіометричний метод, що заснований на вимірах вмісту радону як продукту розпаду радію, є більш придатним для визначення вмісту радію, зважаючи на його зазвичай малі концентрації.

Вагові методи потребують спеціальної підготовки, яка включає адсорбцію, десорбцію содою або іншими гідрокарбонатами ( $\text{KHCO}_3$ ), розчинення кислотою, що забезпечує присутність у розчині специфічних речовин, які дають інтенсивну кольорову реакцію. Атомно-адсорбційні методи засновані на визначенні атомної маси й мають високу точність, але вони більш витратні, їх доцільно використовувати для трансуранових елементів.

Точність методів визначається за відхиленням від еталонних значень, отриманих за результатами деяких проб та відносного стандартного відхилення (коефіцієнта варіації). Кожен метод має свою чутливість, яка визначається як мінімальна концентрація, починаючи з якої можна надійно розпізнати радіонуклід та встановити його вміст. Діапазон методу визначається як інтервал, у межах якого можливо достовірно виміряти концентрацію певного елемента.

Всі методи вимірювання умовно поділяють на польові та лабораторні, останні зазвичай забезпечують вищу точність, але потребують більше часу та матеріалів.

*Спектрофотометрія* – це фізико-хімічний метод дослідження, який заснований на вимірюванні спектрів випромінювання в ультрафіолетовому (200 – 400 нм), видимому (400 – 760 нм) та інфрачервоному діапазонах (понад

760 нм). Спектрофотометрія урану заснована на прямій пропорційності між частиною поглиненого світла в розчині, що містить уран, та його концентрацією, що справедливо у певному діапазоні випромінювання.

Всі спектрофотометри містять такі елементи (рис. 9.1):

- джерело світла,
- оптичні елементи (сфера, дзеркала, лінзи, світловоди),
- пристрій розкладання відбитого від зразка світла у спектр,
- фотоелектричний приймач.

Ці елементи об'єднані оптичною схемою, що визначає характер проходження світла від джерела до приймача.

Принцип роботи спектрофотометра, який працює з відображеним світлом і дозволяє вимірювати колір непрозорих матеріалів полягає у такому:

1. Джерело світла висвітлює вимірюване поле.

2. Фотодетектор оцінює кількість відбитого світла в певних довжинах хвиль.

3. У результаті виходить крива коефіцієнта відбиття, яка є єдиною для даного кольору, що подібно до відбитку пальця, який є унікальним.

4. По цій кривій обчислюються всі необхідні параметри і концентрація елемента в розчині.

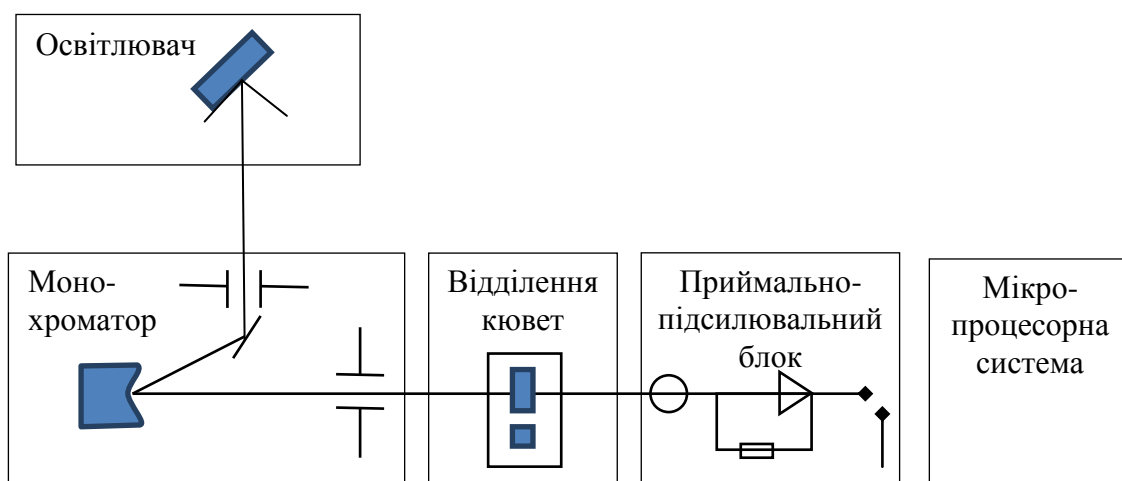


Рис. 9.1. Принципова схема спектрофотометра

Всі спектрофотометри прийнято підрозділяти на однопроменеві та двопроменеві. Щоб виміряти коефіцієнт відбиття, необхідно виміряти як падаюче, так і відбите від зразка світло.



*Люмінесценція* – це світіння холодних тіл після припинення їх освітлення при проходженні крізь нього світлової або променевої енергії. Це явище пов'язане з переходом електронів на різні рівні в атомі речовини. Спектр вторинного світіння (або люмінесценції) зміщується у бік більшої довжини хвиль  $\lambda$  (рис. 9.2). За розміром зміщення  $\Delta\lambda$  можна визначити концентрацію речовини, як описано в [18].

Інтенсивність флюоресценції  $I_{фл}$  пропорційна числу квантів вторинного випромінювання. Залежність концентрації від інтенсивності люмінесценції нелінійна (рис. 9.3), але при досить малих концентраціях речовини в розчині, інтенсивність люмінесценції лінійно пропорційна концентрації речовини, яка флюоресцує. Отже, цей метод застосовний для розчинів з малою концентрацією урану.

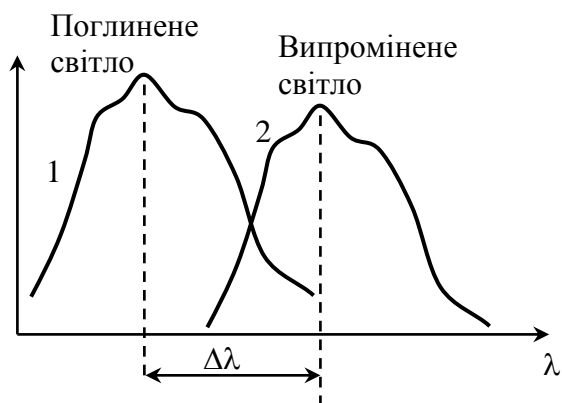


Рис. 9.2. Спектри поглинання (1) і флюоресценції (2)

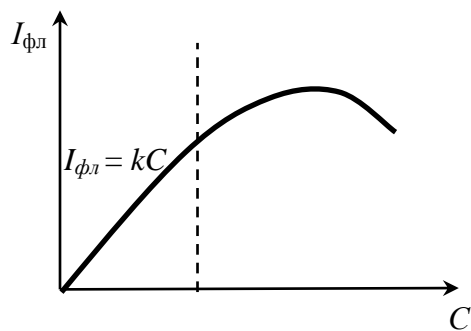


Рис. 9.3. Залежність інтенсивності флюоресценції від концентрації речовини

Особливо добре цей метод підходить для чотиривалентного урану, при цьому використовується ефект фотолюмінесценції (припинення світіння через проміжок часу  $10^{-7} - 10^{-6}$  с). Добре реагують на світіння  $UO_2(NO_3)_2$  та  $UO_2SO_4$ , у водних розчинах яких присутні йони уранілу  $UO_2^{2+}$ ; хороші результати для розчинів з аніонами  $NO_3^-$ ,  $SO_4^{2-}$ ,  $Cl^-$ ,  $HCO_3^-$ . З катіонами та домішками у розчині метод функціонує гірше.

Люмінесцентний метод має високу чутливість – до  $10^{-10}$  г/л, завдяки чому він широко використовується при визначенні урану в зразках мінералів, руд, природних вод та технологічних об'єктів з малим вмістом.

На точність методу впливає довжина хвилі випромінювання домішки. Світло генерується променем лазера. Діапазон вимірювання  $10^{-9} - 10^{-7}$  г/л, час

на визначення – до 1 хв. Похибка складає 20 %, але її можна зменшити до 3 – 5 %.

## 9.2. Визначення вмісту радону та радію

*Еманаційний метод. Взяття проб води. Визначення вмісту радону радіометричним методом. Визначення кількості радону в пробах газу і рідини. Визначення кількості радію.*

*Еманаційний метод.* Для визначення вмісту радіоактивних газів у зразках води використовують еманаційні та трекові методи. Еманаційний метод застосовується при кількісному визначенні радону  $^{222}\text{Rn}$ , торону  $^{220}\text{Rn}$  і актинону  $^{219}\text{Rn}$  та їх материнських ізотопів Ra, Th і Ac. Для цього необхідно, щоб два радіонукліди (наприклад, радій і радон) перебували в радіоактивній рівновазі або їх кількісне співвідношення в зразку було добре відомо. Тоді шляхом виміру активності інертного газу можна розрахувати вміст материнського ізотопу в дослідженому зразку. Метод краще застосовний до аналізу зразків з низькою активністю, для яких гамма-радіометрія не дає бажаних результатів. Еманаційний метод характеризується високою чутливістю і відносно хорошою надійністю.

Першим етапом вимірювання є правильне взяття зразків води.

*Взяття проб води.* Для визначення концентрації радону у воді джерела необхідно відбирати пробу якомога ближче до місця виходу її на поверхню землі [2]. Слід зважати на те, що радон легко виділяється з води при її контакті з повітрям. Завжди необхідно відбирати незастояну воду, тому бажано, якщо можна, попередньо її відкачати. Кращим способом відбору є зтягування води в попередньо відкочені, герметично закриті скляні або металеві посудини. Ополіскування посудин досліджуваною водою не допускається, оскільки радон, який виділився при цьому, може частково залишитися в посудині, що спотворить результати вимірювання. Радон поглинається гумою, тому гумова трубка, по якій вода засмоктується, має бути по змозі короткою. Замість гумових трубок краще використовувати скляні або добре очищені металеві трубки, на яких радон практично не адсорбується.

Набираючи воду з газованого джерела, необхідно стежити за тим, щоб у посудину не потрапили пухирці газу, оскільки радіоактивність газу, як правило, більше радіоактивності води. Щоб уникнути цього, рекомендується зтягувати

воду в посудину через тонко відтягнуту скляну трубку із загнутим догори кінцем. Необхідно набирати воду до самого верху пляшки, потім замінити пробку зі скляними трубками звичайною корковою пробкою. Кількість досліджуваної води залежно від концентрації радону і методів вимірювання коливається від 100 мл до 2 л. Час відбору проби має записуватися на етикетці.

*Визначення вмісту радону радіометричним методом* [6]. Радон можна перевести у камеру детектора двома способами: циркуляційним і вакуумним. Найкращим способом є вакуумний, оскільки при цьому весь радон потрапляє в еманційну камеру, що забезпечує більшу точність вимірювань. Застосування вакуумного способу можливо лише за наявності герметичних камер і для проби невеликого об'єму. Якщо застосовується циркуляційний метод, то попередньо з камери відкачується частина повітря з таким розрахунком, щоб можна було потім зрівняти тиск у ній з атмосферним. Після того як переведення радону закінчено, записують час і вимірюють кількість радону, введеного до камери.

Щоб визначити концентрацію радону в досліджуваному джерелі  $C_0$  (Ки/л), потрібно ввести поправку на розпад радону за час, що минув з моменту відбору проби з джерела  $t_1$  до моменту введення радону з проби в еманційну камеру  $t_2$ , тобто

$$C_0 = \frac{C}{\exp(-\lambda(t_2 - t_1))} \cdot \frac{1000}{V} \cdot \frac{Ki}{л},$$

де  $C$  – кількість радону, введена до еманційної камери з об'єму проби  $V$ , см<sup>3</sup>;  $(t_1 - t_2)$  – час, що пройшов з моменту вимірювання проби води, хв.

Техніка вимірювання полягає в тому, що радон, який виділяється з досліджуваної проби, уводиться всередину іонізаційної камери вакуумним методом. У даний час замість іонізаційної камери частіше використовується комірка Лукаса (рис. 9.4), яка являє собою вакуумну скляну колбу, покриту зсередини сцинтилятором – речовиною, яка має здатність випромінювати світло при поглинанні іонізуючого випромінювання. Вилучення радону в барботері (рис. 9.5) сягає 99,1 %.

*Визначення кількості радону в пробах газу і рідини.* Визначення радону зазвичай проводять шляхом порівняння активності проби й еталона. У цьому випадку дотримуються умови еквівалентності вимірювання проби й еталона. Концентрацію радону при вакуумному способі введення радону в камеру розраховують за формулою:

$$C_0 = \frac{Q_{Ra}(1 - \exp^{-\lambda_{Rn}t})}{V} \frac{(I_s - I_{f1})}{(I_e - I_{f2})},$$

де  $Q_{Ra}$  – вміст (кількість) радію в еталоні (еталоном є розчин солі радію);  $\lambda_{Rn}$  – константа розпаду радону;  $t$  – час накопичення радону з радію в еталоні;  $I_e$  і  $I_s$  – іонізаційний струм від еталона та проби відповідно;  $I_{f1}$  – середньоарифметичне значення натурального розсіювання перед вимірюванням проби і після нього;  $I_{f2}$  – середньоарифметичне значення натурального розсіювання перед вимірюванням еталона і після нього;  $V$  – об'єм узятій рідини або еманційної камери.

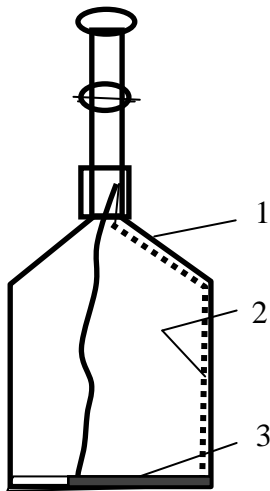


Рис. 9.4. Комірка Лукаса:  
1 – стінки камери (скло або метал),  
2 – сцинтилятор, 3 – кварцове вікно

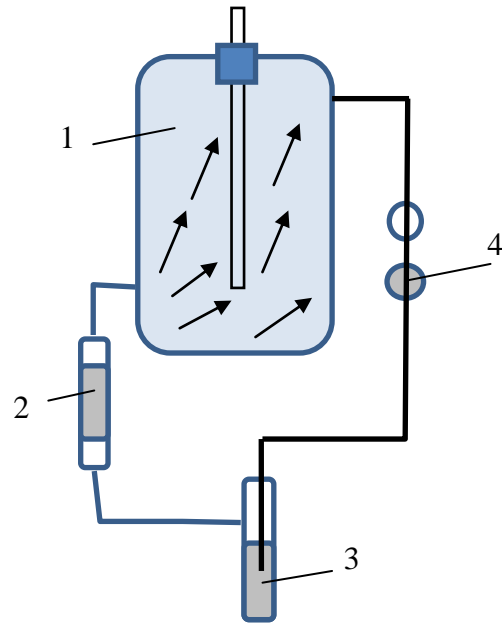


Рис. 9.5. Схема введення радону в камеру вакуумним способом:  
1 – камера; 2 – осушувач ( $\text{CaCl}_2$ );  
3 – барботер; 4 – затискачі

*Визначення кількості радію.* Попередньо слід відділити  $^{226}\text{Ra}$  від інших ізотопів ( $^{223}\text{Ra}$ ,  $^{224}\text{Ra}$ ,  $^{225}\text{Ra}$ ,  $^{228}\text{Ra}$ ). Далі досліджувана проба переводиться в розчин, який наливається в звичайну промивалку. Після видалення наявного радону промивалка запаюється, при визначенні вмісту радію у воді операція переведення в розчин виключається. При низькому вмісті радію проводиться його концентрування методом упарювання.

Кількість радону  $Q_{Rn}$ , що накопичується за рахунок розпаду радію, визначається із співвідношення

$$Q_{Rn} = Q_{Ra} (1 - \exp^{-\lambda_{Rn} t}),$$

де  $Q_{Ra}$  – кількість радію;  $t$  – час накопичення радону з радію. Після накопичення радону протягом кількох днів він переводиться в еманційну камеру, і кількість радію визначається за формулою:

$$Q_{Ra} = \frac{jI}{1 - e^{-\lambda_{Rn}t_s}},$$

де  $I$  – іонізуючий струм у камері, поділів/хв;  $j$  – ціна поділки приладу в одиницях кюрі;  $t_s$  – час накопичення радону в пробі.

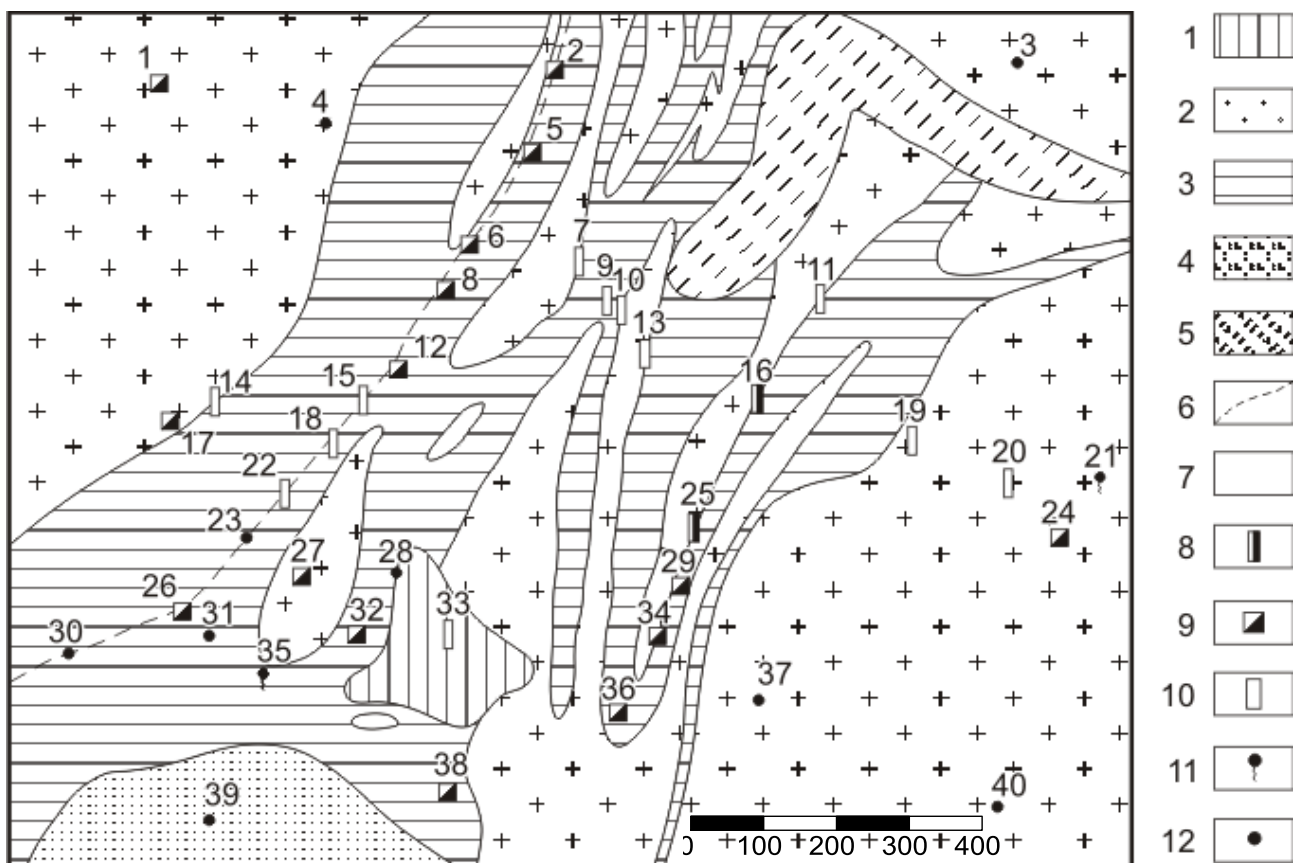
### ***Питання для самоконтролю***

1. У чому полягають особливості вагових методів визначення вмісту радіоактивних елементів? У яких випадках вони застосовуються?
2. Якими параметрами характеризуються методи вимірювання вмісту радіонуклідів?
3. Який основний принцип роботи спектрофотометра?
4. У чому полягає явище люмінесценції?
5. Охарактеризуйте особливості визначення вмісту урану люмінесцентним методом.
6. У чому полягають особливості радіометричних методів? У яких випадках вони застосовуються?
7. Як слід відбирати проби води для визначення вмісту радію або радону?
8. Як визначається вміст радону в пробі води?
9. Як визначається вміст радію в пробі води?

## 10. ЛАБОРАТОРНІ РОБОТИ

### 10.1. Побудова карт поширення радіоактивних елементів у підземних водах

*Опис процесу.* В районі розташування родовища радіоактивних руд сформувалися ореоли розсіювання радіоактивних елементів. Для уточнення контурів цих ореолів була проведена радіогідрогеохімічна зйомка, у результаті якої відібрані проби води для аналізу на вміст у них урану, радію та радону. Фрагмент результатів аналізів наведений у табл. 10.1, а карта розташування пунктів водовідбору та річок – на рис. 10.1.



Умовні позначення: 1 – «залізний капелюх», 2 – трахіліпарити, 3 – обілені трахіліпарити, 4 – піщанки дрібнозернисті глинисті слюдисті, 5 – аргіліти освітлені, 6 – тектонічні тріщини, 7 – рудні тіла, 8 – розчищення, 9 – шурфи, 10 – штольні, 11 – джерела, 12 – свердловини

Рис. 10.1. Фрагмент карти результатів радіогідрогеохімічної зйомки

Концентрація  $C$  радіоактивних елементів у підземних водах  
за даними радіогідрогеохімічної зйомки в окремих свердловинах

Номер виробки	Тип виробки	$C_U$ , г/л	$C_{Ra}$ , г/л	$C_{Rn}$ , еман
1	Шурф	$1,5 \cdot 10^{-7}$	$5 \cdot 10^{-12}$	24
2	Свердловина	$7,5 \cdot 10^{-9}$	$7,5 \cdot 10^{-13}$	27
3	Шурф	$7,1 \cdot 10^{-7}$	$1,2 \cdot 10^{-12}$	41
4	Свердловина	$1,2 \cdot 10^{-7}$	$3,7 \cdot 10^{-12}$	32
5	Шурф	$4,5 \cdot 10^{-7}$	$4,2 \cdot 10^{-12}$	43
6	Шурф	$4 \cdot 10^{-7}$	$3,5 \cdot 10^{-12}$	34

*Мета роботи.* В межах досліджуваної території необхідно:

- 1) визначити аномальний вміст радіоактивних елементів у підземних водах,
- 2) побудувати карту поширення підземних радіоактивних вод;
- 3) зробити висновок щодо джерел збагачення підземних вод.

*Відомості з теорії* [20]. Радіогідрогеологічна карта відтворює особливості поширення підземних радіоактивних вод згідно з даними фактичного матеріалу, зібраного при проведенні радіогідрогеохімічної зйомки.

Мета радіогідрогеохімічного методу полягає у відборі та аналізі зразків поверхневих або підземних вод на наявність радіоактивних елементів та елементів-супутників уранового зрудніння та у встановленні закономірностей розповсюдження ореолів розсіювання.

Зразки води відбираються рівномірно на всій території досліджуваного району. Кількість точок відбору залежить від масштабу радіогідрогеохімічних зйомок, складності геолого-гідрогеологічної будови району. З кожного водопункту відбирається зразок на уран (об'єм зразка не менше 0,3 л), радон (об'єм зразка не менше 0,1 л) та вибірково на радій (об'єм зразка не менше 1 л).

На радіогідрогеологічну карту наноситься фактичний матеріал із зазначенням дебіту, температури води, глибини залягання рівня підземних вод у водопунктах, дати випробувань, а також вмісту радіоактивних елементів.

Інтерпретація радіогідрогеологічних даних виконується за принципом аномальності. Його суть полягає в тому, що при оцінюванні враховується вміст

радіоактивних елементів у водах, підвищений по відношенню до природного радіогідрогеохімічного фону.

Природний радіогідрогеохімічний фон являє собою вміст певного елемента в підземних водах, що поширений у нерудоносних породах. Природний фон має нижню  $ПФ_{\text{нм}}$  та верхню  $ПФ_{\text{вм}}$  межі, а також середнє значення  $ПФ_{\text{сз}}$ . Він визначається для кожного істотно відмінного типу порід та для кожної території і помітно відрізняється за кліматичними умовами. Природний фон встановлюється для кожної гідрогеохімічної зони, для одного року чи навіть сезону.

Верхню межу природного фону слід визначати без урахування джерел з умістом урану понад  $5 \cdot 10^{-5}$  г/л, радію – понад  $1 \cdot 10^{-11}$  г/л, радону – понад 50 еман. Після встановлення природного фону виділяють джерела з аномально високим умістом урану, радію та радону. Ступінь аномальності таких джерел у кожному районі різниться залежно від типу руд та складу порід.

Аномальними за вмістом урану є води, в яких уміст урану на порядок перевищує середнє значення природного фону, при цьому аномально високий вміст урану має перевищувати його верхню межу  $ПФ_{\text{вм}}$  мінімум на порядок. Якщо радіоактивні води досить розбавлені, то аномальними можна вважати такі, в яких уміст урану на половину порядку перевищує  $ПФ_{\text{сз}}$ .

Аномальними за вмістом радію вважаються води, у яких вміст радію на порядок перевищує середнє значення природного фону  $ПФ_{\text{сз}}$ . Оскільки радій швидко сорбується мінералами руд та порід, слід звертати увагу на джерела, в яких уміст радію на половину порядку перевищує середнє значення природного фону за умови, якщо в них визначено підвищені концентрації інших радіоактивних елементів.

Аномальними водами за вмістом радону можна вважати такі, у яких його концентрація перевищує подвійний природний фон, при цьому її величина сильно відрізняється від максимального показника  $ПФ_{\text{вм}}$ . При низькому фоні аномальними доцільно вважати води, у яких вміст Rn на 30 – 40 еман перевищує середнє значення  $ПФ_{\text{сз}}$ .

*Вихідні дані для розрахунків* у вигляді карт фактичного матеріалу та результатів аналізів проб води на вміст U, Ra та Rn надаються викладачем.

#### *Порядок виконання*

1. Описати геолого-геоморфологічну будову та гідрогеологічні умови досліджуваної ділянки з метою виділення зон для розрахунку природного радіоактивного фону.



2. Засобами комп'ютерної графіки (зокрема програми Surfer) побудувати карту розташування пунктів водовідбору та річок. Позначити біля кожного водопункту вміст радіоактивних елементів у підземних водах відповідним маркером або кольором згідно з результатами аналізу, розбиваючи увесь діапазон концентрацій на 4 – 5 інтервалів.

3. У межах виділених зон визначити верхню і нижню межі природного фону для урану, радію, радону та розрахувати його середнє значення. Відповідно до отриманих даних визначити аномальний вміст радіоактивних елементів для кожної зони.

4. На карті оконтурити ділянки з аномальним умістом урану, радію, радону. Позначити перспективні ділянки для проведення подальших досліджень з метою уточнення контурів рудних тіл.

5. Зробити висновок щодо умов формування ореолів розсіювання на досліджуваній території.

*Звіт має містити постановку задачі з конкретними даними, побудовану карту з виділенням зон та позначками щодо аномальних значень фону, висновки.*

## 10.2. Розрахунок вмісту радіонуклідів у радіоактивних відходах

*Опис процесу.* Для зменшення активності радіоактивних відходів вони розміщені в тимчасовому сховищі. Суміш радіонуклідів містить  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{144}\text{Ce}$  та  $^{106}\text{Ru}$ , а їх початкові активності сягали  $N_{\text{Sr},0}$ ,  $N_{\text{Cs},0}$ ,  $N_{\text{Ce},0}$ ,  $N_{\text{Ru},0}$  відповідно. Отже, загальна початкова активність становила  $N_{\Sigma,0} = N_{\text{Sr},0} + N_{\text{Cs},0} + N_{\text{Ce},0} + N_{\text{Ru},0}$ . У процесі зберігання активність відходів зменшується, що знижує їх небезпеку і робить можливим їх остаточне захоронення після певної витримки в часі.

*Мета роботи.* Необхідно визначити час мінімальної витримки радіоактивних відходів для їх більш безпечного остаточного захоронення.

*Відомості з теорії.* Під впливом природного розпаду активність радіоактивних елементів поступово зменшується за експоненціальною залежністю згідно із законом радіоактивного розпаду (підрозділ 1.2). Сумарна активність суміші радіонуклідів обчислюється за формулою

$$N_{\Sigma}(t) = N_{\text{Sr}}(t) + N_{\text{Cs}}(t) + N_{\text{Ce}}(t) + N_{\text{Ru}}(t), \quad (10.1)$$

де  $N_{\text{Sr}}(t)$ ,  $N_{\text{Cs}}(t)$ ,  $N_{\text{Ce}}(t)$ ,  $N_{\text{Ru}}(t)$  – активності радіонуклідів у момент часу  $t$ , кожна з яких визначається за формулою (1.2). Константи розпаду обчислюються за

формулою (1.3) на основі періоду піврозпаду, значення якого для найбільш поширених радіонуклідів наведені у додатку.

У випадку одного елемента момент часу  $t$ , коли активність радіонукліду становитиме  $N(t)$ , можна визначити з рівняння, одержаного з формули (1.2)

$$t = 3,32 T_{0,5} \lg \frac{N_0}{N(t)}, \quad (10.2)$$

де  $N_0$  – початкова активність радіонукліду.

Якщо розглядається суміш елементів, отримати залежність виду (10.2) неможливо. Тоді слід оцінювати час зменшення сумарної початкової активності  $N_{\Sigma,0}$  до необхідного рівня на основі формули (10.1), наприклад за побудованим графіком.

*Вихідні дані для розрахунків* залежно від номера  $j$ , за яким у журналі групи записано прізвище студента, наведені у табл. 10.2.

Таблиця 10.2

Параметри для розрахунку

Початкові активності радіонуклідів, Кі				Період розрахунку $t_p$ , років	Зменшення сумарної початкової активності через проміжок часу $t_p$ , разів	
$^{90}\text{Sr}$	$^{137}\text{Cs}$	$^{144}\text{Ce}$	$^{106}\text{Ru}$			
$50 + j \cdot 0,5$	$20 + j \cdot 0,5$	$10 + j \cdot 10$	$10 + j \cdot 10$	100	2	5

#### *Порядок виконання*

1. Використовуючи засоби обчислень у програмі MathCad або MS Excel, скласти формули для обчислень за залежністю (10.1).

2. Виконати розрахунок зменшення активності окремих радіонуклідів та їх суміші в період часу до моменту  $t_p$ , подати результат у вигляді графіка із сумарною активністю та активністю окремих радіонуклідів.

3. На основі графіка оцінити періоди часу, що необхідні для зниження активності суміші згідно з параметрами в табл. 10.2.

4. Зробити висновки відносно того, якими елементами переважно визначається радіоактивність у початковий та заключні періоди прогнозу.

*Звіт має містити* постановку задачі з конкретними даними для розрахунку, графіки, результати та висновки.

### 10.3. Розрахунок вмісту материнського та дочірнього радіонуклідів у хвостосховищі

*Опис процесу.* У хвостосховищі відходів переробки радіоактивних руд містяться елементи ланцюга розпаду природних радіонуклідів, зокрема, ізоотоп  $^{226}\text{Ra}$  (початкова активність  $N_{1,0}$ ) та ізоотоп  $^{210}\text{Pb}$  (продукт розпаду  $^{226}\text{Ra}$  через кілька короткоживучих ізоотопів, початкова активність  $N_{2,0}$ ). Період піврозпаду материнського ізоотопу становить  $T_1 = 1600$  років, дочірнього ізоотопу –  $T_2 = 22,3$  роки. Частина радіонуклідів знаходиться у розчинному стані й фільтрується через днище хвостосховища у ґрунтові води.

*Мета роботи.* Визначити зміну сумарної активності перших двох елементів ланцюга розпаду – ізоотопів радію-226 та свинцю-210.

*Відомості з теорії.* Активність материнського ізоотопу  $N_1(t)$  змінюється згідно із законом радіоактивного розпаду за формулою (1.2), активність дочірнього ізоотопу  $N_2(t)$  – за формулою (1.5). Сумарна активність двох і більше радіонуклідів визначається аналогічно формулі (10.1).

У загальному випадку оцінити втрати радіонуклідів унаслідок фільтрації через днище хвостосховища дуже складно. Припустимо, що обидва ізоотопи рівномірно розподілені по об'єму хвостових матеріалів, а втрати радіонуклідів через низхідну фільтрацію приблизно складають певну частину  $p$  (1/рік) від їх наявної кількості у сховищі.

Активності материнського та дочірнього радіонуклідів з урахуванням низхідної фільтрації описуються формулами

$$N_1(t) = N_{1,0} \exp(-(\lambda + p)t), \quad (10.3)$$

$$N_2(t) = \frac{\lambda_1 N_{1,0} e^{-pt}}{\lambda_2 - \lambda_1} \{ \exp(-\lambda_1 t) - \exp(-\lambda_2 t) \} + N_{2,0} \exp(-(\lambda_2 + p)t). \quad (10.4)$$

*Вихідні дані для розрахунків* залежно від номера  $j$ , за яким у журналі групи записано прізвище студента, наведені у табл. 10.3.

Таблиця 10.3

Вихідні дані для розрахунків

Варіант	1	2	1	2
Ізоотоп	Початкова активність $N_0$ , Кі		Щорічні втрати радіоактивності на низхідну фільтрацію $p$ , 1/рік	
$^{226}\text{Ra}$	$300 + j$	$10 + j$	0,00001	0,0001
$^{210}\text{Pb}$	$40 + j$	$40 + j$		

Час розрахунку – 100 років.

#### *Порядок виконання*

1. Користуючись засобами програми MathCad або MS Excel, скласти формули для визначення активності окремих ізотопів та їх сумарної активності на основі співвідношень (10.3) та (10.4).

2. Визначити активність кожного з компонентів ланцюжка розпаду та їх сумарну активність без урахування втрат на фільтрацію через днище хвостосховища ( $p = 0$ ) та з урахуванням цих втрат ( $p > 0$ ). Результати розрахунків подати у вигляді графіків.

3. Зробити висновки щодо впливу параметрів розпаду та низхідної фільтрації на активність радіонуклідів у хвостосховищі.

*Звіт має містити постановку задачі з конкретними даними для розрахунку, графіки, результати та висновки.*

### **10.4. Розрахунок вмісту радіонуклідів у поверхневому шарі ґрунту після радіоактивних випадань**

*Опис процесу.* В результаті аварії на АЕС з атмосферними опадами на поверхню землі випала суміш радіонуклідів у вигляді твердих частинок загальною активністю  $N_{\Sigma}$ . Суміш радіонуклідів складається з  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{144}\text{Ce}$  та  $^{241}\text{Pu}$ , їх початкові активності сягали  $N_{\text{Sr},0}$ ,  $N_{\text{Cs},0}$ ,  $N_{\text{Ce},0}$ ,  $N_{\text{Pu},0}$  відповідно. Отже, загальна початкова активність становила

$$N_{\Sigma,0} = N_{\text{Sr},0} + N_{\text{Cs},0} + N_{\text{Ce},0} + N_{\text{Pu},0}.$$

Унаслідок контакту з атмосферними опадами відбувається вилуговування радіонуклідів у верхньому шарі ґрунтів, їх перехід у розчинені рухливі форми, здатні мігрувати з ґрунтовою вологою. Частина радіонуклідів, що перейшла до розчинної форми, адсорбувалася у верхньому шарі ґрунту (рис. 10.2).

*Мета роботи.* Визначити зміну активності радіонуклідів у верхньому шарі ґрунту на період прогнозу  $t$ :

- у формі твердих частинок,
- у поровому розчині,
- в адсорбованому стані.

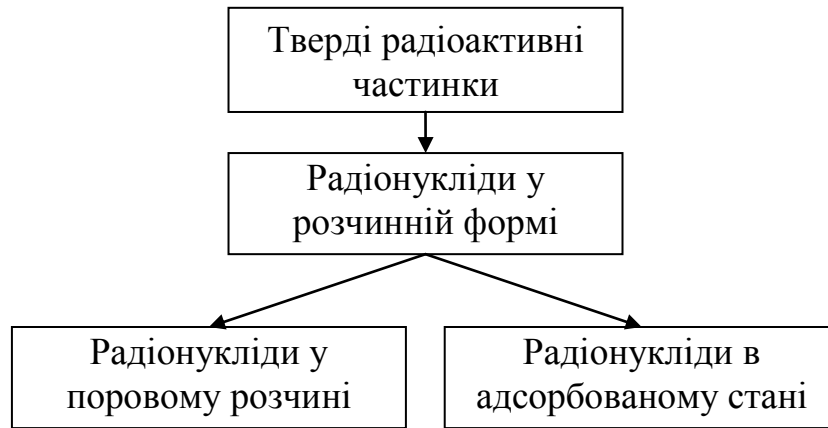


Рис. 10.2. Схема перетворень радіонуклідів у верхньому шарі ґрунту

*Відомості з теорії.* Активність радіонукліда  $N_1$ , що перейшла у розчинну форму з твердих частинок за час  $t$ , визначається за рівнянням (10.5):

$$N_1(t) = N_0 \frac{\kappa}{\kappa + \lambda} [1 - \exp(-(\kappa + \lambda)t)], \quad (10.5)$$

де  $N_0$  – початкова активність радіонукліда;  $\kappa$  – коефіцієнт, що характеризує швидкість переходу радіонукліда з твердої фази у розчинну форму,

$$\kappa = \frac{\ln 2}{T_{ПВ}}. \quad (10.6)$$

У формулі (10.6)  $T_{ПВ}$  – період піввиведення радіонукліда з твердих частинок у розчин, протягом якого половина радіонукліда з твердої фази переходить у розчинну форму.

Кількість радіонукліда, що залишився у твердій фазі  $N_{0,t}$ , розраховується за формулою

$$N_{0,t}(t) = [N_0 - N_1(t)] \exp(-\lambda t). \quad (10.7)$$

Частина радіонукліда, що перейшла до розчинної форми, адсорбувалася у верхньому шарі ґрунту, інша частина залишилася у поровому розчині. Ці складові можна оцінити за ізотермою Генрі (8.3), якщо припустити, що

$$N_1 = N_{1,ads} + N_{1,sol}, \quad (10.8)$$

де  $N_{1,ads}$  та  $N_{1,sol}$  – кількість (активність) розчинного радіонукліда, що перебуває в адсорбованому стані та у поровому розчині у верхньому шарі ґрунту відповідно. З урахуванням (8.3) складові у рівнянні (10.8) можна виразити таким чином:

$$N_{1,ads} = \frac{\bar{K}_d}{1 + \bar{K}_d} N_1, \quad N_{1,sol} = \frac{1}{1 + \bar{K}_d} N_1, \quad (10.9)$$

де  $\bar{K}_d$  – коефіцієнт розподілу радіонукліда між розчином та ґрунтом.

У разі, якщо кожен з радіонуклідів буде рівномірно розподілений у верхньому шарі ґрунту товщиною  $l$  з пористістю  $n$  на площі  $S$ , то його середня концентрація  $C_{av}$  у цьому шарі становитиме

$$C_{av} = \frac{N_{1,sol}}{Sln}.$$

*Вихідні дані для розрахунків* залежно від номера  $j$ , за яким у журналі групи записано прізвище студента, для двох варіантів наведені у табл. 10.4.

Період розрахунку  $t = 200$  років, площа радіоактивних випадань  $S = 100 \text{ км}^2$ , товщина верхнього шару ґрунту  $l = 5 \text{ см}$ , його пористість  $n = 0,3$ .

Таблиця 10.4

Параметри для розрахунку

Варіанти	1	2	1	2	1	2	1	2
Радіонукліди	$^{90}\text{Sr}$		$^{137}\text{Cs}$		$^{144}\text{Ce}$		$^{241}\text{Pu}$	
Початкова активність $N_0, \text{Кі}$	$100 \cdot j$	$40 \cdot j$	$200 \cdot j$	$10 \cdot j$	$10 \cdot j$	$1 \cdot j$	$2 \cdot j$	$10 \cdot j$
$\bar{K}_d$	1,2	0,2	100	20	12	5	30	12
$T_{ПВ}, \text{років}$	$4 + j$	$20 - j$	$2 + j/2$	$20 - j$	$4 + j$	$20 - j$	$2 + j/2$	$15 + j$

### Порядок виконання

1. З використанням засобів програми MathCad або MS Excel запрограмувати формули (10.7) та (10.9) для розрахунку кількості радіонуклідів у формі твердих частинок, у поровому розчині та адсорбованому стані у ґрунті.

2. Визначити кількість кожного з радіонуклідів та їх сумарну кількість у поверхневому шарі ґрунту на період розрахунку  $t$ . Результати подати у вигляді графіків для двох варіантів.

3. Установити, чи буде перевищена допустима концентрація ДК<sub>Б</sub> у поровому розчині для радіонуклідів, що випали на ґрунт, порівнюючи  $C_{av}$  з відповідним значенням ДК<sub>Б</sub> для радіонукліда за додатком.

4. Зробити висновок щодо впливу параметрів на перебіг процесу переходу радіонуклідів у різні форми.

*Звіт має містити постановку задачі з конкретними даними для розрахунку, графіки, результати та висновки.*

## СПИСОК ЛІТЕРАТУРИ

1. Агеец В.Ю. Миграция радионуклидов в почвах Беларуси / В.Ю. Агеец // Изв. Акад. аграр. наук Республики Беларусь. Сер. Земледелие и растениеводство. – № 1. – 2002. – С. 61–65.
2. Антонов Ю.И. Радиогидрогеология: учеб. пособие / Ю.И. Антонов, В.В. Елизарьева. – Днепропетровск: ДГИ, 1979. – 82 с.
3. Аренс В.Ж. Физико-химическая геотехнология / В.Ж. Аренс. – Москва: МГГУ, 2001. – 656 с.
4. Бакка Н.Т. Радиоэкология / Н.Т. Бакка, О.Н. Барабаш. – Житомир: ЖІТІ, 2001. – 314 с.
5. Баранов В.И. Радиогеология / В.И. Баранов, Н.А. Титаева. – Москва: МГУ, 1973. – 243 с.
6. Бекман И.Н. Уран: курс лекций / И.Н. Бекман. – Москва: МГУ, 2009. – 300 с.
7. Бекман И.Н. Ядерная физика: курс лекций / И.Н. Бекман. – Москва: МГУ, 2010. – 511 с.
8. Белицкий А.С. Охрана подземных вод от радиоактивного загрязнения / А.С. Белицкий, Е.И. Орлова. – Москва: Медицина, 1968. – 208 с.
9. Бюллетень МАГАТЭ. – Вена. – 2000. – Т. 42, № 3. – 68 с.
10. Вальтер А.К. Ядерная физика / А.К. Вальтер, И.И. Залюбовский. – Харьков: ХГУ, 1963. – 368 с.
11. Германов А.И. Генетические связи органического вещества и микрокомпонентов подземных вод / А.И. Германов, В.М. Пантелеев, В.М. Швец. – Москва: Недра, 1975. – 136 с.
12. Гусев Н.Г. Радиоактивные цепочки / Н.Г. Гусев, П.П. Дмитриев. – Москва: Энергоатомиздат, 1988. – 111 с.
13. Гидрогеологический мониторинг и прогнозирование загрязнения подземных вод в зоне отчуждения ЧАЭС / С.П. Джепо, А.С. Скальский, Д.А. Бугай и др. // Доклады НАН Украины. – 1994. – № 1. – С. 91–98.
14. Добыча и переработка урановых руд в Украине / под ред. А.П. Чернова. – Киев: АДЕФ-Украина, 2001. – 238 с.
15. Каждан А.Б. Геология и методы поисков урановых месторождений / А.Б. Каждан, В.Е. Бойцов, Д.Ф. Зимин. – Москва: Недра, 1971. – 192 с.
16. Колотов Б.А. Гидрогеохимия рудных месторождений / Б.А. Колотов. – Москва: Недра, 1992. – 168 с.

17. Лисицин А.К. Гидрогеохимия рудообразования (на примере экзогенных эпигенетических урановых руд) / А.К. Лисицин. – Москва: Недра, 1975. – 248 с.
18. Люминесцентные методы анализа актиноидных элементов. Методические указания к выполнению лабораторных работ по дисциплине «Физико-химические методы анализа» / сост.: И.И. Жерин, Н.Б. Егоров. – Томск: ТПУ, 2007. – 21 с.
19. Мелков В.Г. Поиски месторождений урана / В.Г. Мелков, Л.И. Пухальский. – Москва: Госгеолтехиздат, 1957. – 220 с.
20. Методические указания к выполнению научно-исследовательской работы «Составление радиогидрогеологической карты и заключения» для студентов специальности 0107 / сост. Ю.И. Антонов. – Днепропетровск: ДГИ, 1985. – 16 с.
21. Механизмы и динамика процессов переноса (миграции) радионуклидов в атмосфере, водных и наземных экосистемах: аналит. обзор. – Ростов-на-Дону: Южный федерал. ун-т, 2007. – 100 с.
22. Минералогические типы зоны окисления гидротермальных урановых и сульфидно-урановых месторождений СССР / Г.С. Грицаенко, Л.Н. Белова, Р.В. Гецева, К.Т. Савельева // Ядерное горючее и радиоактивные металлы. – Москва: Атомиздат, 1959. – С. 69–84.
23. Мусич Е.Г. Утилизация отходов урано- и горнодобывающей промышленности методами биогеохимии / Е.Г. Мусич, Ю.Н. Демихов // Зб. наук. праць Ін-ту геології навколишнього середовища НАН України. – 2014. – Вип. 23. – С. 168–178.
24. Нормы радиационной безопасности Украины (НРБУ-97): государственные гигиенические нормативы. – Киев: Отдел полиграфии Укр. центра госсанэпиднадзора МОЗ Украины, 1997. – 121 с.
25. Перельман А.И. Геохимия элементов в зоне гипергенеза / А.И. Перельман. – Москва: Недра, 1972. – 288 с.
26. Петривский Я.Б. Научные основы геотехнологического извлечения урана из техногенных месторождений / Я.Б. Петривский. – Ровно: РГГУ, 2008. – 399 с.
27. Проблемы экологии промышленного региона / А.П. Огурцов, Л.М. Мамаев, Ю.С. Нагорный, С.Х. Авраменко, В.В. Косарецкий. – Днепропетровск: Ин-т систем. исслед., 1994. – 92 с.
28. Прогноз, поиски, разведка и промышленная оценка месторождений урана для отработки подземным выщелачиванием / К.Г. Бровин,



В.А. Грабовников, М.В. Шумилин, В.Г. Язиков. – Алматы: Гылым, 1997. – 383 с.

29. Промышленные типы месторождений урана [Электронный ресурс], Режим доступа [http://www.armz.ru/uranium\\_mining/types\\_and\\_properties/commercial\\_types\\_of\\_uranium\\_deposits/](http://www.armz.ru/uranium_mining/types_and_properties/commercial_types_of_uranium_deposits/). – Название с экрана.

30. Радиоактивные отходы АЭС и методы обращения с ними /А.А. Ключников, Э.М. Пазухин, Ю.М. Шигера, В.Ю. Шигера. – Чернобыль, 2005. – Режим доступа: <http://www.atomic-energy.ru/books/27686>. Название с экрана.

31. Сауков А.А. Геохимия / А.А. Сауков. – Москва: Наука, 1975. – 480 с.

32. Ситников А.Б. Вопросы миграции веществ в грунтах / А.Б. Ситников. – Киев: Ин-т геол. наук НАН Украины, 2010. – 640 с.

33. Соболев И.А. Обезвреживание радиоактивных отходов на централизованных пунктах / И.А. Соболев, Л.М. Хомчик. – Москва: Энергоатомиздат, 1983. – 128 с.

34. Старик И.Е. Основы радиохимии / И.Е. Старик. – Ленинград: Наука, 1969. – 648 с.

35. Токарев А.Н. Радиогидрогеология / А.Н. Токарев, А.В. Щербаков. – Москва: Госгеолтехиздат, 1956. – 264 с.

36. Хан О. Прикладная радиохимия / О. Хан. – Москва: Госхимиздат, 1947. – 276 с.

37. Швец В.Я. Экологические проблемы Днепродзержинска / В.Я. Швец, А. Г. Приходченко. – Днепродзержинск, 1997. – 90 с.

38. Щербина В.В. Основы геохимии / В.В. Щербина. – Москва: Недра, 1972. – 296 с.

39. Уранодобывающая и ураноперерабатывающая промышленность [Электронный ресурс]. Режим доступа: <http://uatom.org/index.php/ru/2015/08/14/uranodobyvayushhaya-y-uranopererabatyvayushhaya-promyshlennost/>. – Название с экрана.

40. Экосистемы и радиация: аспекты существования и развития: сб. науч. тр. – Минск: Институт радиологии, 2013. – 423 с.

41. Ядерная энергетика, человек и окружающая среда / Н.С. Бабаев, В.Ф. Демин, Л.А. Ильин и др. // Москва: Энергоатомиздат, 1984. – 312 с.

42. Lerch J. Hanford 300 Area 618-4 Burial Ground Technology Baseline for Treatment and Disposal of Depleted Uranium with RCRA and TSCA Constraints / J. Lerch, R. Carlson, J. James // Waste Management 2000, 27 Feb.–02 Mar., Tucson, Arizona. – 2000.

43. Mudd G.M. Acid In Situ Leach Uranium Mining: 2 – Soviet Block and Asia / G.M. Mudd // Tailings & Mine Waste '00, Fort Collins, CO, USA – Jan. 23-26, 2000. A.A. Balkema: Rotterdam, 2000. – P. 527–536.

44. Mudd, G.M. Critical review of acid in situ leach uranium mining: 1. USA and Australia / G.M. Mudd // Environmental Geology, – 2001. – Vol. 41.– P. 390–403.

45. Phillips E.J.P. Remediation of uranium contaminated soils with bicarbonate extraction and microbial U(VI) reduction / E.J.P. Phillips, E.R. Landa, D.R. Lovley // J. of industrial microbiology. – 1995. – Vol. 14. – P. 203–207.

46. Review of Environmental Impacts of the Acid In-situ Leach Uranium Mining Process / G. Taylor, V. Farrington, P. Woods, R. Ring and R. Molloy // CSIRO Land and Water Client Report. – Australia. – 2004. – 60 p.

47. Rosholt J.N. Absolute dating of deep-sea cores by the Pa/Th-method / J.N. Rosholt, C. Emiliani, J. Geiss, F.F. Koczy, P.J. Wangersky // J. of Geology. – 1961. – Vol. 69, No. 2. – P. 162–185.

48. Uranium 2011: Resources, Production and Demand. – OECD 2012. NEA Report No. 7059. – Nuclear Energy Agency Organisation For Economic Co-Operation And Development, 2012. – 486 p.

## ПРЕДМЕТНИЙ ПОКАЖЧИК

- Аварії на АЕС** 103
- Аномальний вміст урану, радію, радону в підземних водах** 61, 128
- Бар'єри**
- геохімічні 84
  - фізико-хімічні 90
  - у сховищах радіоактивних відходів 114
- Бекерель** 17
- Вилуговування радіонуклідів з гірських порід** 43, 46, 47, 57, 67
- Випромінювання** 9, 18, 109, 119
- Відвали радіоактивних руд** 108
- Гама-випромінювання** 10
- Гідродинамічна локалізація** 99
- Доза**
- експозиційна 18
  - поглинута 19
- Еманування** 27, 53, 71
- Еманувальні колектори** 29, 57, 78
- Еманаційний метод** 122
- Забруднення підземних вод**
- при підземному вилуговуванні 87, 97
  - при зберіганні радіоактивних відходів 111
- Зональність**
- водообміну 44
  - вертикального розподілу урану 45
  - геохімічна навколо рудного тіла 83
- Коефіцієнт еманування** 28
- Кольматація пор** 90
- Кюрі** 17
- Люмінесценція** 121
- Методи пошуку уранового зрудніння**
- радіометричний 76
  - радіогідрогеохімічний 76
- Міграція радіонуклідів**
- у ґрунтах 105
  - у підземних водах 65, 70, 71, 95, 115
- Ореоли розсіювання у підземних водах**
- первинні 72
  - вторинні 73
- Період піврозпаду** 15
- Підземне вилуговування урану** 83
- кислотний/лужний способи 88
- Пошукові критерії** 77
- Природний радіогідрогеохімічний фон** 88

Радіоактивні відходи 112  
Радіоактивність 9  
– природних вод 58, 64  
Радіогідрогеологічні карти 81, 127  
Радіометричний метод 119  
Радіонуклід  
– дочірній 9, 16  
– материнський 15  
Розпад радіоактивний 9, 10

Сімейства радіонуклідів 11  
Спектрофотометр 120  
Стадії радіогідрогеологічних досліджень 81

Уранові родовища 32  
– класифікація 33

Фізико-хімічна нейтралізація 100

Хвостосховища відходів переробки радіоактивних руд 110

Періоди напіврозпаду і допустимі концентрації радіонуклідів  
у питній воді ДКВ для категорії В

Радіонуклід	Період напіврозпаду	ДКВ (Бк/м <sup>3</sup> )
<i>Тритій</i>		
<sup>3</sup> H	12,35 року	3·10 <sup>7</sup>
<i>Вуглець</i>		
<sup>11</sup> C	20,38 хв	2·10 <sup>7</sup>
<sup>14</sup> C	5730 років	2·10 <sup>6</sup>
<i>Натрій</i>		
<sup>22</sup> Na	2,602 року	2·10 <sup>5</sup>
<sup>24</sup> Na	15 годин	1·10 <sup>6</sup>
<i>Фосфор</i>		
<sup>32</sup> P	14,29 доби	1·10 <sup>5</sup>
<i>Сірка</i>		
<sup>35</sup> S	87,44 доби	6·10 <sup>5</sup>
<i>Хлор</i>		
<sup>36</sup> Cl	3,01·10 <sup>5</sup> років	5·10 <sup>5</sup>
<i>Калій</i>		
<sup>42</sup> K	12,36 години	2·10 <sup>5</sup>
<sup>43</sup> K	22,6 години	2·10 <sup>6</sup>
<i>Кальцій</i>		
<sup>45</sup> Ca	163 доби	3·10 <sup>5</sup>
<sup>47</sup> Ca	4,53 доби	3·10 <sup>5</sup>
<i>Хром</i>		
<sup>51</sup> Cr	27,104 доби	1·10 <sup>7</sup>
<i>Марганець</i>		
<sup>54</sup> Mn	312,5 доби	8·10 <sup>5</sup>
<sup>56</sup> Mn	2,58 години	2·10 <sup>6</sup>
<i>Залізо</i>		
<sup>59</sup> Fe	44,529 доби	1·10 <sup>5</sup>
<i>Кобальт</i>		
<sup>57</sup> Co	270,9 доби	2·10 <sup>6</sup>
<sup>58</sup> Co	70,8 доби	6·10 <sup>5</sup>
<sup>60</sup> Co	5,271 року	8·10 <sup>4</sup>
<i>Нікель</i>		
<sup>59</sup> Ni	7,5·10 <sup>4</sup> року	7·10 <sup>6</sup>
<sup>63</sup> Ni	96 років	1·10 <sup>6</sup>
<i>Телур</i>		

Радіонуклід	Період напіврозпаду	ДКВ (Бк/м <sup>3</sup> )
<i>Цинк</i>		
<sup>65</sup> Zn	243,9 доби	1·10 <sup>5</sup>
<i>Бром</i>		
<sup>82</sup> Br	35,3 години	1·10 <sup>6</sup>
<i>Рубідій</i>		
<sup>86</sup> Rb	18,66 доби	1·10 <sup>5</sup>
<i>Стронцій</i>		
<sup>80</sup> Sr	100 хв	1·10 <sup>6</sup>
<sup>81</sup> Sr	25,5 хв	5·10 <sup>6</sup>
<sup>82</sup> Sr	25 діб	6·10 <sup>4</sup>
<sup>83</sup> Sr	32,4 години	1·10 <sup>6</sup>
<sup>85</sup> Sr	64,84 доб	6·10 <sup>5</sup>
<sup>85</sup> mSr	69,5 хв	1·10 <sup>8</sup>
<sup>87</sup> mSr	2,8 години	2·10 <sup>7</sup>
<sup>89</sup> Sr	50,5 доби	1·10 <sup>5</sup>
<sup>90</sup> Sr	29,12 року	1·10 <sup>4</sup>
<sup>91</sup> Sr	9,5 години	9·10 <sup>5</sup>
<sup>92</sup> Sr	2,71 години	1·10 <sup>6</sup>
<i>Цирконій</i>		
<sup>95</sup> Zr	63,98 доби	5·10 <sup>5</sup>
<i>Ніобій</i>		
<sup>96</sup> Nb	35,15 доби	1·10 <sup>6</sup>
<i>Молібден</i>		
<sup>99</sup> Mo	66 годин	8·10 <sup>5</sup>
<i>Технецій</i>		
<sup>99</sup> Tc	2,12E5 року	5·10 <sup>5</sup>
<sup>99</sup> mTc	6,02 години	2·10 <sup>7</sup>
<i>Рутеній</i>		
<sup>103</sup> Ru	39,28 доби	6·10 <sup>5</sup>
<sup>106</sup> Ru	368,2 доби	5·10 <sup>4</sup>
<i>Срібло</i>		
<sup>108</sup> mAg	127 років	2·10 <sup>5</sup>
<sup>110</sup> mAg	249,9 доби	2·10 <sup>5</sup>
<i>Полоній</i>		

Радіонуклід	Період напіврозпаду	ДКБ (Бк/м <sup>3</sup> )
<sup>127</sup> mTe	109 діб	1·10 <sup>5</sup>
<sup>129</sup> mTe	33,6 доби	1·10 <sup>5</sup>
<sup>131</sup> mTe	30 годин	2·10 <sup>5</sup>
<sup>132</sup> Te	78,2 години	9·10 <sup>4</sup>
<i>Йод</i>		
<sup>123</sup> I	13,2 годин	2·10 <sup>6</sup>
<sup>126</sup> I	60,14 доби	4·10 <sup>4</sup>
<sup>129</sup> I	1,57·10 <sup>7</sup> року	7·10 <sup>3</sup>
<sup>131</sup> I	8,04 доби	2·10 <sup>4</sup>
<sup>132</sup> I	2,3 години	1·10 <sup>6</sup>
<sup>133</sup> I	20,8 години	9·10 <sup>4</sup>
<sup>135</sup> I	6,61 години	4·10 <sup>5</sup>
<i>Цезій</i>		
<sup>125</sup> Cs	45 хв	1·10 <sup>7</sup>
<sup>126</sup> Cs	1,64 хв	5·10 <sup>7</sup>
<sup>127</sup> Cs	6,25 години	3·10 <sup>7</sup>
<sup>128</sup> Cs	3,9 хв	3·10 <sup>7</sup>
<sup>129</sup> Cs	32,06 години	1·10 <sup>7</sup>
<sup>130</sup> Cs	29,9 хв	1·10 <sup>7</sup>
<sup>131</sup> Cs	9,69 доби	1·10 <sup>7</sup>
<sup>132</sup> Cs	6,475 доби	2·10 <sup>6</sup>
<sup>134</sup> Cs	2,062 року	7·10 <sup>4</sup>
<sup>134</sup> mCs	2,9 години	2·10 <sup>7</sup>
<sup>135</sup> Cs	2,3·10 <sup>6</sup> року	6·10 <sup>5</sup>
<sup>135</sup> mCs	53 хв	3·10 <sup>7</sup>
<sup>136</sup> Cs	13,1 доби	3·10 <sup>5</sup>
<sup>137</sup> Cs	30 років	1·10 <sup>5</sup>
<sup>138</sup> Cs	32,2 хв	4·10 <sup>6</sup>
<i>Барій</i>		
<sup>133</sup> Ba	10,74 року	2·10 <sup>5</sup>
<sup>140</sup> Ba	12,74 доби	1·10 <sup>5</sup>
<i>Церій</i>		
<sup>141</sup> Ce	32,501 доби	6·10 <sup>5</sup>
<sup>144</sup> Ce	284,3 доби	7·10 <sup>4</sup>
<i>Золото</i>		
<sup>198</sup> Au	2,696 доби	5·10 <sup>5</sup>
<i>Свинець</i>		
<sup>210</sup> Pb	22,3 року	5·10 <sup>2</sup>

Радіонуклід	Період напіврозпаду	ДКБ (Бк/м <sup>3</sup> )
<sup>210</sup> Po	138,38 доби	2·10 <sup>2</sup>
<i>Радій</i>		
<sup>226</sup> Ra	1600 років	1·10 <sup>3</sup>
<sup>228</sup> Ra	5,75 роки	2·10 <sup>2</sup>
<i>Торій</i>		
<sup>232</sup> Th	1,405·10 <sup>10</sup> року	7·10 <sup>2</sup>
<i>Уран</i>		
<sup>234</sup> U	2,445·10 <sup>5</sup> року	1·10 <sup>4</sup>
<sup>235</sup> U	703,8·10 <sup>6</sup> року	1·10 <sup>4</sup>
<sup>238</sup> U	4,468·10 <sup>9</sup> року	1·10 <sup>4</sup>
<i>Нептуній</i>		
<sup>237</sup> Np	2,14·10 <sup>6</sup> року	2·10 <sup>3</sup>
<sup>239</sup> Np	2,355 доби	5·10 <sup>5</sup>
<i>Плутоній</i>		
<sup>238</sup> Pu	87,74 року	1·10 <sup>3</sup>
<sup>239</sup> Pu	24065 років	1·10 <sup>3</sup>
<sup>240</sup> Pu	6537 років	1·10 <sup>3</sup>
<sup>241</sup> Pu	14,4 року	8·10 <sup>4</sup>
<i>Америцій</i>		
<sup>241</sup> Am	432,2 року	1·10 <sup>3</sup>

**Для нотаток**

Навчальне видання

**Рудаков Дмитро Вікторович**  
**Перкова Тетяна Іванівна**

## **РАДІОГІДРОГЕОЛОГІЯ**

Навчальний посібник

Редактор Ю.В. Рачковська

---

Підписано до друку 10.02.16. Формат 30×42/4  
Папір офсет. Ризографія. Ум. друк. арк. 10,3.  
Обл.-вид. арк. 10,3. Тираж 50 пр. Зам. №

---

Підготовлено до друку та видруковано  
у Державному ВНЗ «Національний гірничий університет».  
Свідоцтво про внесення до Державного реєстру ДК № 1842 від 11.06.2004.

49005, м. Дніпро, просп. Д. Яворницького, 19