

## **ПРОСТРАНСТВЕННАЯ МОДЕЛЬ РАСПРЕДЕЛЕНИЯ ФОРМ НАХОЖДЕНИЯ РАДИОНУКЛИДОВ В ВОДНЫХ ОБЪЕКТАХ БЫВШЕГО СЕМИПАЛАТИНСКОГО ИСПЫТАТЕЛЬНОГО ПОЛИГОНА НА ПРИМЕРЕ РУЧЬЯ КАРАБУЛАК**

А.С. Торопов

Национальный исследовательский Томский политехнический университет, г. Томск, Россия,  
torop990@gmail.com

Филиал “Институт радиационной безопасности и экологии” Национального ядерного центра Республики  
Казахстан, г. Курчатов, Казахстан

## **SPATIAL MODEL OF RADIONUCLIDE SPECIATION IN THE WATER BODIES OF THE SEMIPALATINSK TEST SITE (CASE STUDY OF KARABULAK STREAM)**

A.S. Toropov

National Research Tomsk Polytechnic University, Tomsk, Russia

The Branch “Institute of Radiation Safety and Ecology” of National Nuclear Center of the Republic of  
Kazakhstan, Kurchatov, Kazakhstan

В статье рассматриваются вопросы форм нахождения техногенных радионуклидов и некоторых элементов в воде ручья Карабулак испытательной площадки “Дегелен” Семипалатинского испытательного полигона, где проводились подземные ядерные испытания. Установлено, что преобладающей формой миграции трансурановых радионуклидов является взвешенное вещество, для урана характерны взвешенные, коллоидные и растворенные формы. При этом по течению русла ручья в пределах десятка километров суммарная активность изотопов плутония падает на один-два порядка.

The subject of the article is speciation of artificial radionuclides and some elements in the water stream Karabulak located in “Delegen” ground of the Semipalatinsk Test Site, wherein underground nuclear tests were carried out. It was established that the dominant form of transuranic radionuclides migration was suspended matter, uranium distributed between suspended, colloidal or dissolved forms. Thus it was found that the total activity of the plutonium isotopes decreases by one to two orders of magnitude downstream of the Karabulak stream within about ten kilometers.

### **Введение**

Поведение радиоактивных элементов вблизи радиационно-опасных объектов, скорость и интенсивность их миграции и влияние на состояние окружающей среды и здоровье населения являются очень актуальной научной и практической проблемой. Техногенные радионуклиды могут содержаться в значимых количествах в поверхностных водных объектах Семипалатинского испытательного полигона (СИП) и представлять потенциальную опасность для экосистем и человека, перемещаясь за территорию площадок испытаний. В особенности стоит учитывать длительность распада трансурановых элементов, период полураспада которых достигает десятки тысяч лет, что обуславливает их длительное пребывание в биосфере.

В настоящее время проведено большое количество исследований, направленных на изучение поведения радионуклидов в наземных экосистемах. При этом установлено, что основными параметрами, влияющими на миграционный процесс, являются формы их нахождения в воде и ландшафтно-геохимические условия природной среды [5, 10, 13, 18]. В окружающей среде радионуклиды могут находиться как в легко-, так и в труднорастворимых формах [10, 18], что определяется источниками их поступления и механизмами их миграционного поведения. Изначально доступным для исследований лишь суммарное содержание нуклидов в воде, либо их распределение между взвешенной и растворенной формами. Сейчас такая оценка считается неполной и необоснованной, так как биологическое действие ме-

талла определяется его физико-химическим состоянием в воде. Считалось, что радионуклиды в легко растворимых формах (прежде всего в ионной) обладают существенно большей подвижностью в окружающей среде, чем в труднорастворимых, однако последние могут мигрировать в составе коллоидных частиц различной природы [2, 4, 5, 7, 9, 10, 13, 17]. Коллоидные частицы в значительной степени определяют подвижность радионуклидов в подземных и поверхностных системах, однако, систематических исследований физико-химических форм радиоактивных элементов, в особенности трансурановых, в природных водах весьма немного. В работах [7, 13, 17] подчеркивается, что описание характера миграции плутония с подземными водами невозможна без учета вклада коллоидных частиц в этот процесс. Например, недооценка механизма “коллоидного транспорта” для плутония привела к ошибкам в расчетах скорости миграции данного радионуклида в подземных водах на Невадском полигоне [2, 5]. Несмотря на значительную роль коллоидного транспорта в миграции некоторых радионуклидов, пока нет единой модели миграционного поведения радионуклидов, учитывающей роль коллоидных частиц [17].

В 2000-е гг. проводились отдельные исследования содержания радионуклидов и форм их нахождения в водных объектах СИП в рамках различных проектов и программ [8, 11]. Авторами был изучен радионуклидный состав и формы нахождения плутония и урана в колодезной воде поселка “Саржал”, находящегося в близости границ СИП, колодцев зимовок “Северной” части

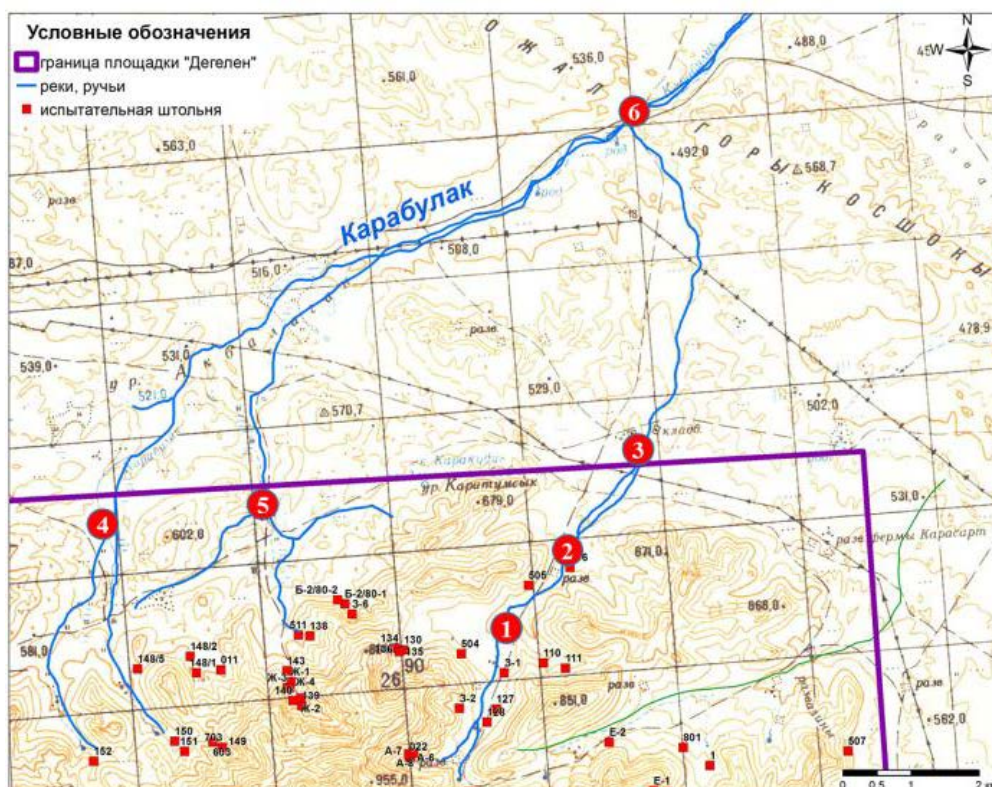


Рис. 1. Схема отбора проб воды ручья Карабулак для определения форм нахождения

СИП, ручья Узынбулак, реки Шаган и озер Телькем-1 и Телькем-2 [11]. Выделяли следующие формы нахождения: взвешенное вещество, окисленные формы урана и плутония (степени окисления +5, +6, суммарно), восстановленные формы урана и плутония (степени окисления +3, +4, суммарно) методом введения ограниченной концентрации железа и последовательного осаждения восстановленных и окисленных форм. По данным авторов [11] в воде из воронки взрыва "Телькем-2" от 89 до 98% плутония находилось в состоянии Pu (III, IV), оставшаяся часть, по их предположению, находилась в состоянии +6. Высокую долю восстановленных форм плутония они связывают с присутствием в воде большого количества растворенных органических веществ.

Настоящая работа посвящена результатом исследования форм нахождения  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  и  $^{239+240}\text{Pu}$  в природных водах СИП, на основе модельных и натуральных исследований.

### Методология исследований

**Предмет исследования.** Выбор объектов исследования для изучения форм нахождения радионуклидов в воде определялся на основе проведенных исследований и литературного материала по содержанию радионуклидов в водных объектах СИП [1, 12]. Объектом исследования послужил ручей Карабулак, один из притоков которого формируется в зоне влияния штольни 504 и имеет водосток за пределами площадки "Дегелен" (рис. 1).

Для изучения были выбраны точки (1–3) крайнего

правого притока ручья, ниже по течению от штольни 504 с промежутком между точками приблизительно 1–1,5 км до границы площадки "Дегелен", 4 и 5 – двух других притоков на границе площадки "Дегелен", 6 – ниже места слияния притоков за пределами площадки. При отборе избегали места слабого водообмена, забор производили из середины русла реки с глубины 10–15 см.

**Пробоотбор и методы исследования.** Объем проб воды составлял 10 л. Пробу воды отбирали в чистые полиэтиленовые емкости, избегая взмучивания донных осадков, попадания частиц растительности и посторонних примесей, затем фильтровали *in situ* через бумажный фильтр "белая лента" с диаметром пор 5–8 мкм, либо в течение 24 ч с момента отбора. Затем, пробу делили пополам, одна часть пробы подкислялась концентрированной азотной кислотой до  $\text{pH}=2$  и подвергалась стандартной процедуре химического концентрирования радионуклидов [15].

Другую часть фильтровали через мембранный фильтр из полиэтилентерефалата (ПЭТФ) с диаметром пор 0,2 мкм, после чего пермеат (раствор прошедший через мембрану) подкисляли и проводили концентрирование аналогичным образом. Таким образом, подобная подготовка проб позволила условно выделить следующие формы нахождения: "взвешенные вещества", "коллоидные вещества", "истинно-растворимые формы".

Фильтры с осадками после гамма-спектрометрических измерений  $^{241}\text{Am}$  и  $^{137}\text{Cs}$  подвергали процедуре "мокрого озонения" с предварительным добавлением

изотопных меток  $^{85}\text{Sr}$  и  $^{242}\text{Pu}$ . После кислотного разложения в фильтрах определяли содержание радионуклидов  $^{90}\text{Sr}$  и  $^{239+240}\text{Pu}$  соответственно методике [16]. Пересчет активности радионуклидов в материале фильтра был на объем воды, из которого получен отфильтрованный материал. При изучении форм нахождения радионуклидов р. Карабулак параллельно изучали элементный состав проб методом масс-спектрометрии с индуктивно-связанной плазмой в соответствии со стандартом РК ИСО 17294–2–2006 на приборе Elan-9000.

### Формы нахождения искусственных радионуклидов и микроэлементов в водах ручья Карабулак

Данные по формам нахождения радионуклидов, их стабильных изотопов либо элементов-аналогов в водах ручья "Карабулак" представлены в таблице 1.

Поскольку стабильные и радиоактивные изотопы одного элемента связаны между собой генетически, мож-

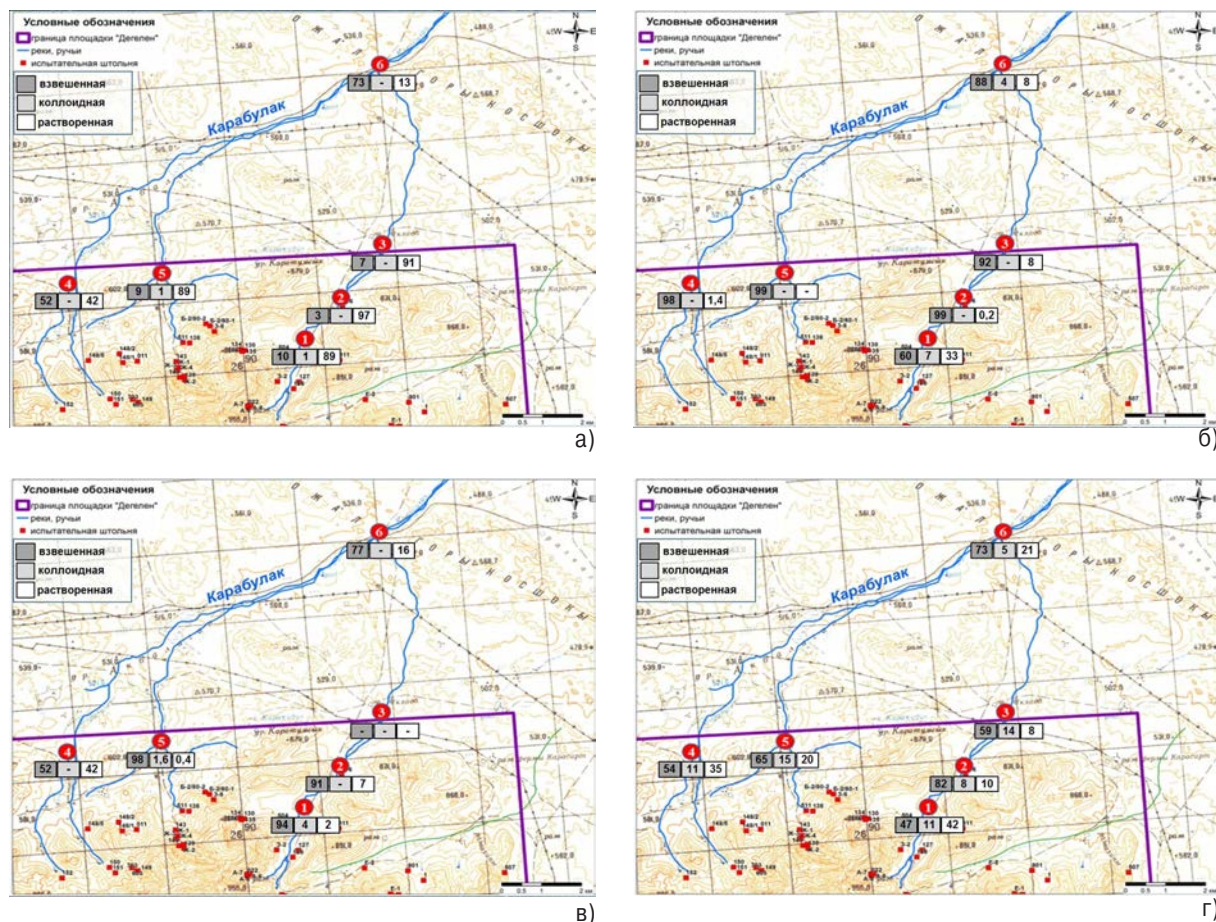
но предполагать, что они будут находиться в изотопном равновесии и существовать в одной физико-химической форме при условии, что они поступили из одного источника, и наоборот. Так, например, при исследовании поступления плутония в акваторию Карского моря с водосток реки Енисей было выявлено, что плутоний от глобальных выпадений находится преимущественно в виде взвешенного вещества, а от ядерных взрывов – в виде коллоидов низкомолекулярных органических соединений [10].

Для цезия было установлено, что распределение форм нахождения, как радиоактивного изотопа, так и стабильного было схожим. Около 95% данного радионуклида мигрирует в виде растворенных соединений. Для стабильного цезия (рис. 2а) доля растворенных форм преобладала (89–97%), кроме точек 4 и 6, где данный элемент преобладал во взвешенных формах.

Более высокие доли данного элемента, ассоцииро-

Таблица 1. Формы нахождения радионуклидов и отдельных в воде ручья Карабулак

Проба	Компонент, ед. изм.	Взвешенное вещество	Коллоидное вещество	Растворенные формы
ручей Карабулак, т. 1	$^{137}\text{Cs}$ , Бк/л	0,97	<0,04	35
	Cs, мкг/л	0,74	0,08	6,9
	$^{241}\text{Am}$ , Бк/л	0,7	<0,1	<0,02
	Sm, мкг/л	29	3,2	16
	$^{239+240}\text{Pu}$ , Бк/л	0,8	0,03	$1,9 \cdot 10^{-2}$
	U, мкг/л	380	90,4	340
ручей Карабулак, т. 2	$^{137}\text{Cs}$ , Бк/л	1,8	<0,6	62
	Cs, мкг/л	0,01	<0,03	0,53
	$^{241}\text{Am}$ , Бк/л	<2,4	<0,1	<0,2
	Sm, мкг/л	14	<0,01	0,02
	$^{239+240}\text{Pu}$ , Бк/л	0,34	< $2 \cdot 10^{-2}$	$2,5 \cdot 10^{-2}$
	U, мкг/л	42	4,2	5,1
ручей Карабулак, т. 3	$^{137}\text{Cs}$ , Бк/л	<0,9	<0,2	2,8
	Cs, мкг/л	0,09	<0,04	1,1
	$^{241}\text{Am}$ , Бк/л	<0,2	<0,7	<0,05
	Sm, мкг/л	2,8	<0,01	0,26
	$^{239+240}\text{Pu}$ , Бк/л	$6,5 \cdot 10^{-2}$	< $4 \cdot 10^{-2}$	< $5,8 \cdot 10^{-3}$
	U, мкг/л	32	7,6	15
ручей Карабулак, т. 4	$^{137}\text{Cs}$ , Бк/л	<0,7	<0,3	<1,2
	Cs, мкг/л	0,14	<0,03	0,11
	$^{241}\text{Am}$ , Бк/л	<0,4	<0,5	<0,2
	Sm, мкг/л	1,5	<0,01	0,02
	$^{239+240}\text{Pu}$ , Бк/л	$3,4 \cdot 10^{-2}$	< $2,2 \cdot 10^{-3}$	< $3,6 \cdot 10^{-3}$
	U, мкг/л	27	5,6	18
ручей Карабулак, т. 5	$^{137}\text{Cs}$ , Бк/л	<0,4	<0,08	0,3
	Cs, мкг/л	0,36	0,05	3,4
	$^{241}\text{Am}$ , Бк/л	0,4	<0,1	<0,3
	Sm, мкг/л	1,1	<0,01	<0,01
	$^{239+240}\text{Pu}$ , Бк/л	2,1	$3,4 \cdot 10^{-2}$	$8,4 \cdot 10^{-3}$
	U, мкг/л	300	70	90
ручей Карабулак, т. 6	$^{137}\text{Cs}$ , Бк/л	<0,9	<0,06	1,2
	Cs, мкг/л	0,09	<0,03	0,02
	$^{241}\text{Am}$ , Бк/л	<1,8	<0,04	<0,05
	Sm, мкг/л	0,4	0,02	0,034
	$^{239+240}\text{Pu}$ , Бк/л	$2,2 \cdot 10^{-2}$	< $4 \cdot 10^{-3}$	$9,2 \cdot 10^{-3}$
	U, мкг/л	34	2,4	10



**Рис. 2.** Пространственное распределение форм нахождения радионуклидов и отдельных элементов ручья Карабулак: а) цезий; б) самарий; в) плутоний; г) уран

ванные с взвешенным веществом, и отсутствие изотопного равновесия между стабильным и радиоактивным цезием в этом конкретном случае не может свидетельствовать о разном источнике поступления в ручьевые воды ввиду недостаточной аналитической точности использованных методов анализа.

Содержание америция в большинстве проб было ниже предела обнаружения (табл. 1). Количественные значения данного радионуклида фиксировались в пробах взвешенной формы для тт. 1 и 5 на уровне 0,7 и 0,4 Бк/л соответственно.

При изучении распределения форм нахождения самария (рис. 2б), который по химическим свойствам близок к америцию, установлено, что преобладающей формой миграции самария в водах ручья Карабулак, является взвешенная форма (от 60 до >99%), до 7% этого элемента мигрирует с коллоидным веществом, остальная часть – истинно-растворенные формы.

При этом, данный элемент в количественных значениях в коллоидной форме зафиксирован в точках 1 и 6 (ниже по течению крайнего правого притока ручья и в зоне смешения притоков соответственно). Эти данные следует принимать во внимание при оценке миграции  $^{241}\text{Am}$  в природных водах бывшего СИП, так как известно, что данный радионуклид обладает более высокой

подвижностью и миграционной способностью, чем плутоний [7, 10, 17].

Плутоний в изученном объекте (рис. 2в) находился преимущественно во взвешенном веществе (77–98% от суммарного содержания), однако низкие активности плутония, в отдельных формах нахождения, лежащие вплотную к пределу обнаружения, либо ниже его, могли привести к недооценке его миграции в коллоидной форме.

Отдельное внимание в данном исследовании было отведено урану, так как ручей относится к зоне урановой аномалии по содержанию данного элемента в донных отложениях [14]. Уран в количественных значениях присутствует во всех изученных формах нахождения (рис. 2г). Так, доля данного элемента, связанного с взвешенным веществом, колеблется от 47 до 82%, мигрирующего с коллоидными веществами – от 5 до 15%, в растворенной форме – от 10 до 42%.

Формы нахождения по доле, связанного с ними урана образуют следующий убывающий ряд: взвешенные вещества > растворенная форма > коллоидная форма.

### Заключение

При изучении форм нахождения радионуклидов ручья Карабулак выявлено, что порядка 95% данного ра-

дионуклида мигрирует в виде растворенных соединений. Содержание растворенного  $^{137}\text{Cs}$  в пробах воды колебалось в пределах  $<1,2$  до  $62$  Бк/л. Содержание америция в большинстве проб ручья Карабулак было ниже предела обнаружения. Однако, при изучении распределения форм нахождения самария, который по химическим свойствам близок к америцию, установлено, что преобладающей формой миграции данного элемента в водах ручья Карабулак, является взвешенная форма (от 60 до  $>99\%$ ), до 7% элемента мигрирует с коллоидным веществом, остальная часть – истинно-растворенные формы. Плутоний в изученном объекте находился преимущественно во взвешенном веществе (77–98% от суммарного содержания). Уран присутствовал во всех формах – связанный с взвешенным веществом – от 47 до 82%, с коллоидным веществом – от 5 до 15%, в растворенной форме – от 10 до 42%.

Таким образом, полученные результаты позволяют судить о миграционной способности и распределении форм нахождения техногенных радионуклидов в наиболее загрязненных водных объектах СИП, и оценить возможность распространения исследованных радиоактивных элементов за пределы испытательных площадок.

#### Благодарности

Автор выражает благодарность научному руководителю, докт. геол.-мин. наук, профессору Рихванову Л.П. за консультации в работе и поддержку. Также автор выражает признательность коллективу Филиала “Институт радиационной безопасности и экологии” РГП НЯЦ РК за обеспечение высокого качества аналитических работ.

Исследование выполнено в рамках программно-целевого финансирования Министерства образования и науки Республики Казахстан (номер проекта 0122/ПЦФ-14).

#### Литература

1. *Mechanisms for surface contamination of soils and bottom sediments in the Shagan River zone within former Semipalatinsk Nuclear Test Site* / A.O. Aidarkhanov et al. // *J. of Environ. Radioact.* – 2013. – Vol. 124. – P. 163–170.
2. *Buddemeier R.W., Hunt J.R. Transport of colloidal contaminants in groundwater: Radionuclide migration at the Nevada test site* // *Appl. Geochemistry.* – 1988. – Vol. 3. – P. 535–548.
3. *Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments: Technical Reports Series.* – No. 472. – Vienna: IAEA, 2010. – 76 p.
4. *Extreme iron isotope fractionation between colloids and particles of boreal and temperate organic-rich waters* / S.M. Ilina et al. // *Geochimica et Cosmochimica Acta.* – 2013. – Vol. 101. – P. 96–111.
5. *Migration of plutonium in ground water at the Nevada Test Site* / A.B. Kersting et al. // *Nature.* – 1999. – Vol. 397 (6714). – P. 56–59.
6. *Transport of low  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  atom ratio plutonium-species in the Ob and Yenisey Rivers to the Kara Sea* / O.C. Lind et al. // *Earth Planet. Sci. Lett.* – 2006. – Vol. 251, No. 1–2. – P. 33–43.
7. *Novikov A.P. Migration and concentration of artificial radionuclides in environmental objects* // *Geochemistry Int.* – 2010. – Vol. 48 (13). – P. 1263–1387.
8. *Investigation of radiological situation in the Sarzhai region of the Semipalatinsk Nuclear Test site* / N. Priest et al. // *Final report.* – 2003. – NATO SFP-9760046(99).
9. *Ryan J.N., Elimelech M. Colloid mobilization and transport in groundwater* // *Coll. Surf.* – 1996. – Vol. 107. – P. 1–56.
10. *Salbu B. Speciation of radionuclides in the environment* // *Encyclopedia of Analytical Chemistry.* – 2006. – P. 1–24.
11. *Americium, plutonium and uranium contamination and speciation in well waters, streams and atomic lakes in the Sarzhai region of the Semipalatinsk Nuclear Test Site, Kazakhstan* / L. Vintro et al. // *J. Environ. Radioact.* – 2009. – Vol. 100, No. 4. – P. 308–314.
12. *Изучение современного состояния и последствий деятельности объектов атомной энергетики Семипалатинского полигона на окружающую среду: отчет о НИР за 2009–2011 гг. (заключит.)* / рук. С.Н. Лукашенко. – № ГР 0109РК01414. – 216 с.
13. *Калмыков, С.Н. Роль коллоидных частиц в миграции актинидов с подземными водами: автореф. дис. ... докт. хим. наук.* – М., 2008. – 49 с.
14. *Изучение радиационной обстановки на территории Республики Казахстан* / П.Г. Каюков и др. // *Отчет за 2004–2008 гг. в 16 книгах.* – Алматы, 2008.
15. *Методика определения изотопов плутония – ( $^{239}+^{240}$ ), стронция-90 и америция-241 в объектах окружающей среды (почвы, растения, природные воды).* № 06–7–98 от 04 марта 1998г. – Алматы: ЦСМС, 1998.
16. *Методика определения содержания искусственных радионуклидов  $^{239,240}\text{Pu}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  и  $^{137}\text{Cs}$  в природных водах методом концентрирования* / ИЯФ НЯЦ РК. – Регистрационный № 0307/3 от 5.04.2001.
17. *Новиков А.П., Калмыков С.Н., Ткачев В.В. Формы существования и миграция актиноидов в окружающей среде* // *Рос. Хим. Ж.* – 2005. – Т. 49, № 2. – С. 119–126.
18. *Папина Т.С. Транспорт и особенности распределения тяжелых металлов в ряду: вода – взвешенное вещество – донные отложения речных экосистем* // *Аналитический обзор: монография.* – Новосибирск, 2001. – 58 с.