УДК 631.4:504.4.054:539.16

# ВЫЩЕЛАЧИВАНИЕ ТЕХНОГЕННЫХ РАДИОНУКЛИДОВ ИЗ ПОЧВ ТЕРРИТОРИИ СИП, КАК ОДИН ИЗ ОСНОВНЫХ МЕХАНИЗМОВ ЗАГРЯЗНЕНИЯ ПРИРОДНЫХ ВОД

**Богатырёва Т.Ю., Айдарханова А.К.**

*Филиал «Институт радиационной безопасности и экологии» РГП НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан*

В статье представлены экспериментальные данные по выщелачиванию $^{3}H$, $^{90}Sr$, $^{239+240}Pu$, $^{137}Cs$ из почв различных загрязненных участков Семипалатинского испытательного полигона в природные воды. Определена степень выщелачивания. Отмечено, что процесс выщелачивания радионуклидов из почв в природные воды является одним из основных механизмов их загрязнения, который количественно характеризуется степенью выщелачивания. Выщелачивание радионуклидов из почв исследуемых площадок СИП не зависит от уровня загрязнения почв. Установлено, что процесс выщелачивания радионуклидов характерен для всех участков, но его интенсивность для разных радионуклидов не одинакова. Это связано с химическими свойствами радионуклидов и их формами нахождения в почве.

## Введение

На территории Семипалатинского испытательного полигона (СИП) за время его существования было проведено 450 воздушных, наземных и подземных ядерных испытаний. Вследствие их проведения образовалось большое количество техногенных радионуклидов, которые в значимых количествах содержатся в почве и способны мигрировать в различных экосистемах, в том числе и в водных. Существует несколько механизмов загрязнения поверхностных вод на данной территории. В случае проведения наземных и экскавационных испытаний, в результате которых произошло значительное загрязнение поверхностного грунта, после образования водного объекта основным механизмом загрязнения вод является вымывание (выщелачивание) радионуклидов из прибрежного грунта и донных отложений. В случае проведения подземных ядерных испытаний – загрязнение поверхностных вод обусловлено подтоком грунтовых вод, вымывающих радионуклиды из полостей штолен и скважин [1]. Нельзя также исключать механизм загрязнения природных вод за счет глобальных выпадений при испытании ядерного оружия и радиационных аварий, несмотря на то что данный вклад является незначительным по сравнению с другими. Цель данной работы – исследование радионуклидного загрязнения природных вод в результате выщелачивания техногенных радионуклидов из почв территории СИП.

Одной из важных задач при изучении радиационной обстановки на СИП является прогнозирование поведения радионуклидов в окружающей среде, в частности, изучение процесса выщелачивания техногенных радионуклидов из почв в природные воды. В результате выщелачивания взвешенных и растворенных форм радионуклидов в природные воды их миграция резко возрастает. Таким образом, почвы испытательных площадок СИП могут являться источниками вторичного загрязнения водоемов.

## Материалы и методы исследования

Исследования проводили на образцах почвы с испытательных площадок СИП: «Опытное поле», «Балапан», «Дегелен», «Сары-Узень» и «Телькем» в местах расположения водных объектов.

Площадка «Опытное поле» являлась первой испытательной площадкой СИП, которая предназначалась для проведения атмосферных (наземных и воздушных) ядерных испытаний. В местах проведения наземных испытаний имеются воронки с навалами грунта и фрагментами оплавленной почвы, содержащей продукты ядерного взрыва. В пределах площадки «Опытное поле» существует ряд технических площадок, где проводились различные по своим характеристикам наземные ядерные испытания. По этой причине, радиоактивное загрязнение местности на площадке «Опытное поле» не является повсеместным, а приурочено непосредственно к эпицентрам проведенных ядерных испытаний, где зафиксировано максимальное содержание радионуклидов в почве. Исследуемыми участками на площадке «Опытное поле» выбраны воронки Участок № 4 и В1, заполненные водой.

Площадка «Балапан» использовалась для проведения подземных ядерных испытаний в скважинах. В результате проведенного в 1965 году экскавационного взрыва в скважине 1004 образовалась воронка глубиной более 100 м и диаметром 400 м. При заполнении воронки паводковыми водами весной этого же года образовалось «Атомное» озеро. Наиболее загрязненным является участок зоны навала «Атомного» озера, где и проводился отбор проб почвы для проведения эксперимента.

На площадке «Сары-Узень» в период с 1965 по 1980 гг. проводились подземные ядерные испытания в скважинах. В результате нештатной ситуации с выбросом грунта при проведении подземного ядерного испытания в скважине № 101 образовалась воронка диаметром 350–400 м с навалом высотой 10–15 м, дно которой заполнено водой [1]. Наиболее загрязненной в настоящее время является территория вбли-

зи скважины № 101, которая и выбрана в качестве исследуемого участка.

На площадке «Телькем» проведено 2 экскавационных взрыва. В результате проведения одиночного подземного ядерного взрыва образовалась воронка «Телькем-1» диаметром порядка 100 м и глубиной 14 м. Результаты ранее проведенных исследований показали, что радиоактивное загрязнение локализовано непосредственно вокруг воронки, где и проводился отбор почвы для проведения эксперимента [2].

Ядерные испытания на площадке «Дегелен» осуществлялись в горизонтальных выработках – штольнях. Максимальными значениями радиоактивного загрязнения отмечены, как правило, участки вблизи портала штолен. Такие участки сформированы, в основном, тремя путями: 1) нештатные ситуации при проведении ядерных испытаний; 2) вскрытие штолен после проведения испытаний; 3) вынос радиоактивности из полостей штолен водным путем [1]. Исследуемым участком испытательной площадки «Дегелен» выбран припортальный участок штольни № 177, характеризующийся высокими концентрациями техногенных радионуклидов в почве. Данные радионуклиды способны выщелачиваться в воду, так как их содержание в почве значительно превышает содержание в воде водотока.

Отбор проб почвы на пяти радиационно загрязненных участках проводился в непосредственной близости к воде (в зоне навала воронки или с припортального участка штольни) из приповерхностного слоя, в котором сосредоточена максимальная концентрация техногенных радионуклидов - $^{3}$H, $^{90}$Sr, $^{137}$Cs, $^{239+240}$Pu. Общая схема расположения точек отбора представлена на рисунке 1. Пробы почвы отбирались в соответствии со стандартной методикой [3].

После отбора пробы почвы высушивались до воздушно-сухого состояния, гомогенизировались, полученные образцы рассеивались на ситах с диаметром ячеек 1мм. Для определения степени выщелачивания перед проведением экспериментов выполнялся радионуклидный анализ проб для определения начального содержания радионуклидов в почве (таблица 1).

Результаты анализа показали, что содержание радионуклидов в почве на различных участках исследования отличается на 1–2 порядка.

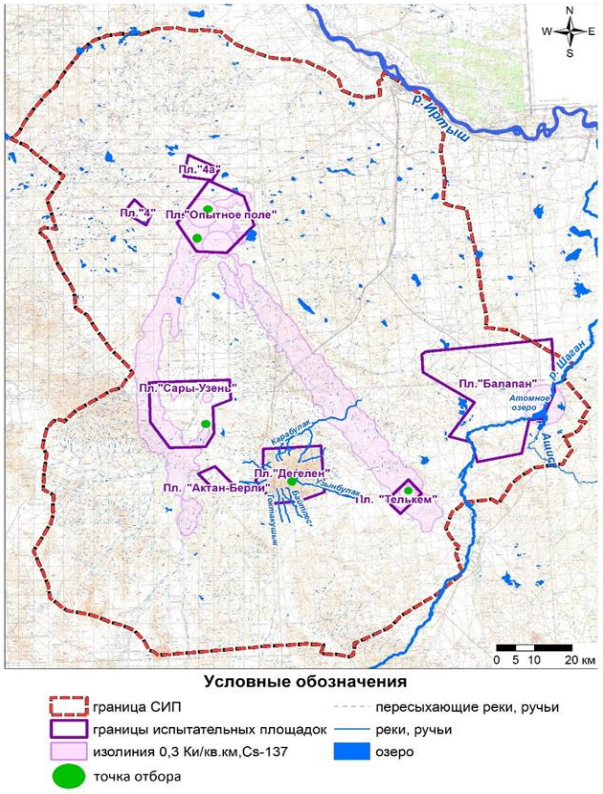


*Рисунок 1. Схема расположения участков отбора проб почвы*

Проведение эксперимента заключалось в следующем: подготовленные навески воздушно-сухой пробы почвы массой 100 г помещались в емкость и заливались выщелачивающим раствором объемом 250 мл, в качестве которого использовалась дистиллированная вода. Система постоянно перемешивалась. Через определенные промежутки времени (1-е, 10-е, 20-е, 30-е, 60-е сутки) почвенные суспензии отфильтровывались, полученные водные вытяжки анализировались на содержание техногенных радионуклидов.

Лабораторные работы по определению содержания техногенных радионуклидов в образцах почвы и водных вытяжках проводились в соответствии с методическими указаниями и инструкциями на поверенной лабораторной аппаратуре [4–8].

*Таблица 1. Результаты радионуклидного анализа проб почвы*

| Место отбора | | Удельная активность, Бк/кг | | | |
|---|---|---|---|---|---|
| | | $^{3}$H | $^{90}$Sr | $^{239+240}$Pu | $^{137}$Cs |
| «Сары-Узень» | скважина №101 | 89000 ± 9000 | 3300± 600 | 4700 ± 400 | 10800 ± 1000 |
| «Дегелен» | штольня №177 | 6800 ± 700 | 43000 ± 6000 | 21000 ± 2000 | 45 ± 5 |
| «Опытное поле» | Участок №4 | 230 ± 40 | 4200 ± 600 | 350000 ± 30000 | 11400 ± 1000 |
| | В1 | <40 | 690 ± 100 | 54000 ± 4000 | 11200 ± 1000 |
| «Телькем» | «Телькем-1» | 160 ± 45 | 710 ± 110 | 44000 ± 5000 | 3000 ± 300 |
| «Балапан» | «Атомное» озеро | 55000 ± 5500 | 5200 ± 800 | 4300 ± 400 | 6200 ± 600 |

Определение удельной активности $^{3}$H проводилось методом жидкосцинтилляционной спектрометрии, $^{90}$Sr – β-спектрометрическим методом, γ-излучающие радионуклиды – методом γ-спектрометрии. Определение содержания $^{239+240}$Pu и $^{90}$Sr проводилось методом радиохимического выделения с последующей α- и β-спектрометрией. Определение содержания низких концентраций $^{137}$Cs в водных вытяжках проводилось методом соосаждения с последующим озолением осадка для измерения на γ-спектрометре с детектором колодезного типа.

Для количественной оценки процесса выщелачивания радионуклидов из почвы в раствор использован наиболее часто применяемый в мировой практике показатель – степень выщелачивания, которая определялась расчетным методом по формуле (1) [9]:

$$n = \frac{a_n}{A_0} \cdot 100\% \qquad (1)$$

где: n – степень выщелачивания, %; $a_n$ – активность, выщелоченная за определенный период времени, Бк/кг; $A_0$ – начальная активность образца, Бк/кг.

**РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ**

Результаты исследований выщелачивания техногенных радионуклидов из почв площадок СИП представлены на рисунках 2–6.

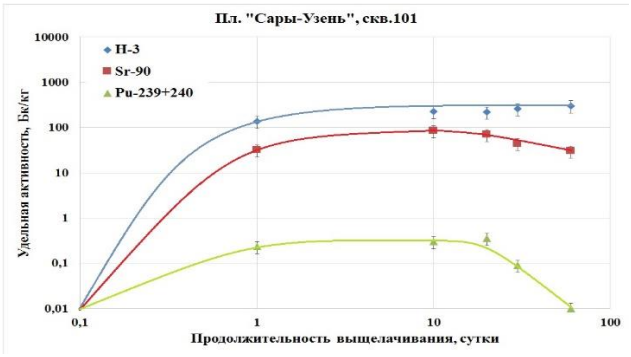


*Рисунок 2. Выщелачивание радионуклидов из почвы скважины №101, площадка «Сары-Узень»*

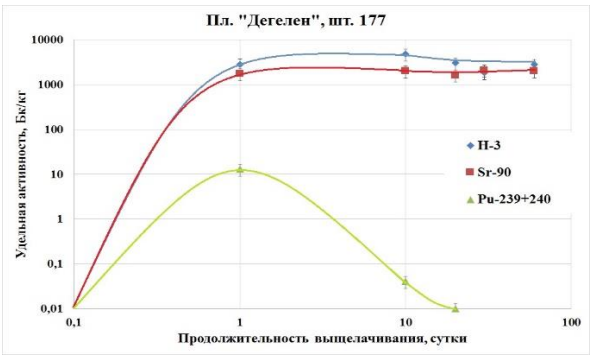


*Рисунок 3. Выщелачивание радионуклидов из почвы штольни №177, площадка «Дегелен»*

Согласно полученным данным, выщелачивание $^{3}$H прослеживается только для участков штольни № 177, скважины № 101 и «Атомное» озеро (рисунки 2–4). Сравнивая кинетические кривые выщелачивания $^{3}$H, можно отметить, что его содержание в водных вытяжках находится примерно на одном уровне, начиная с первых суток и далее, в течение всего времени проведения эксперимента.

Степень выщелачивания радионуклида $^{3}$H (в % от исходного содержания в образце) при контакте твердой фазы с раствором составила:0,25 % для участка скважины № 101; 0,8 % для «Атомного» озера; 44,5 % для штольни № 177.

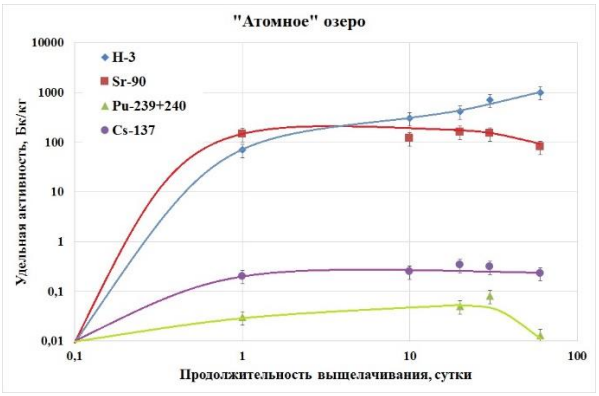


*Рисунок 4. Выщелачивание радионуклидов из почвы «Атомного» озера, площадка «Балапан»*

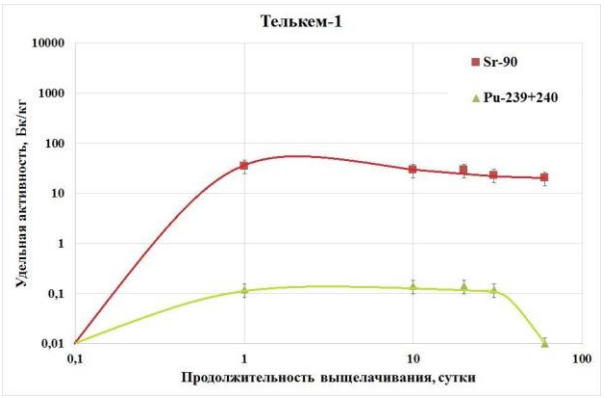


*Рисунок 5. Выщелачивание радионуклидов из почвы участка «Телькем-1», площадка «Телькем»*

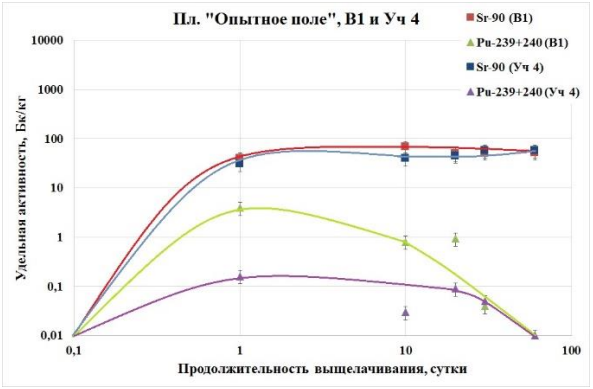


*Рисунок 6. Выщелачивание радионуклидов из почвы воронки В1 и Участка №.4, площадка «Опытное поле»*

*Таблица 2. Степень выщелачивания и формы нахождения $^{3}H$ в почве*

| Место отбора | Степень выщелачивания $^{3}H$ на 20-е сутки, % | Содержание форм нахождения $^{3}H$ в почвах исследуемых участков, % | |
|---|---|---|---|
| | | формы $^{3}H$ содержащиеся в свободной воде | связанные формы $^{3}H$ |
| штольня № 177 | 44,5 | 94,8 | 5,2 |
| «Атомное» озеро | 0,75 | 29,1 | 70,9 |
| скважина № 101 | 0,25 | 24,4 | 75,6 |

*Таблица 3. Степень выщелачивания и формы нахождения $^{239+240}Pu$ в почве*

| Место отбора | Степень выщелачивания $^{239+240}Pu$ на 20-е сутки, % | Содержание форм нахождения $^{239+240}Pu$ в почвах исследуемых участков, % | | | | |
|---|---|---|---|---|---|---|
| | | водорастворимая | обменная | органическая | подвижная | прочносвязанная |
| Участок № 4 | 0,00003 | 0,03 | <0,001 | 0,02 | 0,05 | 99,9 |
| В1 | 0,001 | — | — | — | — | — |
| скважина № 101 | 0,007 | — | — | — | — | — |
| «Телькем-1» | 0,0003 | 0,08 | 0,2 | 0,4 | 2,8 | 96,5 |
| штольня № 177 | 0,00004 | 1 | | 4,0 | 2,0 | 93,0 |
| «Атомное» озеро | 0,0009 | <ПО | <ПО | 0,02 | 0,4 | 99,6 |

Высокие значения выщелачивания $^{3}H$ из почв штольни № 177 говорят о том, что данный радионуклид в большей степени находится в водорастворимой форме. Полученные результаты согласуются с ранее представленными данными по формам нахождения $^{3}H$ в почвах штольни № 177 (таблица 2) [10].

Анализ полученных данных показал, что процесс выщелачивания $^{3}H$ из почвы в воду не зависит от его начального содержания в почве. Так, максимальная степень выщелачивания $^{3}H$ зафиксирована на площадке «Дегелен», где по результатам проведенных исследований содержание $^{3}H$ значительно ниже, чем на двух других исследуемых участках, где также был зафиксирован выход данного радионуклида (Таблица 1). Сделан вывод, что уровень загрязнения почв не влияет на процесс выщелачивания.

Степень выщелачивания $^{90}Sr$ лежит в интервале от 3 до 7 % для всех исследуемых площадок, так как $^{90}Sr$ характеризуется наибольшей растворимостью и миграционной способностью в почвах. Выщелачивание $^{137}Cs$ отмечается только для почвы с «Атомного» озера, степень выщелачивания составляет 0,004 %. $^{137}Cs$ характеризуется низкой подвижностью и преимущественным содержанием в прочносвязанной форме (более 98,2 %).

Для $^{239+240}Pu$ получены степени выщелачивания от 0,00003 до 0,007 % для всех исследуемых площадок. Вероятно, это связано с тем, что $^{239+240}Pu$ в почве находится в прочносвязанной форме [11] (таблица 3).

Начальное содержание $^{239+240}Pu$ для двух объектов площадки «Опытное поле» отличаются на порядок (таблица 1): содержание $^{239+240}Pu$ в почве на Участке № 4 составляет 350 000 Бк/кг, в воронке В1 – 54 000 Бк/кг, тогда как содержание $^{239+240}Pu$ в водных вытяжках и степени выщелачивания для воронки В1 выше, чем для Участка №4, 0,001 и 0,00003 % соответственно (рисунок 6 и таблица 3). Исходя из полученных результатов, следует, что уровень загрязнения почв не влияет на процесс выщелачивания.

## Заключение

Результаты, полученные в ходе проведенных лабораторных исследований на образцах почвы с испытательных площадок СИП показали, что процесс выщелачивания радионуклидов из почв в природные воды является одним из основных механизмов их загрязнения. Количественно данный процесс характеризуется степенью выщелачивания. Наибольшей способностью к переходу в водные растворы из почвы обладают радионуклиды $^{3}H$ и $^{90}Sr$. Переход $^{137}Cs$ и $^{239+240}Pu$ из почвы в природные воды за счет выщелачивания значительно меньше. Вероятно, это связано с тем, что данные радионуклиды в почве в большей степени находятся в прочносвязанной форме.

При рассмотрении полученных результатов отмечено, что выщелачивание радионуклидов из почв исследуемых участков не зависит от начального уровня их содержания в почве. Установлено, что процессы выщелачивания радионуклидов характерны для всех участков, но их интенсивность для разных радионуклидов не одинакова. Это связано с химическими свойствами радионуклидов и их формами нахождения в почве.

Таким образом, основываясь на полученных данных, установлено, что при мониторинге природных водных объектов, в первую очередь, необходим контроль за содержанием $^{3}H$ и $^{90}Sr$ в воде, так как они имеют максимальные значения степени выщелачивания.

Результаты исследования по выщелачиванию могут в дальнейшем послужить основой при комплексной оценке радиационной ситуации на территории полигона. Количественные показатели, полученные в результате данной работы, могут быть использованы при переходе от интенсивного отбора проб и проведения анализов к моделированию радиоэкологической ситуации на территории конкретной площадки.

**Литература**

1. Семипалатинский испытательный полигон. Современное состояние: научно-популярное издание / под ред. Лукашенко С.Н. – Павлодар: Дом печати, 2008. – С. 6–13 – ISBN 978-601-7112-07-3.
2. Кабдыракова А.М. Распределение радионуклидов в гранулометрических фракциях почвы в местах экскавационных ядерных взрывов на площадках «Телькем» на Семипалатинском испытательном полигоне / А.М. Кабдыракова, А.Е. Кундузбаева, С.Н. Лукашенко // Актуальные вопросы радиоэкологии Казахстана [Сборник трудов Института радиационной безопасности и экологии за 2014-2016гг.] / под рук. Лукашенко С.Н. – Павлодар: Дом печати, 2017. – С. 306: – ISBN 978-601-7844-53-0.
3. ГОСТ 17.4.3.01-83. Охрана природы. Почвы. Общие требования к отбору проб. – Введ. 1984-01-07. /Сборник. Охрана природы. Почвы. – М.: Изд-во стандартов,1998. – С. 29–31.
4. МИ 5.06.001.98 РК «Активность радионуклидов в объемных образцах. Методика выполнения измерений на гамма-спектрометре МИ 2143-91» – 18 с.
5. Методика измерения активности радионуклидов с использованием сцинтилляционного бета-спектрометра с программным обеспечением «Прогресс», Менделеево, – 20 с.
6. Методика определения изотопов плутония-(239+240), стронция-90, америция-241 в объектах окружающей среды: МИ 06-7-98. – Алматы, 1998.
7. Тритий. Качество воды – определение активности трития, соответствующей данной концентрации – жидкостной метод сцинтилляционного счета. Учетная регистрация в Республике Казахстан № 116/149 от 07.03.2000: ISO 9698 РК, 1989 Качество воды – определение активности трития, соответствующей данной концентрации – жидкостной метод сцинтилляционного счёта.
8. РИ 03-02-03 (А). Подготовка проб для элементного анализа методом автоклавного разложения.
9. Раимканова А.М. и др. Исследование выщелачивания техногенных радионуклидов из грунта зоны навала «Атомного» озера // Актуальные вопросы радиоэкологии Казахстана. Сборник трудов Национального ядерного центра РК за 2014–2016 г. Выпуск 6, том 1, с. 335
10. Serzhanova Z.B. et all. Assessing tritium speciation distribution in soils of radiation dangerous objects of the Semipalatinnsk test site. Book of abstracts II International conference on radioecological concentration processes, Seville, Spain, 2016, p. 54
11. Кундузбаева А.Е. и др. Сравнительная оценка форм нахождения радионуклидов в почвах некоторых участков территории СИП // Актуальные вопросы радиоэкологии Казахстана. Сборник трудов Национального ядерного центра РК за 2010 г. Выпуск 3, том 2, с.101–115.

## ТАБИҒИ СУЛАРДЫҢ ЛАСТАНУЫНЫҢ НЕГІЗГІ МЕХАНИЗМДЕРІНІҢ БІРІ РЕТІНДЕ ССП АУМАҚТЫҢ ТОПЫРАҒЫНАН ТЕХНОГЕНДІ РАДИОНУКЛИДТЕРДІҢ СІЛТІЛЕНУІ

**Т.Ю. Богатырёва, А.К. Айдарханова**

***ҚР ҰЯО РМК «Радиациялық қауіпсіздік және экология институты» филиалы, Курчатов, Қазақстан***

Бұл мақалада, табиғи суларға Семей сынақ полигонының түрлі ластанған телімдеріндегі топырақтан $^{3}H$, $^{90}Sr$, $^{239+240}Pu$, $^{137}Cs$ сілтіленуі бойынша тәжірибелік деректер ұсынылған. Сілтілену дәрежесі анықталған. Топырақтың табиғи суларда сілтілену процесі олардың ластануының негізгі механизмдерінің бірі болып табылады, және мөлшерлік түрде сілтілену дәрежесімен сипатталатыны белгіленді. Зерттеліп жатқан ССП алаңдарының топырақтарында радионуклидтердің сілтіленуі топырақтың ластану деңгейіне байланысты емес. Радионуклидтердің сілтілену процесі барлық телімдер үшін тән, алайда оның қарқындылығы түрлі радионуклидтер үшін біркелкі емес екені анықталды. Бұл радионуклидтердің химиялық қасиеттерімен және оларды топырақтан табу формаларымен байланысты.

## LEACHING OF MAN-MADE RADIONUCLIDES FROM SOIL IN THE STS TERRITORY AS ONE OF THE MAIN CONTAMINATION MECHANISMS OF NATURAL WATER

**T.Yu. Bogatyryova, A.K. Aidarkhanova**

***Branch "Institute of Radiation Safety and Ecology" RSE NNC RK, Kurchatov, Kazakhstan***

The articles gives experimental data on $^{3}H$, $^{90}Sr$, $^{239+240}Pu$, $^{137}Cs$ leaching from soil of various contaminated areas of the Semipalatinsk test site to natural water. Leaching degree has been determined. Leaching process of radionuclides from soils to natural water is noted to be one of the main contamination mechanisms, which is quantitatively characterized by leaching degree. Leaching of radionuclides from soils of STS sites of interest is not dependent on soil contamination level. It is found that le4aching process of radionuclides is characteristic of each site but its intensity for different radionuclides is not the same. This is due to chemical properties of radionuclides and their speciation in soil.