Uzbek Journal of Physics
Vol.21(№4) 2019 PP.255-264

РАДИАЦИОННЫЙ МОНИТОРИНГ ЕСТЕСТВЕННЫХ РАДИОНУКЛИДОВ НА ОБЪЕКТАХ ПРЕДПРИЯТИЙ НЕФТЕГАЗОДОБЫЧИ И ДОЛГОВРЕМЕННОЕ ХРАНЕНИЕ РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ, СОДЕРЖАЩИХ ЕСТЕСТВЕННЫЕ РАДИОНУКЛИДЫ

У.Т. Ашрапов[1], И.И. Садиков[1], В.П. Нестеров[2]

[1]Институт ядерной физики АН РУз, 100214, Ташкент, Узбекистан, ashrapov@inp.uz
[2]АО «Научно-исследовательский институт технической физики и автоматизации» («НИИТФА»), 115230, Москва, Россия, vpnesterov@niitfa.ru
(Получена 13.03.2019)

Мақолада «Газлинефтгазқазибчиқариш» МЧЖ (Газли шаҳри, Ўзбекистон) ва «Uz-Kor Gas Chemical», «Устюрт Газкимёвий Комбинати» МЧЖ ҚҚ (Оқшалоқ посёлкаси, Қорақолпоқстон) нефт-газ ишлаб чиқариш корхоналаридаги радиациявий мониторинг натижалари кўрсатилган. Таркибида табиий радионуклидлар бўлган радиоактив чиқиндиларни узоқ муддат давомида сақлаш учун мўлжалланган махсус химоя контейнери конструкцияси кўрсатилган.

Представлены результаты исследований по радиационному мониторингу объектов предприятий нефтегазодобычи ООО «Газлинефтгаздобыча» (город Газли, Узбекистан) и СП ООО «Uz-Kor Gas Chemical», «Устюртский газохимический комбинат» (посёлок Акшалак, Каракалпакстан). Описана конструкция защитного контейнера особого вида, предназначенного для хранения радиоактивных отходов, содержащих естественные радионуклиды.

Results of researches on radiation monitoring of oil and gas production enterprises of limited liability company "Gazlineftgasdobicha" (Gazli town, Uzbekistan) and JV «Uz-Kor Gas Chemical» LLC, «Ustyurt Gas and Chemical Complex» (poselok Akshalak, Karakalpakstan) are presented. The design of special kind of defense container for long storage of radioactive waste containing natural radionuclides is presented.

I. ВВЕДЕНИЕ

В процессе добычи нефти и газа из скважин извлекаются естественные радионуклиды Ra-226, Th-232 и продукты их распада, которые являются радиоактивными загрязнителями окружающей среды [1].

Основным источником загрязнения нефтегазопромыслов естественными радионуклидами являются пластовые воды, где концентрация Ra-226 и продуктов его распада может превышать фоновые значения в 100–1000 раз [2]. Содержание радия-226 в пластовых водах составляет порядка 10^{-9} г/л, но достигает и 1.5×10^{-7} г/л. Крупные очаги радиоактивного загрязнения формируются при форсированной добыче нефти и газа. Так, техногенное загрязнение территорий Ухтинского месторождения в России при добыче нефти началось еще в 18-ом веке, и многие скважины после выработки длительное время изливали воду с содержанием ^{226}Ra до 8×10^{-9} г/л [3].

После длительной откачки нефти и рассолов на внутренней поверхности технологических труб в большом количестве накапливаются соли радия в форме

осадочных отложений. В основном радиоактивные отложения на 90–95% состоят из радиобаритов $Ba^{226}RaSO_4$ с незначительными примесями других соединений [4], а удельная активность радиоактивных осадков достигает до 4×10^8 Бк/кг [5].

При сжигании природного газа в окружающую среду также поступают радионуклиды, в частности, газообразный радон. Уровень радиации в зонах факелов по сжиганию неутилизируемых компонентов нефти и газа выше фонового на 43%. В результате распада радона образуются долгоживущие радионуклиды: свинец-210, висмут-210 и полоний-210. При попадании даже в небольшом количестве этих радионуклидов вместе с пылью и аэрозолями в лёгкие человека сильно повышается риск заболевания раком лёгких [6].

На предприятиях нефтегазодобычи особую радиационную опасность представляют ремонт и профилактические работы по первичной подготовке нефти и газа с вскрытием различного оборудования, так как в этом случае персонал непосредственно контактирует с поверхностями оборудования, загрязнённого естественными радионуклидами, и возникает опасность длительного облучения обслуживающего персонала малыми дозами [7].

В процессе распада радионуклида Ra-226 с периодом полураспада 1600 лет образуется Rn-222 с периодом полураспада 3.84 дня и 8 короткоживущих изотопов (Po-218, Pb-214, Bi-214, Po-214, Pb-210, Bi-210, Po-210, Pb-206), которые образуют эманацию газообразных продуктов распада радия-226.

Радий-226 и продукты его распада относятся к группе наиболее токсичных радионуклидов, что связано с их долговременным депонированием при поступлении в организм человека, высокими энергиями альфа- и бета-излучения [8].

Таким образом, радиационная и радиоэкологическая опасность обращения с минеральным сырьем в нефтегазовом комплексе определяется образованием, концентрированием и рассеянием высокоактивных производственных отходов в виде твердых и вязких осадков, розливов пластовых вод и нефтешламов с накоплением высокотоксичных изотопов радия (226, 228, 224), тория (228), радона (222, 220) [9].

II. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Радиационный мониторинг естественных радионуклидов на объектах предприятий нефтегазодобычи и оценка загрязнения естественными радионуклидами окружающей среды является актуальной задачей.

В ИЯФ АН РУз были проведены исследования по радиационному мониторингу объектов нефтегазодобычи предприятий ООО «Газлинефтегаз-добыча» и СП ООО «Uz-Kor Gas Chemical» (Устюртский газохимический комбинат» (УГК)) и гамма-спектрометрическому анализу различных образцов, полученных из исследуемых объектов предприятий нефтегазодобычи.

Измерения проводили с использованием дозиметрических приборов СРП-68-01, Radiagem 2000, Target IdertiFinder, Polymaster ДКГ-RM и по методу гамма-спектрометрического анализа влажных и сухих мазков, полученных из поверхностей исследуемых объектов контроля и образцов (грунт, твердые осадки, нефть, газоконденсат) с использованием гамма-бета спектрометров «РАДЭК» МКГБ-01 (Россия).

Результаты радиационного мониторинга объектов предприятия ООО «Газлинефтегаздобыча» скважин «Кумли», «Кушимча», «Тайлок», «Хожиказган», «Янгиказган», «Муллахол», газоперерабатывающих комплексов (ГПК) «Учкур», «Кульбешкак», «Даяхатин», «Газосепараторный насос» показали, что на территориях объектов нефтегазодобычи и газоперерабатывающих комплексов радиоактивного загрязнения естественными радионуклидами не наблюдается и МЭД гамма-излучения находится на уровне естественного фона (~12 мкР/час). Однако, на некоторых технологических оборудованиях по переработке нефти и газоконденсата, в частности, в сливных шахтах пластовых вод, металлических отходах (трубы, задвижки, шаровые краны), наблюдается превышение уровня естественного фона МЭД гамма-излучения в 150 раз (табл. 1).

Таблица 1. Результаты радиационного мониторинга объектов нефтегаздобычи и технологического оборудования ООО «Газлинефтегаздобыча».

Название объекта	Исследуемое оборудование	МЭД на поверхности, мкР/ч	Радионуклид
ГПК Учкур	Трубопровод (действующий) газораспределительной линии технологической нитки №1, №2, №5	250	Радий-226, Торий-232
-//-	Трубопровод (недействующий) газораспределительной линии технологической нитки №2	220	-//-
-//-	Металлолом и металлические отходы	150	-//-
ГПК Даяхатин	Ресивер В-201	750	-//-
-//-	Вывехриватель	738	-//-
-//-	Емкости Е-1, Е-2, Е-3	732	-//-
-//-	Теплообменники Т-101, Т-102	200	-//-
УППГ Кульбешкек	Отходы газоконденсата газозаправочной стации	82	-//-
-//-	Шаровой кран	1800	-//-
-//-	Труба газовая №2	275	-//-
Цех по переработке нефти Муллахол	Металлолом и металлические отходы	265	-//-
-//-	Емкость, НЗП-2	131	-//-
Скважина Янгиказган	Металлолом и металлические отходы	120	-//-
Скважина нефти №374	Грунт вокруг скважины	147	-//-

В радиологической испытательной лаборатории ИЯФ АН РУз были проведены гамма-спектрометрические анализы различных образцов, полученных из исследуемых объектов ООО «Газлинефтегаздобыча». Результаты показали, что в исследуемых образцах содержатся естественные радионуклиды ^{226}Ra и ^{232}Th и продукты их распада (табл. 2).

Таблица 2. Результаты гамма-спектрометрического анализа исследованных образцов ООО «Газлинефтегаздобыча».

Наименование исследуемого образца	Удельная активность радионуклида, Бк/кг	
	^{226}Ra	^{232}Th
Твердый осадок на внутренней поверхности срезанной недействующей трубы (технологическая нитка №2) ГПК «Учкур»	43492.5±410	19515.6±1870
Грунт из слива пластовых вод (технологическая нитка №1) ГПК «Учкур»	5331.3±525	2452.7±230
«Мазок» из внутренней поверхности металлолома скважины «Янгиказган»	17923.4±1625	4984.6±420
Пластовая вода из сепаратора С-101	292.7±150	–
Нефть из нефтеналивной эстакады «Амирабад»	–	-
Газоконденсат из газоналивной эстакады «Амирабад»	–	-

Из табл. 2 видно, что в конечных продуктах нефти и газоконденсате радионуклиды полностью отсутствуют, однако в некоторых образцах удельная активность естественного радионуклида ^{226}Ra превышает санитарные нормы его минимально значимой удельной активности на рабочем месте в 4 раза [10].

При гамма-активационном анализе твердого осадка из внутренней поверхности недействующей срезанной трубы (нитка № 2) ГПК «Учкур» получен гамма-спектр дочерних продуктов распада Ra-226 (рис. 1) – радионуклида Pb-214 с энергией аналитических пиков 242 кэВ, 295 кэВ и 352 кэВ, а также радионуклида Bi-241 с энергией аналитических пиков 609 кэВ, 1120 кэВ и 1764 кэВ [11, 12].

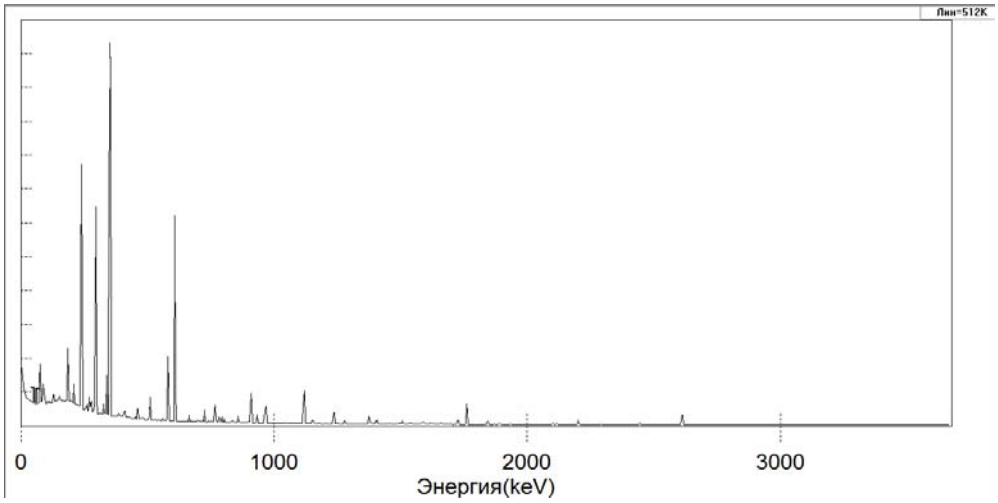


Рис. 1. Гамма-спектр твердого осадка из внутренней поверхности недействующей срезанной трубы (нитка № 2, ГПК «Учкур»).

В табл. 3 даны результаты радиационного мониторинга объектов и технологического оборудования предприятия нефтегазодобычи СП ООО «Uz-Kor Gas Chemical» (Устюртский газохимический комбинат (УГК)).

Таблица 3. Результаты радиационного мониторинга технологического оборудования УГК.

Название объекта	Исследуемое оборудование	МЭД на поверхности, мкР/ч	МЭД на расстоянии 1.0 м от поверхности, мкР/ч
Цех по производству этилена	Теплообменник Е-2622	4600	450
-//-	Сферический резервуар пропилена	170	110
-//-	Фильтр F-5201 А	125	120
-//-	Фильтр F-5201Б	9720	700
Промысел «Урга»	Блок входных ниток	110	50
Промысел «Сургил»	Установка отделения пластовых вод	14	9
Промысел «Бердах»	Буферная емкость	15	10

Как видно из табл. 3, на технологических объектах УГК наблюдается превышение уровня естественного фона МЭД гамма-излучения в 500 раз и в 40 раз превышение допустимого контрольного уровня 250 мкР/ч.

Гамма-спектрометрический анализ исследованных образцов объектов УГК показал, что в них в основном наблюдается радиоактивное загрязнение естественным радионуклидом ^{226}Ra и его дочерними продуктами распада радионуклидами ^{214}Bi, ^{214}Pb, а также радионуклидом ^{228}Ac, являющимся дочерним продуктом распада естественного радионуклида ^{228}Ra (табл. 4).

Таблица 4. Результаты гамма-спектрометрического анализа исследованных образцов УГК.

Наименование исследуемого образца	Удельная активность радионуклида, Бк/кг			
	^{226}Ra	^{214}Pb	^{214}Bi	^{228}Ac
Газоконденсат из сепаратора	–	10±3	12±1	-
Порошкообразный продукт переработки газоконденсата	–	20±4	25±5	28±8
Пластовая вода из сепаратора	162±40	30±5	35±6	32±9
Пластовая вода из буферной емкости	153±42	33±5	52±8	28±8
Гранулы этилена	–	–	–	–
Гранулы пропилена	–	–	–	–

Как видно из табл. 4, в пластовых водах, жидком газоконденсате и порошкообразном продукте переработки газоконденсата в основном содержатся радионуклид ^{226}Ra и его короткоживущие дочерние продукты деления ^{214}Bi, ^{214}Pb, а также ^{228}Ac, являющийся дочерним продуктом деления радионуклида ^{228}Ra. В конечных продуктах газоконденсата (гранулы пропилена и этилена) радионуклиды ^{226}Ra, ^{214}Bi, ^{214}Pb, ^{228}Ac полностью отсутствуют.

Таким образом, результаты исследований показали, что естественные радионуклиды и их дочерние продукты распада в основном накапливаются в виде солевых отложений на внутренних поверхностях закрытого технологического оборудования по сбору, фильтрации, концентрированию, переработке нефти и

газоконденсата, металлоломе, металлических отходах, местах слива пластовых вод и на линиях трубопроводов неочищенного газоконденсата на объектах ООО «Газлинефтегаздобыча», а также в пластовых водах, жидком газоконденсате и порошкообразном продукте переработки газоконденсата на объектах.

III. ВЛИЯНИЕ ЕСТЕСТВЕННЫХ РАДИОНУКЛИДОВ НА ТЕХНОЛОГИЧЕСКИЙ ПРОЦЕСС ГАЗОПЕРЕРАБОТКИ УГК

Результаты радиационного мониторинга объектов нефтегазодобычи УГК показали, что в технологическом оборудовании, жидком газоконденсате и сыпучем порошкообразном продукте переработки газоконденсата содержатся естественные радионуклиды и дочерние продукты их деления ^{214}Bi, ^{214}Pb, ^{228}Ac (табл. 3).

Гамма-спектрометрический анализ проб, полученных из газоконденсата промыслов «Урга» и «Сургуль» УГК, показал, что в жидком пропиленовом газе содержатся примеси короткоживущих радионуклидов ^{214}Bi, ^{214}Pb, ^{228}Ac с общей удельной концентрацией 37–40 Бк/кг (табл. 4).

Радионуклиды ^{214}Bi, ^{214}Pb, ^{228}Ac имеют короткие периоды полураспадов (^{214}Bi $T_{1/2}$=19.8 мин, ^{214}Pb $T_{1/2}$=26.8 мин, ^{228}Ac $T_{1/2}$=6.13 час). Однако эти радионуклиды способствуют многократному увеличению естественного фона гамма-излучения, и вследствие этого появляются ошибки в измерении уровней сыпучих порошкообразных продуктов газоконденсата и возникают проблемы при юстировке радиоизотопных уровнемеров, которые используются в технологической линии переработки газоконденсата для измерения уровня сыпучих порошкообразных продуктов в закрытых емкостях.

При наличии естественных радионуклидов и дочерних продуктов их деления в составе газоконденсата и порошкообразного продукта увеличивается мощность экспозиционной дозы блока источника БГИ-75 с источником ионизирующего излучения Цезия-137, и в результате в электронной щитовой радиоизотопного уровнемера происходит увеличение или уменьшение выходного аналогового сигнального тока в разъемах 0–5.0 мА, 4.0–20.0 мА, что приводит к ошибке измерений уровня порошкообразного сыпучего продукта в закрытых емкостях.

Для точной калибровки и наладки радиоизотопного уровнемера был разработан и использован блок корректировки сигнального тока, предназначенный для выпрямления аналогового токового сигнала и его подачи в блок электронной щитовой в разъемах 0–5.0 мА и 4.0–20.0 мА [13].

На рис. 2 показана функциональная схема блока корректировки тока, а на рис. 3 – градуировочная зависимость сигнального тока от уровня порошкообразного сыпучего продукта газоконденсата, содержащего короткоживущие естественные радионуклидные примеси.

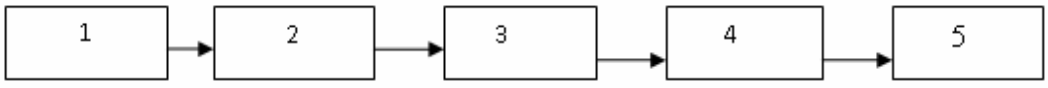


Рис. 2. Функциональная схема радиоизотопного уровнемера с блоком корректировки сигнального тока: 1 – блок гамма-источника БГИ-75 с источником ионизирующего излучения Цезий-137; 2 – закрытая емкость с порошкообразным сыпучим продуктом газоконденсата; 3 – блок детектирования; 4 – блок корректировки сигнального тока; 5 – блок электроники радиоизотопного уровнемера.

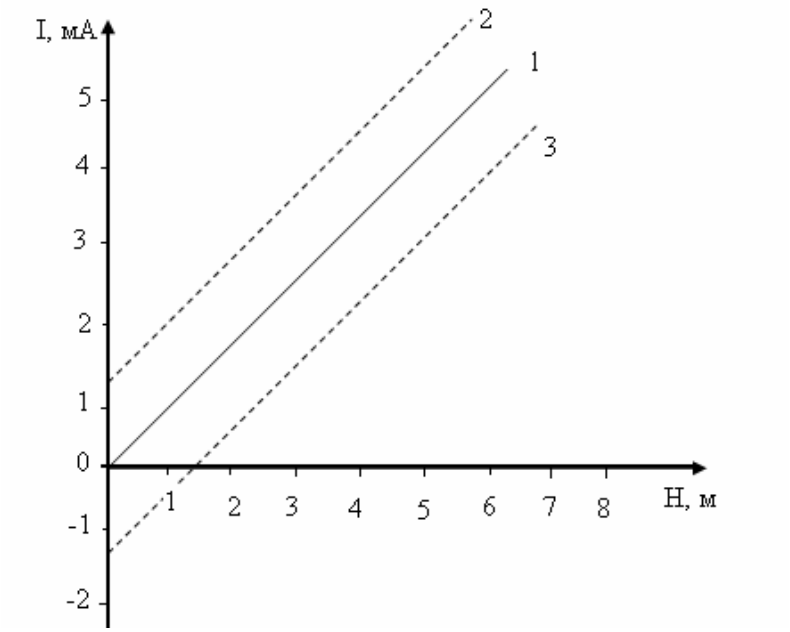


Рис. 3. Градировочная зависимость сигнального тока (*I*) от уровня (*H*) сыпучего порошкообразного продукта газоконденсата: *1* – нормальная градировочная зависимость уровня сыпучего порошкообразного продукта от сигнального тока в присутствии блока корректировки тока; *2* и *3* – аномальные зависимости уровня сыпучего порошкообразного продукта от сигнального тока в отсутствие блока корректора тока.

По результатам радиационного мониторинга естественных радионуклидов на объектах нефтегазодобычи УГК были приняты экстренные меры по минимизации экологических рисков и обеспечения радиоэкологической безопасности, проведены работы по юстировке и наладке радиоизотопных уровнемеров с использованием блока корректировки сигнального тока для точного измерения уровня сыпучих порошкообразных продуктов переработки газоконденсата радиоизотопным уровнемером.

IV. УПАКОВКА ОСОБОГО ВИДА ДЛЯ ДОЛГОВРЕМЕННОГО ХРАНЕНИЯ РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ С ЕСТЕСТВЕННЫМИ РАДИОНУКЛИДАМИ

В настоящее время актуальной задачей является долговременное хранение радиоактивных отходов, содержащих естественные радионуклиды, а также утилизация и долговременное хранение отработавших назначенный срок службы источников ионизирующего излучения на основе радионуклида Ra-226, ранее использованных в ядерной медицине (генераторы радона-222) и ядерной геофизике (эталонные источники гамма-излучения на основе радий-226).

В источниках ионизирующего излучения на основе радия активностью 100 ГБк со временем резко увеличивается давление внутри капсулы закрытого источника Ra-226 до 137.5 MPa, и в результате нарушается ее герметичность [14].

В эталонных (образцовых) источниках гамма-излучения на основе Ra-226 радий находится в равновесии с продуктами своего распада, а источник

представляет собой соль радия, заключенный в двойную герметичную стеклянную капсулу, которая помещена в капсулу из герметизированной нержавеющей стали. При неосторожном обращении или в результате случайного удара эталонные источники гамма-излучения на основе Ra-226 могут разгерметизироваться, что приводит к эманации газообразных продуктов распада радия-226.

Актуальной задачей является долговременное хранение радиоактивных отходов, содержащих естественные радионуклиды, а также отработанных источников ионизирующего излучения на основе Ra-226 с целью защиты от поступления в атмосферу токсичных газообразных продуктов распада радионуклида Ra-226.

В ФГУП «Радон» (Москва, Россия) был разработан упаковочный комплект КМЗ РНИ Радон [15] для сбора, транспортирования, хранения и захоронения отработавших источников ионизирующего излучения, в том числе источников на основе Ra-226.

Упаковочный комплект КМЗ РНИ «Радон» состоит из внутреннего защитного контейнера, имеющего емкость для размещения источников объёмом 80 л, окружённого биологической защитой из свинца толщиной 25-30 см. Для загрузки отработавших источников предусмотрена изогнутая загрузочная труба, закрываемая пробкой. Для защиты от факторов окружающей среды защитный контейнер размещён в другом защитном контейнере типа КМЗ-Радон.

В ФГУП «Радон» и АО «НИИТФА» была разработана специальная упаковка особого вида для длительного хранения источников ионизирующего излучения Ra-226, в которой использованы специальные материалы для обеспечения уменьшения скорости диффузии продуктов распада радионуклида Ra-226 (в т.ч. Rn-222) через матрицу и стенки контейнера до такой величины, что время эманации радионуклида Rn-222 становится более, чем 3.84 дня, т.е. больше периода полураспада Rn-222.

Упаковка изготовлена на основе 100 и 200 литровых металлических бочек и отличается наличием дополнительных оболочек из малопроницаемого инертного материала. В качестве такого материала применён природный глинистый материал, бентонит, имеющий свойство разбухать при гидратации в 14–16 раз, а в ограниченном для свободного разбухания пространстве в присутствии воды образующий плотный гель, который препятствует дальнейшему проникновению влаги и способствует сорбции радионуклидов. В контейнере упаковки особого вида толщина слоя бентонита составляет 8 см и толщина слоя битума 2 см.

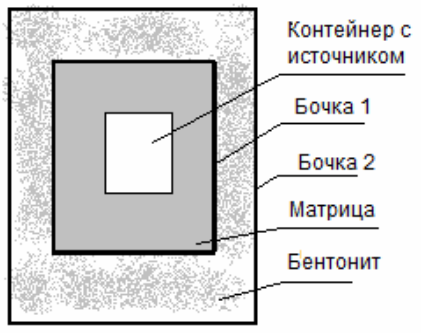


Рис. 4. Конструкция упаковки

В упаковке особого вида в качестве матрицы используется цементный раствор с бентонитом (рис. 4). Контейнер с источником Ra-226 упаковывается в чехол из губчатой резины, у которой сорбционная способность удерживания Rn-222 в десятки раз больше, чем у воды.

Сертифицированная упаковка типа «А» была использована при долговременном хранении отработанных источников на

основе Ra-226 на предприятиях и пунктах захоронения радиоактивных отходов, в странах бывшего Советского Союза, в т.ч. по проектам, финансированным МАГАТЭ [16].

V. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Радиационный мониторинг предприятия нефтегазодобычи ООО «Газлинефтегаздобыча» показал, что естественные радионуклиды и их дочерние продукты распада в основном накапливаются в виде солевых отложений на внутренних поверхностях закрытого технологического оборудования, металлоломе, местах слива пластовых вод и на линиях трубопроводов неочищенного газоконденсата.

Радиационный мониторинг предприятия УХК показал, что естественные радионуклиды и их дочерние продукты распада накапливаются на внутренних поверхностях закрытого технологического оборудования и содержатся в жидком газоконденсате, порошкообразном продукте газоконденсата. При этом в результате многократного увеличения естественного фона МЭД гамма-излучения появляются ошибки в измерении уровней сыпучих порошкообразных продуктов газоконденсата и возникают проблемы по юстировке радиоизотопных уровнемеров.

Результаты показали, что для минимизации экологических рисков и обеспечения радиоэкологической безопасности необходим постоянный и посезонный системный радиационный контроль на предприятиях нефтегазодобычи, в том числе радиационный контроль содержания в воздухе газообразных продуктов распада естественных радионуклидов.

Упаковочный комплект КМЗ РНИ «Радон» и упаковка особого вида позволяют обеспечить длительное хранение как радиоактивных отходов, содержащих естественные радионуклиды, так и отработавших назначенный срок службы источников ионизирующего излучения на основе Ra-226, исключая поступление в атмосферу рабочих помещений радионуклида Ra-226 и газообразного продукта его распада радионуклида Rn-222.

ЛИТЕРАТУРА

1. Д.О. Горбачев, Вестник СамГУ № 9, (49), 128 (2006).
2. Н.А. Титаева. Ядерная геохимия (Москва, 2000).
3. И.Н. Бекман. Радий (Москва, 2010).
4. Г.Г. Глухов, В.В. Зукау, Ю.В. Нестерова, И.В. Чикова, Вестник науки Сибири №2, 18 (2012).
5. М.Х. Хуснуллин. Геофизические методы контроля разработки нефтяных пластов (Москва, 1989).
6. С.С. Романюк, АНРИ №2, 41 (2002).
7. Д.Г. Тараборин, Вестник ОГУ 2, 74 (2005).
8. С.К. Мустафин. Радиационный мониторинг объектов добычи углеводородов. Системы контроля окружающей среды–2016. Тезисы докладов Международной научно-технической конференции (Севастополь, с. 205, 2016).
9. М.Л. Нозик. Научно-методические основы обеспечения радиоэкологической безопасности на предприятиях нефтегазового комплекса. Диссерт. канд. (Москва, 2010).
10. СанПиН №0193-06 (Ташкент, 2006).

11. А.Е. Бахур, Л.И. Мануилова, Т.М. Иванова, Д.М. Зуев, А.В. Гулынин,. АНРИ №4, 21 (2005).
12. А. Восидов. Радон и методы его определения. (Ташкент, .2015). с. 197.
13. М. Аминжонов, И.У. Ибраимов, У.Т. Ашрапов, И.И. Садиков. Вопросы атомной науки и техники **77**, 70 (2017).
14. M.I. Ojovan. Effect of gas generation in matrices containing Ra-226 sources. Materials Research Society. Symp. Proc. 757 (2003), p.113.13.1-113.13.6.
15. М.Н. Диордий, В.Е. Семенов, О.К. Карлина, Радиоактивные отходы .№2, 73, (2018).