

УДК 550.424.6:504.4:628.31.034.2(574.41)

ФРАКЦИОНИРОВАНИЕ ФОРМ НАХОЖДЕНИЯ ТЕХНОГЕННЫХ РАДИОНУКЛИДОВ В ВОДНЫХ ОБЪЕКТАХ СЕМИПАЛАТИНСКОГО ИСПЫТАТЕЛЬНОГО ПОЛИГОНА

Торопов Андрей Сергеевич,
torop990@gmail.com

Национальный исследовательский Томский политехнический университет,
Россия, 634050, г. Томск, пр. Ленина, 30.

Актуальность исследования определяется способностью техногенных радионуклидов, содержащихся в значимых количествах в поверхностных водных объектах Семипалатинского испытательного полигона, перемещаться за пределы площадок ядерных испытаний. Эта способность определяется формой нахождения радиоактивных элементов. Вопрос миграции и форм нахождения техногенных радионуклидов в реальных водных объектах в настоящий момент изучен недостаточно, чтобы прогнозировать поведение радиоактивных элементов на долгосрочной основе.

Цель работы: изучить формы нахождения техногенных радионуклидов в водных объектах Семипалатинского испытательного полигона.

Методы. Распределение форм нахождения радиоактивных элементов изучали методом последовательного каскадного фракционирования. Водородный показатель воды измеряли потенциометрически с использованием прибора Анион-4100. Анализ компонентов химического состава воды и минерализации выполнен в соответствии с ГОСТ 26449.1–85. Содержание растворенного органического вещества определялось методом бихроматной окисляемости с фотометрическим окончанием на спектрофотометре ПЭ-5300ВИ. Для оценки содержания радиоактивных изотопов использовали методы радиохимического выделения с приготовлением счетного образца для альфа-спектрометрии ($^{239+240}\text{Pu}$), жидкосцинтиляционной бета-спектрометрии (^{90}Sr), а также гамма-спектрометрии с высокочувствительным полупроводниковым детектором колодезного типа на основе особо чистого германия с предварительным концентрированием для ^{137}Cs и ^{241}Am .

Результаты. Метод каскадного фракционирования при использовании комплекта мембран с убывающим размером пор подходит для выделения взвешенных, псевдоколлоидных, коллоидных и растворенных форм в природных водах. Установлен химический и изотопный состав отдельных водных объектов Семипалатинского испытательного полигона, содержание и формы нахождения радионуклидов. Выявлено, что ^{137}Cs в воде мигрирует в коллоидной и растворенной формах, преобладающая форма нахождения ^{90}Sr – растворенная, фракционирование $^{239+240}\text{Pu}$ индивидуально для каждого объекта. Для воды водотока штольни № 177 характерно преобладание растворенных форм для всех изученных радионуклидов.

Ключевые слова:

Формы нахождения, фракционирование, природные воды, радиоактивные элементы, техногенные радионуклиды, взвешенные вещества, псевдоколлоиды, коллоиды

Введение

Развитие атомной энергетики и производство ядерного топлива ставят глобальный вопрос прогнозирования развития радиационной обстановки вблизи объектов ядерно-топливного цикла. В то же время радиационная обстановка вблизи радиационно-опасных территорий, таких как Семипалатинский испытательный полигон (СИП), всегда будет объектом внимания общественности. Поведение радиоактивных элементов вблизи радиационно-опасных объектов, скорость и интенсивность их миграции и влияние на здоровье населения являются очень актуальной научной и практической проблемой [1–4].

С середины XX в. значительные количества техногенных радионуклидов попали в окружающую среду [5, 6]. Данные выбросы были результатом атмосферных ядерных испытаний [1, 6, 7], ядерных катастроф в Чернобыле и на Фукусиме [8, 9], а также утечки из хранилищ радиоактивных отходов на ПО «Маяк» [2, 10] и Хэнфорд, США [11].

За период испытаний в атмосфере на СИП в окружающую среду было выброшено порядка 100 Ки/км² различных радионуклидов [1, 3].

Водная среда является основным путем транспорта загрязнителей, в том числе и радионукли-

дов, на дальние расстояния. Техногенные радионуклиды могут содержаться в значимых количествах в поверхностных водных объектах СИП и представлять потенциальную опасность для экосистем и человека, перемещаясь за территорию площадок испытаний. В особенности стоит принимать во внимание периоды полураспада трансурановых элементов, которые достигают десятков тысяч лет, что обуславливает их длительное пребывание в биосфере.

В настоящее время проведено большое количество исследований, направленных на изучение поведения техногенных радионуклидов в наземных экосистемах [12]. При этом установлено, что основными параметрами, влияющими на миграционный процесс, являются формы нахождения радионуклидов в воде и ландшафтно-геохимические условия природной среды [13, 14].

Актуальность исследования также обусловлена трудностью изучения физико-химических форм техногенных радионуклидов, которые способны мигрировать с поверхностными водами во взвешенном, коллоидном либо растворенном состоянии. Физико-химические механизмы транспорта техногенных радионуклидов с водой исследованы недостаточно, что связано как с методическими

трудностями, так и с объективной сложностью определения форм нахождения радионуклидов и элементов в водных системах из-за их ультрамалых количеств [15, 16].

Для формирования качественной физико-химической модели миграции и математической модели массопереноса техногенной радиоактивности необходимо более детальное изучение состояния радионуклидов, их сорбционного взаимодействия с компонентами водных систем и способности изменять форму нахождения в зависимости от основных физико-химических параметров воды. Для этого требуется изучение вероятных форм нахождения техногенных радионуклидов в реальных пробах.

В окружающей среде радионуклиды могут находиться как в легко-, так и в труднорастворимых формах [17], что определяется источниками их поступления и влияет в дальнейшем на их миграцию. Изначально доступным для исследований было лишь суммарное содержание радиоактивных элементов в воде либо их распределение между взвешенной и растворенной формами. Такая оценка в настоящий момент считается недостаточной, так как биологическое воздействие радиоактивных элементов в воде определяется их способностью образовывать коллоиды либо связываться коллоидами [18]. Считалось, что радионуклиды в легкорастворимых формах (прежде всего в ионной) обладают существенно большей подвижностью в окружающей среде, чем в труднорастворимых, но последние могут мигрировать в составе коллоидных частиц различной природы [2, 4, 5 19–22]. Так, было установлено, что $^{239+240}\text{Pu}$ в составе коллоидных частиц обладал существенно большей подвижностью, чем было предсказано с позиций термодинамического моделирования [23–25]. Коллоидные частицы могут в значительной степени определять мобильность радионуклидов в водных системах, но детальных исследований физико-химических форм радиоактивных элементов, в особенности трансурановых, в природных водах весьма немного. В работах [2, 4, 18, 19, 26] подчеркивается, что описание характера миграции $^{239+240}\text{Pu}$ с подземными водами невозможно без учета вклада коллоидных частиц в этот процесс. Например, недооценка механизма «коллоидного переноса» для данного радионуклида привела к ошибкам в расчетах скорости миграции данного радионуклида в подземных водах на Невадском полигоне [18, 26, 27]. Велика роль растворенных органических веществ, непосредственно влияющих на долю переносимых в форме коллоидов и псевдоколлоидов радионуклидов, в воде [27]. Общепринятой модели миграции радиоактивных элементов, учитывающей роль коллоидных частиц, пока нет [2, 19]. Кроме этого, природные системы содержат значительные количества минералов и органических веществ, для которых характерны как окислительные, так и восстановительные свойства, поэтому теоретический расчет преобла-

дающих окислительно-восстановительных форм радионуклидов для реальных объектов затруднителен и также может привести к ошибочным результатам [2, 4, 10, 18].

Ранее на территории СИП также проводились отдельные исследования содержания радиоактивных элементов и форм их нахождения в водных объектах [28, 29]. Авторами изучены формы нахождения $^{239+240}\text{Pu}$ и U в колодезной воде поселка «Саржал», находящегося в близости границ СИП, колодцев зимовок «Северной» части СИП, ручья Узынбулак, реки Шаган, а также озер Телькем-1 и Телькем-2 [28]. В указанных работах определялось взвешенное вещество, окисленные формы U и Pu (степени окисления (+5), (+6), суммарно), восстановленные формы U и $^{239+240}\text{Pu}$ (степени окисления (+3), (+4), суммарно) методом введения ограниченной концентрации железа и последовательного осаждения восстановленных и окисленных форм. По данным [29] в воде из воронки взрыва «Телькем-2» от 89 до 98 % Pu находилось в состоянии (+3), (+4), 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.

Существует ряд методов, которые позволяют изучать формы нахождения техногенных радионуклидов, токсичных элементов и других микрокомпонентов природных вод. К ним относятся ультрафильтрация, ультрацентрифугирование, обратный осмос, электрофорез, мембранная экстракция, ряд инструментальных микроскопических и спектроскопических методов (электронная микроскопия, масс-спектрометрия с вторичной ионизацией, рентгеновская спектроскопия и др.), а также их комбинации [30].

Для разделения истинно растворенных, коллоидных и взвешенных форм нахождения в природных водах наиболее приемлемым является метод каскадного фракционирования, который позволяет выделять формы нахождения радионуклидов в зависимости от размера частиц при ступенчатом фильтровании с убыванием размеров пор фильтра.

Объекты и методы исследования

Выбор объектов исследования для изучения форм нахождения радионуклидов в воде определялся на основе результатов проведенных исследований и литературного материала по содержанию радионуклидов в водных объектах СИП [31–33]. Для исследования механизма «коллоидного транспорта» было принято решение более подробно изучить водные объекты СИП, где фиксировались максимальные уровни содержания $^{239+240}\text{Pu}$ в воде (выше 0,1 Бк/л) [1].

Объектами исследования послужили водотоки припортовых участков штолен № 177 и 503 площадки «Дегелен», воронка В-1 площадки «Опытное поле», а также озеро Телкем-2.

Отбор проб воды проводился в соответствии с

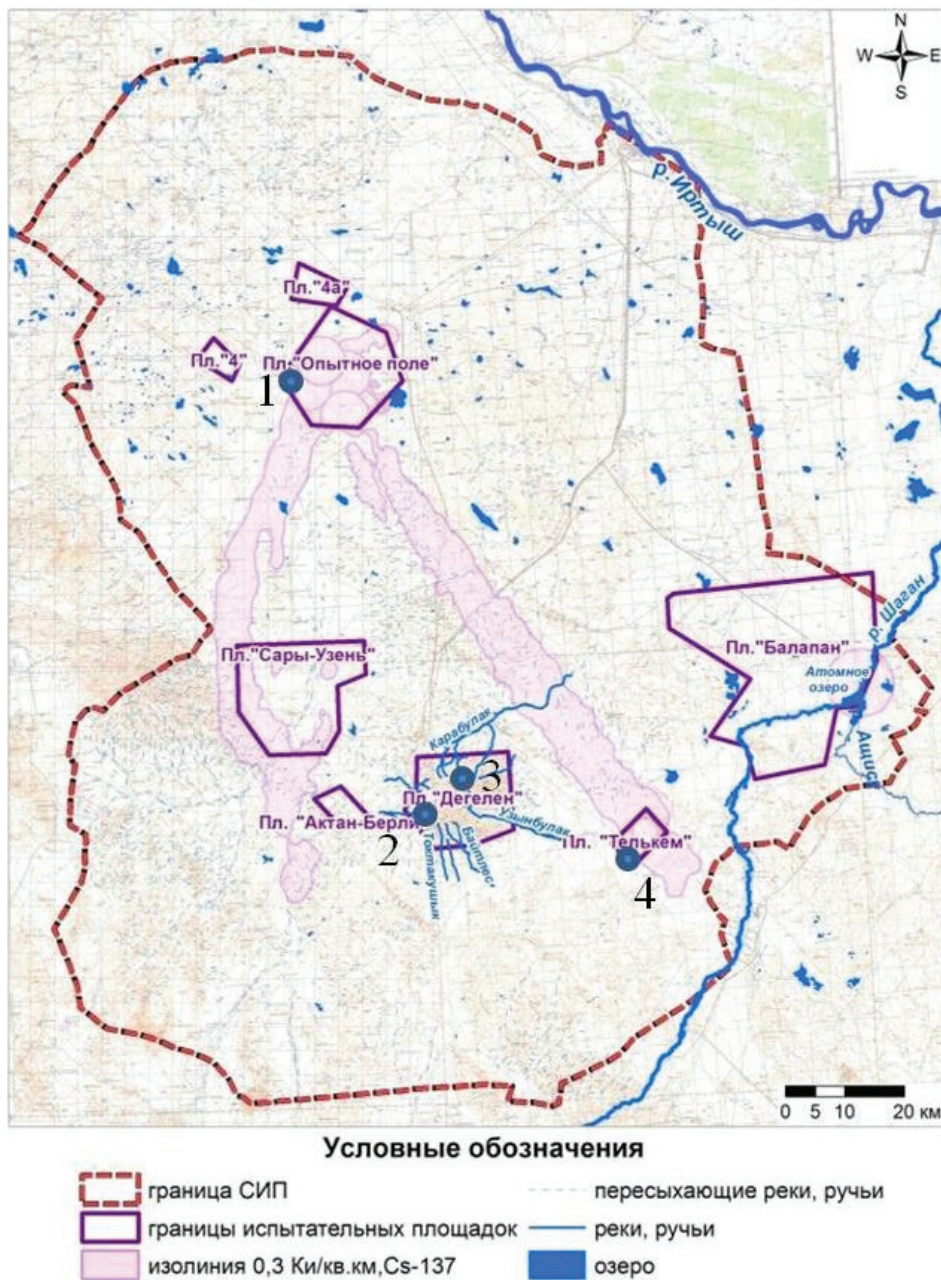


Рис. 1. Схема отбора проб воды на территории СИП: 1 – воронка В-1 площадки «Опытное поле»; 2 – водоток штольни № 503 площадки «Дегелен»; 3 – водоток штольни № 177 площадки «Дегелен»; 4 – озеро «Телкем-2»

Fig. 1. Scheme of water sampling on Semipalatinsk Test Site (STS) territory: 1 is the V-1 crater lake of «Opytnoe pole»; 2 is no. 503 tunnel outflowing waterstream of «Degelen» ground; 3 is no. 177 tunnel outflowing waterstream of «Degelen» ground; 4 is the «Telkem-2» crater lake

ГОСТ 17.1.5.05–85 «Общие требования к отбору проб поверхностных и морских вод, льда и атмосферных осадков», избегая мест слабого водообмена. Объем проб воды составлял 10 л. Пробу отбирали в чистые полиэтиленовые емкости, избегая попадания посторонних примесей. Эксперименты по каскадной фильтрации осуществляли непосредственно на месте, сразу после отбора проб.

В основе методологии данного исследования лежит метод каскадной фильтрации, который позволяет выделять взвешенные, коллоидные и раство-

ренные формы радионуклидов и микроэлементов.

С целью выделения различных форм нахождения радионуклидов был выбран каскад из шести фильтров, который позволяет выделять взвешенные, растворенные формы нахождения, а также коллоиды и псевдоколлоиды различного размера. Изначально проводили префильтрацию проб, при помощи нейлонового сетчатого фильтра с размером пор 10000 нм. В ходе фракционирования водный раствор последовательно пропускали через фильтры с различным диаметром пор – от

10000 нм (самые крупные) до 3 нм (самые мелкие). На последних ступенях фильтрации для определения коллоидных форм нахождения были использованы ультрафильтрационные мембраны. Эти фильтры способны задерживать молекулы определенного размера, зависящие от размера пор, которые можно выразить через номинальную отсекаемую молекулярную массу. Принято считать, что 90 % незаряженных молекул сферической формы молекулярной массы задержится на мембране [34]. Таким образом, мембраны с размерами 3 и 7 нм отсекают молекулы с молекулярной массой 10 и 100 кДа соответственно. Такое обозначение по величине отсекаемой молекулярной массы является общепринятым для фильтров с диаметром пор, близким к размерам молекул веществ [2, 4, 14, 15, 27].

На рис. 2 представлена схема последовательной каскадной фильтрации при определении форм нахождения техногенных радионуклидов в воде и принятые обозначения для каждой фракции, которых придерживались в данной работе.

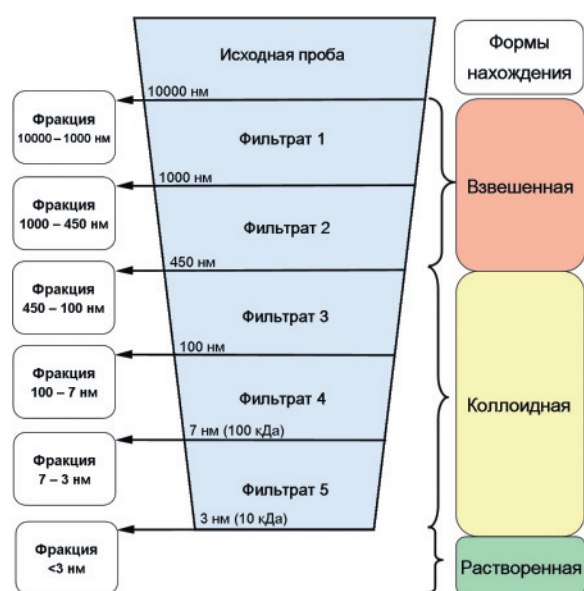


Рис. 2. Схема последовательной каскадной фильтрации для определения форм нахождения техногенных радионуклидов

Fig. 2. Scheme of sequential cascade filtration for technogenic radionuclides speciation

Таким образом, указанными фильтрами с определенной селективностью можно извлекать из воды взвешенные вещества, псевдоколлоиды, коллоиды различного размера, в том числе низкомолекулярные соединения гуминовых и фульвокислот, а также другие компоненты.

Тем не менее, необходимо иметь в виду определенную условность такого разделения, поскольку размер частиц различной природы в природных водах перекрывается и в отдельных фракциях могут присутствовать частицы различного происхождения. Так, к примеру, для диапазона 100–1000 нм характерны частицы взвешенного

вещества, коллоиды гидроксидов Fe, агрегаты молекул органического вещества гуминовой природы, а также бактерии. Данный факт необходимо принимать во внимание при интерпретации экспериментальных данных.

В процессе каскадной фильтрации после каждой ступени отбиралась аликвота объемом 1500 мл. Параллельно из каждого полученного раствора отбиралась аликвота объемом 20 мл для определения содержания растворенного органического углерода.

В аликвоты проб, отобранные в процессе каскадной фильтрации для радиохимического анализа, добавляли концентрированную HNO_3 до $\text{pH}=1-2$ и подогревали при температуре $90-95^\circ\text{C}$ в течение 2 часов для перевода всех форм нахождения в растворенную и предотвращения адсорбционных потерь, после чего пробы передавались на определение радионуклидов ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{241}Am и $^{239+240}\text{Pu}$. В случае если в образцах воды фиксировались значения растворенного органического углерода выше предела обнаружения, пробы для радиохимического анализа дополнительно обрабатывались концентрированной H_2O_2 из расчета 1 мл на 1 л воды и кипятились дополнительно до полного улетучивания перекиси водорода аналогично аналитическим процедурам, используемым при радиохимическом выделении изотопов радионуклидов.

Макрокомпонентный состав воды и величину минерализации определяли в соответствии с ГОСТ 26449.1–85. pH определялся потенциометрически с помощью иономера Анион-4100. Содержание органического вещества измеряли методом бихроматной окисляемости с фотометрическим окончанием на спектрофотометре ПЭ-5300ВИ.

Радиохимические и спектрометрические анализы проводились по стандартным методикам. Определение ^{137}Cs и ^{241}Am проводили гамма-спектрометрическим методом на гамма-спектрометре с полупроводниковым детектором из особо чистого Ge колодезного типа производства ORTEC после предварительного концентрирования с добавлением меток ^{134}Cs и ^{243}Am , ^{90}Sr – методом бета-спектрометрии с использованием жидкостной фракционной спектрометрии TriCarb серии 2900, удельную активность $^{239+240}\text{Pu}$ определяли после предварительного радиохимического выделения с электроосаждением на металлическом диске методом альфа-спектрометрии с использованием спектрометрической установки Alpha Analyst, производства Canberra.

Следует отметить, что из-за инструментальной погрешности измерений радионуклидов в фильтрате, которая могла достигать 20 %, после этапов каскадного фракционирования часто наблюдалось недостаточное изменение остаточной удельной активности изучаемых радиоактивных элементов. Так, например, при использовании в расчетах долей форм нахождения по разнице удельной активности в фильтрате для ^{90}Sr , все 100 % будут относиться к фракции менее 3 нм, однако данный радионуклид

фиксируется непосредственно на фильтрах. Поэтому фильтры, использованные для фракционирования, подвергали кислотному разложению и измеряли в них содержание радионуклидов. Это позволило выявить более достоверное распределение радиоактивных элементов при фракционировании.

Результаты и их обсуждение

Изученные водные объекты СИП представляют собой водоемы и водотоки, что важно различать для понимания условий миграции радионуклидов. К первым можно отнести озеро воронки В-1 площадки «Опытное поле», а также озеро «Телкем-2». В отличие от озер, водотоки (водотоки припортовых участков штолен площадки «Дегелен») являются подвижной динамической средой.

Физико-химические параметры изученных водоисточников, а также их макрокомпонентный состав представлены в таблице.

Как видно из таблицы, изученные водоисточники существенно различаются между собой, по степени минерализации и значениям общехимических параметров воды. Так, воды водотоков штолен площадки «Дегелен» являются пресными, воды водоемов В-1 и Телкем-2 – солоноватыми. По значению рН воды исследованных объектов являются нейтральными либо слабощелочными.

Содержание органических веществ во всех изученных водных объектах было ниже предела обнаружения (<5 мг/л), за исключением воды воронки В-1, где содержание растворенного органического углерода составило 35 мг/л.

По анионно-катионному составу воды водотока штольни № 177 были сульфатно-гидрокарбонатными натриево-кальциевыми, штольни № 503 – сульфатными кальциевыми, озера «Телкем-2» – хлоридно-сульфатными натриевыми, воронки В-1 – сульфатно-хлоридно-гидрокарбонатными натриевыми.

Водный режим изученных объектов и характер их питания может оказать влияние на распространение радионуклидного загрязнения и распределение форм их нахождения. Для этого был изучен изотопный состав природных вод (рис. 3).

Как видно из рисунка, водотоки припортовых штолен существенно отклоняются от линии метеорных вод. Такое распределение можно объяснить либо испарительным концентрированием инфльтрационных вод метеогенного формирования за счет весеннего стока, либо существованием источника питания штольневых вод в условиях литологической и гидрогеологической закрытости, а также сочетанием данных факторов. Единичные данные изотопного состава ввиду большого многообразия накладывающихся факторов, направленность которых может быть различной, не позволяют сделать однозначные выводы. Изотопный состав стабильных изотопов $^2\text{H}/^{18}\text{O}$ воды воронки В-1 совпадает с локальной линией метеорных вод, что говорит о питании водоема за счет осадков. Вода озера «Телкем-2» по изотопному составу близка к линии метеорных вод. Небольшой сдвиг изотопного состава может объясняться конденсированием испаренной влаги с водного зеркала озера в поверхностном слое, где производился отбор проб.

Исследованиями С.Б. Субботина и Ю.В. Дубасова [33] установлено, что проведение подземных ядерных взрывов на площадке «Дегелен» СИП привело к значительной деформации массива горных пород и образованию зон дробления, провальных воронок и трещин. Данные явления способствовали улучшению проницаемости горных пород и усилению нисходящей фильтрации. В связи с этим поверхностный водоток частично перешел в подземный водоток.

По их же данным, процесс радиоактивного загрязнения подземных и поверхностных природных вод на испытательной площадке «Дегелен» СИП продолжается по сей день и имеет относительно стабильный характер [33].

Таким образом, химический и изотопный состав природных вод может оказать влияние и на распределение форм нахождения и на их миграцию в водной среде.

Исследование форм нахождения техногенных радионуклидов в водных объектах СИП

Формы нахождения техногенных радионуклидов ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{241}Am , $^{239+240}\text{Pu}$ исследованы методом

Таблица. Химический состав воды исследованных водоисточников СИП

Table. Chemical composition of water of STS water bodies

Место отбора Sampling point	pH	Минерализация, мг/л TDS, mg/l	POB, мг/л DOC, mg/l	Размерность Unit of measurement	Содержание катионов Cations			Содержание анионов Anions		
					Na ⁺ +K ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	Cl ⁻	HCO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻
шт. № 177 «Дегелен» № 177 tunnel «Degelen»	8,20	740	<5	мг/л/mg/l	160	70	20	30	240	340
				мг-экв, %/mg-eq, %	58	29	13	7	34	60
шт. № 503 «Дегелен» № 503 tunnel «Degelen»	6,80	520	<5	мг/л/mg/l	25	110	20	8,0	80	320
				мг-экв, %/mg-eq, %	13	68	19	3	16	81
Оз. Телкем-2 Telkem-2 crater lake	8,05	8950	<5	мг/л/mg/l	2400	310	440	3800	400	1800
				мг-экв, %/mg-eq, %	66	10	24	71	4	25
Воронка В-1, «Опытное поле» V-1 crater lake, «Opytnoe pole»	7,20	1960	35	мг/л/mg/l	480	120	80	420	530	600
				мг-экв, %/mg-eq, %	65	17	20	36	26	37

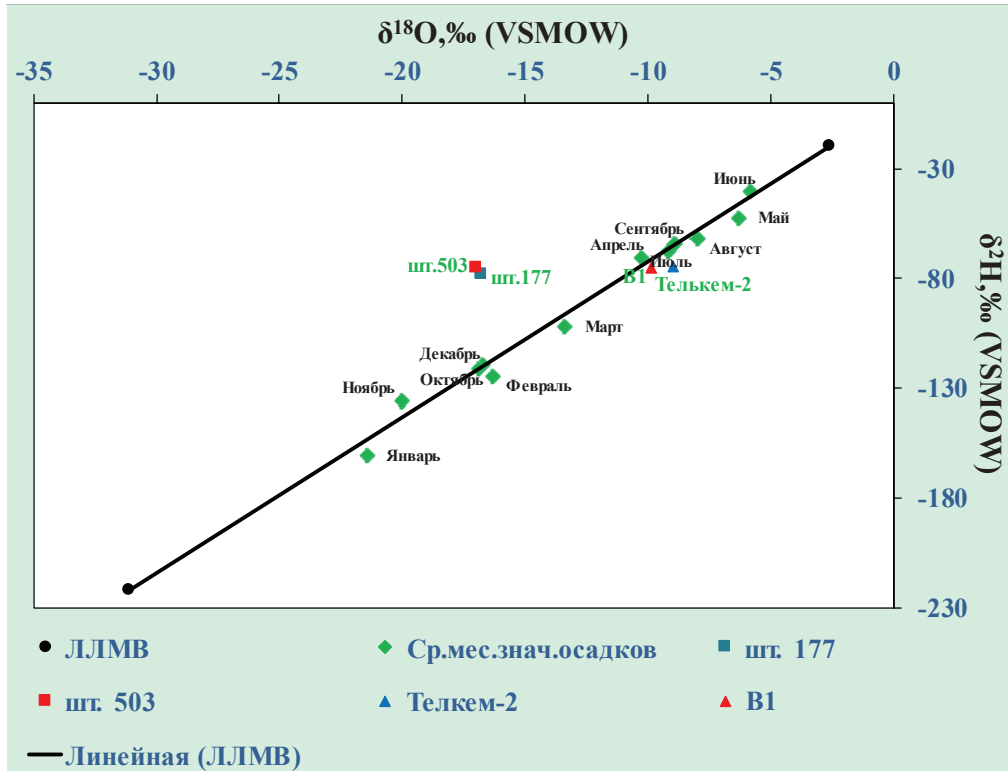


Рис. 3. Отношение стабильных изотопов $^2\text{H}/^16\text{O}$ в природных водах Семипалатинского испытательного полигона относительно эталона VSMOW (Венский стандарт среднеокеанической воды). ЛЛМВ – локальная линия метеорных вод, 2016 г.

Fig. 3. Ratio of stable isotopes $^2\text{H}/^16\text{O}$ in the natural waters of the Semipalatinsk test site relative to the reference VSMOW (Vienna Standard of Middle Oceanic Water). ЛЛМВ (LLMW) is a local meteoric water line, 2016

каскадного фракционирования на примере четырех водных объектов СИП, представленных двумя водотоками штолен площадки «Дегелен» и искусственными водоемами – озера Телкем-2 и воронки В-1 площадки «Опытное поле».

Исходное содержание ^{137}Cs составило в воде водотока штольни № 503 площадки «Дегелен» составило $(4,9 \pm 1)$ Бк/л, ^{90}Sr – (150 ± 15) Бк/л, $^{239+240}\text{Pu}$ – $(0,70 \pm 0,07)$ Бк/л, и ^{241}Am находились ниже уровня обнаружения.

При изучении исходного содержания радионуклидов в воде водотока штольни № 177 площадки «Дегелен» установлено, что вода после префильтрации (<10000 нм) содержала $(5,0 \pm 0,5)$ Бк/л ^{137}Cs , (680 ± 70) Бк/л ^{90}Sr , и $^{239+240}\text{Pu}$ – $(0,58 \pm 0,06)$ Бк/л, удельная активность ^{241}Am была ниже предела обнаружения.

Удельная активность ^{90}Sr после стадии префильтрации в воде озера Телкем-2 составила (190 ± 20) Бк/л, $^{239+240}\text{Pu}$ – $(0,35 \pm 0,03)$ Бк/л. Содержание таких радионуклидов, как ^{137}Cs и ^{241}Am , было ниже уровня детектируемой активности в фильтрате, однако данные радионуклиды зафиксированы в веществе на фильтрах 10000 и 1000 мкм в суммарном количестве $(2 \pm 0,3) \cdot 10^{-2}$ Бк/л и $(8 \pm 2) \cdot 10^{-3}$ Бк/л соответственно для ^{137}Cs и ^{241}Am при пересчете на объем воды, прошедший через фильтр.

Начальное содержание в воде воронки В-1 радионуклида ^{137}Cs составило $(0,51 \pm 0,05)$ Бк/л, ^{90}Sr –

$(5 \pm 0,5)$ Бк/л, $^{239+240}\text{Pu}$ – $(0,83 \pm 0,08)$ Бк/л. Выявлено, что удельная активность ^{241}Am была ниже предела обнаружения, как и в других изученных водных объектах.

Результаты по фракционированию форм нахождения ^{137}Cs представлены на рис. 4.

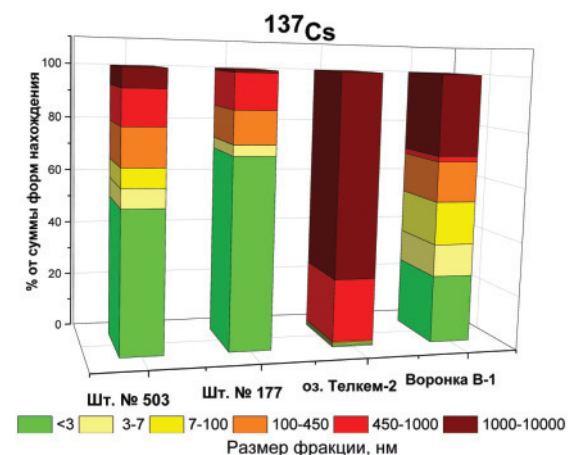


Рис. 4. Распределение форм нахождения ^{137}Cs в водных объектах СИП при каскадной фильтрации

Fig. 4. Distribution of ^{137}Cs speciation in water bodies of STS by cascade filtration

Так, удельная активность ^{137}Cs в воде водотока штольни № 503 площадки «Дегелен» после всего

каскада фильтров сохранялась на уровне $3,6 \pm 0,4$ Бк/л (72 % от исходного содержания). При этом на фильтрах, задерживающих частицы с размером, характерным для коллоидов (от 3 до 450 нм), не было выявлено значимого уменьшения количества ^{137}Cs . В воде озера Телкем-2 радиоцезий находился преимущественно во фракциях 450–10000 нм, что характерно для взвешенных веществ.

Распределение форм нахождения данного радиоактивного элемента в воде воронки В-1 площадки «Опытное поле» показало, что преобладающими были фракции 1000–10000 нм и <3 нм (31 и 25 % соответственно), на долю коллоидных фракций приходилось от 12 до 16 % от суммы всех форм нахождения. Нахождение радиоцезия в коллоидах можно объяснить более высокой концентрацией органического вещества и коллоидных веществ из-за условий гидрологического режима водоемов. Содержание данного радионуклида снижалось по мере прохождения воды через каскад фильтров (рис. 5).

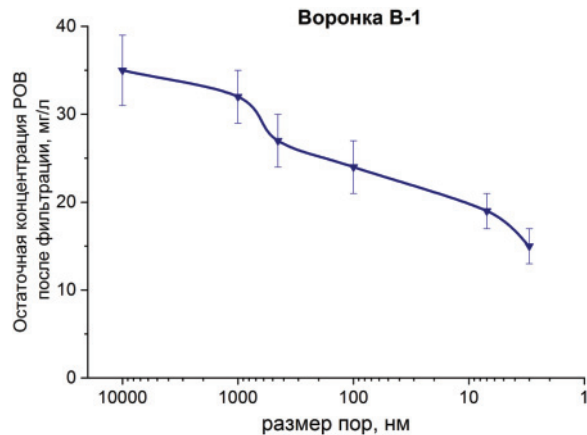


Рис. 5. Распределение остаточной концентрации органического вещества воронки В-1 площадки «Опытное поле» при каскадном фильтровании

Fig. 5. Cut-off of dissolved organic carbon (DOC) in water of V-1 crater lake of «Opytnoe pole» with cascade filtration

Так, согласно представленным на рис. 5 данным, наибольшее снижение концентрации органического вещества было отмечено после фильтрации через мембраны с диаметром пор 450 и 7 нм, что соответствует отсечению псевдоколлоидов и крупных коллоидов.

По данным [35], в воде рек и водохранилищ Беларуси до 70 % ^{137}Cs приходится на растворенные формы, а количество данного радионуклида во взвешях изменчиво и в значительной степени зависит от сезона, типа водного объекта (водохранилище или река), количества органического вещества и глинистых частиц во взвешенном состоянии.

На рис. 6 приведены данные по распределению форм нахождения ^{90}Sr в водных объектах СИП.

Активность ^{90}Sr при каскадной фильтрации воды озера Телкем-2 снижалась от 190 ± 20 до 160 ± 20 Бк/л. С учетом погрешности измерений, которая не перекрывает изменения уровня оста-

точной удельной активности после каждой стадии фильтрации, можно считать, что основной формой миграции ^{90}Sr в воде озера Телкем-2 являются растворенные соединения.

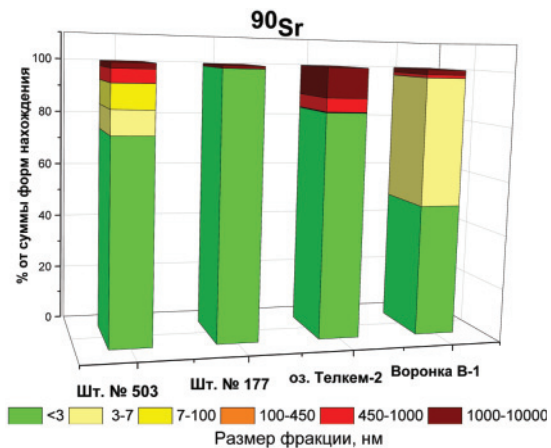


Рис. 6. Распределение форм нахождения ^{90}Sr в водных объектах Семипалатинского испытательного полигона при каскадной фильтрации

Fig. 6. Distribution of ^{90}Sr speciation in water bodies of STS by cascade filtration

При ступенчатой фильтрации воды водотока штольни № 503 через каскад фильтров в диапазоне от 10000 нм до 100 нм удельная активность ^{90}Sr сохранялась на исходном уровне. Далее по каскаду после фильтра через мембрану 7 нм (100 кДа) активность данного радионуклида снизилась на 13 %, и после фильтра с отсечением номинальной молекулярной массы 10 кДа – еще на 13 %. Тем не менее, преобладающей формой нахождения для ^{90}Sr в воде водотока штольни 503 осталась растворенная (75 %), на долю взвешенных и коллоидных форм приходилось порядка 25 % в сумме.

В воде воронки В-1 было отмечено распределение ^{90}Sr между растворенной и коллоидной (3–7 нм). Такая особенность водного объекта также может быть связана с наличием в воде растворенных органических веществ.

Отдельными авторами [36] отмечается способность радиостронция связываться с взвешенным веществом природных вод в количестве до 15 % от удельной активности в растворенной форме.

Данные по формам нахождения $^{239+240}\text{Pu}$ в водных объектах СИП представлены на рис. 7.

Результаты радионуклидного анализа изотопов $^{239+240}\text{Pu}$ в воде водотока штольни № 503 показали, что его удельная активность при каскадной фильтрации уменьшилась примерно на порядок. Остаточная активность $^{239+240}\text{Pu}$ после финальной стадии фильтрации составила $(6,2 \pm 0,6) \cdot 10^{-2}$ Бк/л. При этом распределение по формам нахождения было следующим: на фильтре 1000 нм было задержано 17 % от суммы форм нахождения, 450 нм – 6 %, 100 нм – 21 %, 7 нм – 43 % и 3 нм – 1 %. Таким образом, установлено, что данный радионуклид в воде водотока штольни 503 способен находиться в форме взвесей, коллоидов разного размера и оставаться в растворенной форме.

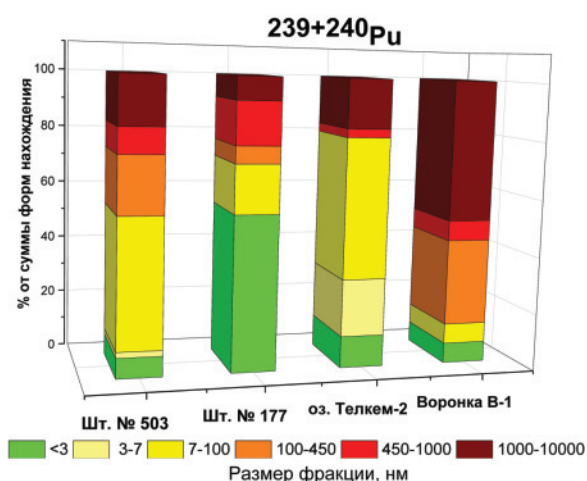


Рис. 7. Распределение форм нахождения $^{239+240}\text{Pu}$ в водных объектах Семипалатинского испытательного полигона при каскадной фильтрации

Fig. 7. Distribution of $^{239+240}\text{Pu}$ speciation in water bodies of STS by cascade filtration

При изучении форм нахождения $^{239+240}\text{Pu}$ в воде водотока штольни № 177 также наблюдалось распределение активности по всему каскаду фильтров, однако в указанном водоисточнике порядка 50 % рассматриваемого радиоактивного элемента находилось в растворенной форме.

Величина удельной активности $^{239+240}\text{Pu}$ в воде озера Телкем-2 снизилась в процессе каскадного фракционирования в 10 раз с $(0,35 \pm 0,03)$ до $(4 \pm 0,4) \cdot 10^{-2}$ Бк/л, при этом самое значительное уменьшение активности наблюдалось после фильтрации через 1000 нм и 7 нм (в 1,5 и 3,2 раза от содержания после предфильтрации соответственно). Таким образом, в данном объекте $^{239+240}\text{Pu}$ находилась во фракции 1000–10000 нм – 31 % от суммы форм нахождения, коллоидов размером 7–100 нм – 37 %, коллоидов размером 3–7 нм (10–100 кДа) – 20 %, и в растворенной форме – порядка 11 %.

Удельная активность $^{239+240}\text{Pu}$ в процессе фракционирования форм нахождения в воде воронки В-1 площадки «Опытное поле» снизилась от 0,83 до 0,06 Бк/л, примерно на порядок, как и для оз. Телкем-2 и воды водотока штольни 503. Преобладающими формами нахождения были крупные взвеси (порядка 50 % от суммы форм нахождения), псевдоколлоиды (30 %), а также коллоиды различных размеров.

В литературе отмечалось [19, 37], что для поверхностных вод порядка 70 % $^{239+240}\text{Pu}$ может присутствовать в форме растворенных комплексов и не связано с

коллоидными частицами, в отличие от грунтовых вод, где более 90 % $^{239+240}\text{Pu}$ было связано с коллоидами.

В то же время данный радиоактивный элемент обладает низкой кинетикой растворимости в случае если источник его происхождения – «горячие частицы». Из-за аналитической сложности часто не удается зафиксировать частицы, содержащие плутоний выше предела обнаружения методами микроанализа, например методом сканирующей электронной микроскопии, однако при их растворении (либо растворении фильтра со взвешенным веществом, выделенных из природных вод) $^{239+240}\text{Pu}$ и другие трансурановые радионуклиды фиксируются спектрометрическими методами либо методами ИСП-МС, как это было показано в [38, 39] и установлено в данной работе.

Полученные результаты показывают, что распределение форм нахождения данного радионуклида индивидуально для каждого объекта и не зависит от типа водоисточника. Достоверного влияния химического состава изученных водоисточников на формы нахождения $^{239+240}\text{Pu}$ не выявлено.

Заключение

Было изучено распределение радионуклидов и формы их нахождения методом каскадного фракционирования в водных объектах Семипалатинского испытательного полигона. Обобщая результаты по определению форм нахождения радионуклидов в водных объектах СИП, выявлено, что для ^{90}Sr характерна растворенная форма нахождения, для $^{239+240}\text{Pu}$ свойственно нахождение в различных формах, с преобладанием коллоидных и растворенных, при этом соотношение форм нахождения зависит от изучаемого объекта. Формами нахождения ^{137}Cs в водных объектах СИП являются взвешенные вещества, псевдоколлоиды, а также растворенное вещество. Для установления достоверного влияния физико-химических характеристик водных объектов, их типа и водного режима на распределение форм нахождения радиоактивных элементов в изученных водных объектах требуются дополнительные исследования.

Исследование частично профинансировано за счет средств программно-целевого финансирования Министерства образования и науки Республики Казахстан (номер проекта 0122/ПЦФ-14), гранта Министерства образования и науки Российской Федерации (госзадание № 5.10015.2017/5.2/ДААД).

Автор выражает признательность коллективу Филиала «Институт радиационной безопасности и экологии» НЯЦ РК за организацию полевых работ и проведение лабораторных исследований.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. 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 0109РКО1414. – 216 с.
2. Калмыков С.Н. Роль коллоидных частиц в миграции актинидов с подземными водами: автореф. дис... д-ра наук. – М., 2008. – 49 с.

3. Программа целевого финансирования Министерства образования и науки Республики Казахстан 0122/ПЦФ-14. Разработка новых функциональных материалов на основе полиэтилентерефталатных и поликарбонатных трековых мембран, проведение фундаментальных и опытно-конструкторских исследований по применению новых типов и видов мембран: отчет о НИР за 2015 г. (промежут.) / рук. К.К. Кадыржанов. № ГР 0115РКО2950. – 189 с.

4. Novikov A.P. Migration and concentration of artificial radionuclides in environmental objects // *Geochemistry Int.* – 2010. – V. 48 (13). – P. 1263–1387.
5. Turner N.B., Ryan J.N., Saiers J.E. Effect of desorption kinetics on colloid-facilitated transport of contaminants: Cesium, strontium, and illite colloids // *Water Resour. Res.* – 2006. – V. 42. – № 12. – P. 1–17.
6. Aarkrog A. Input of anthropogenic radionuclides into the World Ocean // *Deep. Res. P. II Top. Stud. Oceanogr.* – 2003. – V. 50. – № 17–21. – P. 2597–2606.
7. Lelieveld J., Kunkel D., Lawrence M.G. Global risk of radioactive fallout after major nuclear reactor accidents // *Atmos. Chem. Phys.* – 2012. – V. 12. – № 9. – P. 4245–4258.
8. Castrillejo M. et al. Reassessment of ⁹⁰Sr, ¹³⁷Cs, and ¹³⁴Cs in the Coast of Japan Derived from the Fukushima Dai-ichi Nuclear Accident // *Environ. Sci. Technol.* – 2016. – V. 50. – № 1. – P. 173–180.
9. Smith J.N. et al. Recent Transport History of Fukushima Radioactivity in the Northeast Pacific Ocean // *Environ. Sci. Technol.* – 2017. – V. 51. – № 18. – P. 10494–10502.
10. Novikov A.P. et al. Colloid Transport of Plutonium in the Far-Field of the Mayak Production Association, Russia // *Science.* – 2006. – V. 314. – № 5799. – P. 638–641.
11. Zachara J.M. et al. Sorption of Cs+ to micaceous subsurface sediments from the Hanford site, USA // *Geochim. Cosmochim. Acta.* – 2002. – V. 66. – № 2. – P. 193–211.
12. Папина Т.С. Транспорт и особенности распределения тяжелых металлов в ряду: вода – взвешенное вещество – донные отложения речных экосистем / Аналитический обзор (монография). – Новосибирск: ИВЭП СО РАН, 2001. – 58 с.
13. Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments: Technical Reports Series. – Vienna: IAEA, 2010. – № 472. – 76 p.
14. Salbu B. et al. Challenges associated with the behaviour of radioactive particles in the environment // *J. Environ. Radioact.* Elsevier Ltd. – 2018. – V. 186. – P. 101–115.
15. Speciation, size fractionation and transport of trace elements in the continuum soil water–mire–humic lake–river–large oligotrophic lake of a Subarctic watershed / S. Ilina, S. Lapitskiy, Y. Alekhin et al. // *Aquatic Geochemistry.* – 2016. – V. 22. – P. 65–95.
16. Ure A.M., Davidson C.M. Chemical Speciation in the Environment. – Glasgow: Blackwell Science, 2002. – 452 p.
17. Durrant C.B. et al. Cesium sorption reversibility and kinetics on illite, montmorillonite, and kaolinite // *Sci. Total Environ.* – 2018. – V. 610–611. – P. 511–520.
18. Buddemeier R.W., Hunt J.R. Transport of colloidal contaminants in groundwater: Radionuclide migration at the Nevada test site // *Appl. Geochemistry.* – 1988. – V. 3. – P. 535–548.
19. Поведение плутония в окружающей среде / А.Ю. Романчук, С.Н. Калмыков, А. Керстинг, М. Заварин // *Успехи химии.* – 2016. – Т. 85. – С. 995–1010.
20. Buck E.C., Bates J.K. Microanalysis of colloids and suspended particles from nuclear waste glass alteration // *Applied Geochemistry.* – 1999. – V. 14 (5). – P. 635–653.
21. Xie J. et al. Colloid-associated plutonium transport in the vadose zone sediments at Lop Nor // *J. Environ. Radioact.* – 2013. – V. 116. – P. 76–83.
22. Lind O.C. et al. Transport of low ²⁴⁰Pu/²³⁹Pu atom ratio plutonium-species in the Ob and Yenisey Rivers to the Kara Sea // *Earth Planet. Sci. Lett.* – 2006. – V. 251. – № 1–2. – P. 33–43.
23. Ryan J.N., Elimelech M. Colloid mobilization and transport in groundwater // *Coll. Surf.* – 1996. – V. 107. – P. 1–56.
24. Smith P.A., Degueldre C. Colloid-facilitated transport of radionuclides through fractured media // *J. of Contaminant Hydrology.* – 1993. – V. 13. – P. 143–166.
25. Colloid transport of radionuclides: Yucca Mountain performance assessment / K.A. Traexler, S. Utsunomiya, A.B. Kersting, R.C. Ewing // *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.* – 2004. – V. 807. – P. 653–658.
26. Kersting A.B. et al. Migration of plutonium in ground water at the Nevada Test Site // *Nature.* – 1999. – V. 397 (6714). – P. 56–59.
27. Di Bonito M., Lofts S., Groenenberg J.E. Models of Geochemical Speciation: Structure and Applications // *Environmental Geochemistry. Chapter 11.* 2nd ed. – Berlin: Elsevier, 2018. – P. 237–305.
28. Vintró L. et al. Americium, plutonium and uranium contamination and speciation in well waters, streams and atomic lakes in the Sarzhak region of the Semipalatinsk Nuclear Test Site, Kazakhstan // *J. Environ. Radioact.* – 2009. – V. 100. – № 4. – P. 308–314.
29. Priest N. et al. Investigation of Radiological Situation in the Sarzhak Region of the Semipalatinsk Nuclear Test Site. – Final report, 2003. – NATO Sfp-9760046(99).
30. Поляков Е.В., Егоров Ю.В. Современные методы определения физико-химического состояния микроэлементов в природных водах // *Успехи химии.* – 2003. – Т. 72. – № 11. – С. 1103–1114.
31. Aidarkhanov A.O. et al. Mechanisms for surface contamination of soils and bottom sediments in the Shagan River zone within former Semipalatinsk Nuclear Test Site // *J. of Environ. Radioact.* – 2013. – V. 124. – P. 163–170.
32. Паницкий А.В., Лукашенко С.Н., Магашева Р.Ю. Характерные особенности радиоактивного загрязнения компонентов природной среды экосистем водотоков штолен горного массива Дегелен // *Актуальные вопросы радиоэкологии Казахстан.* – Павлодар: Дом печати, 2010. – Вып. 2. – С. 57–102.
33. Subbotin S.B., Dubasov Y.V. Radioactive contamination of water of the Degelen mountain massif // *Radiochemistry.* – 2013. – V. 55. – № 6. – P. 647–654.
34. Osmonics Pure Water Handbook. 2nd ed. – Minnetonka: Osmonics Inc., 1997. – 149 p.
35. Научное решение чернобыльских проблем: итоги 10-летия (основные итоги научного обеспечения реализации государственных программ Республики Беларусь по преодолению последствий катастрофы на Чернобыльской АЭС на 1996–2000 и 2001–2005 гг.). – Гомель: РНИУП «Институт радиологии», 2006. – 103 с.
36. Руденко Л.И., Скляр В.Я., Хан В.Е. Изучение фазового распределения и форм нахождения радионуклидов в воде из внутренних помещений объекта «Укрытие» и в грунтовых водах промплощадки методом ультрафильтрации // *Доп. НАН України.* – 1998. – № 6. – С. 153–157.
37. Linnik V.G. et al. Radioactive contamination of the Balchug (Upper Yenisey) floodplain, Russia in relation to sedimentation processes and geomorphology // *Sci. Total Environ.* – 2005. – V. 339. – P. 233–251.
38. Bolsunovsky A. et al. Unique diversity of radioactive particles found in the Yenisei River floodplain // *Nature: Sci. Rep.* – 2017. – V. 7. – № 1. – P. 1–10.
39. Radioactive Particles in the Environment: Sources, Particle Characterization and Analytical Techniques // IAEA TECDOC. – No. 1663. – Vienna. – 2011. – 90 p.

Поступила 08.02.2018 г.

Информация об авторах

Торопов А.С., аспирант Инженерной школы природных ресурсов Национального исследовательского Томского политехнического университета.

UDC 550.424.6:504.4:628.31.034.2(574.41)

FRACTIONATION OF TECHNOGENIC RADIONUCLIDES SPECIES IN WATER BODIES OF SEMIPALATINSK TEST SITE

Andrey S. Toropov,
torop990@gmail.com

National Research Tomsk Polytechnic University,
30, Lenin avenue, Tomsk, 634050, Russia.

The relevance of the study is defined by the ability of technogenic radionuclides contained in significant quantities in surface water bodies of the Semipalatinsk test site, to move beyond the nuclear test sites. This ability is determined by the speciations of radioactive elements. The issue of migration and influence of species of technogenic radionuclides in water bodies has not been studied enough to predict the behavior of radioactive elements on a long-term basis.

The aim of the work is to study the speciation of radionuclides in the water bodies of the Semipalatinsk test site.

Methods. Distribution of species of radioactive elements was studied using the sequential cascade fractionation. Water pH was defined potentiometrically using Anion-4100 device. The components of chemical composition of natural water and total dissolved solids were determined in accordance with All Union State standard 26449.1–85. The content of dissolved organic matter was identified by the dichromatic oxidation method with a measurement on a PE-5300VI spectrophotometer. The content of radioactive isotopes was determined by radiochemical separation methods with the preparation of a counting sample for alpha spectrometry of $^{239+240}\text{Pu}$, liquid-scintillation beta spectrometry of ^{90}Sr , and highly sensitive gamma spectrometry with a well type high-purity germanium semiconductor detector after preconcentration for ^{137}Cs and ^{241}Am .

Results. The cascade fractionation method using a set of membranes with decreasing pore size is suitable for separation of suspended, pseudocolloidal, colloidal and dissolved species in natural waters. The author has obtained the data of chemical and isotopic composition of individual water bodies of the Semipalatinsk test site as well as content and speciations of radionuclides. It was found that ^{137}Cs in water migrates in colloid and dissolved forms, the predominant species of ^{90}Sr is dissolved, fractionation of $^{239+240}\text{Pu}$ was specific for each water body. The water of the waterstream outflowing from tunnel No. 177 is characterized by the predominance of dissolved form for all studied radionuclides.

Key words:

Speciation, fractionation, natural waters, radioactive elements, technogenic radionuclides, suspended matters, pseudocolloids, colloids

The research was partially funded due to the target financing of the Ministry of Education and Science of the Republic of Kazakhstan (project no. 0122/ПЦФ-14), grant of the Ministry of Education and Science of the Russian Federation (state task no. 5.10015.2017/ДААД).

The author appreciates the team of the Branch «Institute of radiation safety and ecology» NNC RK for field works and laboratory investigations.

REFERENCES

1. *Izuchenie sovremennogo sostoyaniya i posledstviy deyatelnosti ob'ektov atomnoy energetiki Semipalatinskogo poligona na okruzhayushchuyu sredy* [Study of the current state and consequences of the activities of nuclear power facilities of the Semipalatinsk test site on the environment]. Final report on R&D 2009–2011. Ed. by S.N. Lukashenko. No. NR 0109PK01414. 216 p.
2. Kalmykov S.N. *Rol kolloidnykh chastits v migratsii aktinidov s podzemnymi vodami*. Avtoreferat Diss. Dokt. nauk [The role of colloidal particles in migration of actinides with groundwater. Dr. Diss. Abstract]. Moscow, 2008. 49 p.
3. *Programma tselevogo finansirovaniya Ministerstva obrazovaniya i nauki Respubliki Kazakhstan 0122/PCF-15. Razrabotka novykh funktsionalnykh materialov na osnove polietilentereftalatnykh i polikarbonatnykh trekovykh membran, provedenie fundamentalnykh i opytно-konstruktorskiikh issledovaniy po primeneniyu novykh tipov i vidov membran* [Targeted financing program of the Ministry of Education and Science of the Republic of Kazakhstan 0122/TFP-15. Development of new functional materials based on polyethylene terephthalate and polycarbonate track membranes, conducting fundamental and experimental design studies on the use of new types and types of membranes]. Report on R&D for 2015. Ed. by K.K. Kadyrzhanov. No. NR 0115RK02950. 189 p.
4. Novikov A.P. Migration and concentration of artificial radionuclides in environmental objects. *Geochemistry Int.*, 2010, vol. 48 (13), pp. 1263–1387.
5. Turner N.B., Ryan J.N., Saiers J.E. Effect of desorption kinetics on colloid-facilitated transport of contaminants: Cesium, strontium, and illite colloids. *Water Resour. Res.*, 2006, vol. 42, no. 12, pp. 1–17.
6. Aarkrog A. Input of anthropogenic radionuclides into the World Ocean. *Deep. Res. P. II Top. Stud. Oceanogr.*, 2003, vol. 50, no. 17–21, pp. 2597–2606.
7. Lielieveld J., Kunkel D., Lawrence M.G. Global risk of radioactive fallout after major nuclear reactor accidents. *Atmos. Chem. Phys.*, 2012, vol. 12, no. 9, pp. 4245–4258.
8. Castrillejo M. Reassessment of ^{90}Sr , ^{137}Cs and ^{134}Cs in the Coast off Japan Derived from the Fukushima Dai-ichi Nuclear Accident. *Environ. Sci. Technol.*, 2016, vol. 50, no. 1, pp. 173–180.
9. Smith J.N. Recent Transport History of Fukushima Radioactivity in the Northeast Pacific Ocean. *Environ. Sci. Technol.*, 2017, vol. 51, no. 18, pp. 10494–10502.
10. Novikov A.P. Colloid Transport of Plutonium in the Far-Field of the Mayak Production Association, Russia. *Science*, 2006, vol. 314, no. 5799, pp. 638–641.
11. Zachara J.M. Sorption of Cs+ to micaceous subsurface sediments from the Hanford site, USA. *Geochim. Cosmochim. Acta.*, 2002, vol. 66, no. 2, pp. 193–211.
12. Papina T.S. *Transport i osobennosti raspredeleniya tyazhelykh metallov v ryadu: voda –vzveshennoe veshchestvo – donnye otlozheniya rechnykh ekosistem* [Transport and features of the distribution of heavy metals in the series: water – suspended mat-

- ter – bottom sediments of river ecosystems. Analytical review.]. Novosibirsk, SB RAS Press, 2001. 58 p.
13. *Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments: Technical Reports Series*. Vienna, IAEA, 2010. No. 472. 76 p.
 14. Salbu B. Challenges associated with the behaviour of radioactive particles in the environment. *J. Environ. Radioact.*, 2018, vol. 186, pp. 101–115.
 15. Ilina S., Lapitskiy S., Alekhin Y. Speciation, size fractionation and transport of trace elements in the continuum soil water–microhumic lake–river–large oligotrophic lake of a Subarctic watershed. *Aquatic Geochemistry*, 2016, vol. 22, pp. 65–95.
 16. Ure A.M., Davidson C.M. *Chemical Speciation in the Environment*. Glasgow, Blackwell Science, 2002. 452 p.
 17. Durrant C.B. Cesium sorption reversibility and kinetics on illite, montmorillonite, and kaolinite. *Sci. Total Environ.*, 2018, vol. 610–611, pp. 511–520.
 18. Buddemeier R.W., Hunt J.R. Transport of colloidal contaminants in groundwater: Radionuclide migration at the Nevada test site. *Appl. Geochemistry*, 1988, vol. 3, pp. 535–548.
 19. Romanchuk A.Yu., Kalmykov S.N., Kersting A.B., Zavarin M. Behavior of plutonium in the environment. *Russ. Chem. Rev.*, 2016, vol. 85, no. 9, pp. 995–1010. In Rus.
 20. Buck E.C., Bates J.K., Microanalysis of colloids and suspended particles from nuclear waste glass alteration. *Applied Geochemistry*, 1999, vol. 14 (5), pp. 635–653.
 21. Xie J. Colloid-associated plutonium transport in the vadose zone sediments at Lop Nor. *J. Environ. Radioact.*, 2013, vol. 116, pp. 76–83.
 22. Lind O.C. Transport of low $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ atom ratio plutonium-species in the Ob and Yenisey Rivers to the Kara Sea. *Earth Planet. Sci. Lett.*, 2006, vol. 251, no. 1–2, pp. 33–43.
 23. Ryan J.N., Elimelech M. Colloid mobilization and transport in groundwater. *Coll. Surf.*, 1996, vol. 107, pp. 1–56.
 24. Smith P.A., Degueldre C. Colloid-facilitated transport of radionuclides through fractured media. *J. of Contaminant Hydrology*, 1993, vol. 13, pp. 143–166.
 25. Traexler K.A., Utsunomiya S., Kersting A.B., Ewing R.C. Colloid transport of radionuclides: Yucca Mountain performance assessment. *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.*, 2004, vol. 807, pp. 653–658.
 26. Kersting A.B. Migration of plutonium in ground water at the Nevada Test Site. *Nature*, 1999, vol. 397 (6714), pp. 56–59.
 27. Di Bonito M., Lofts S., Groenenberg J.E. Models of Geochemical Speciation: Structure and Applications. *Environmental Geochemistry*, Ch. 11. 2nd ed. Berlin, Elsevier B.V., 2018. pp. 237–305.
 28. Vintró L. 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. *J. Environ. Radioact.*, 2009, vol. 100, no. 4, pp. 308–314.
 29. Priest N. *Investigation of Radiological Situation in the Sarzhai Region of the Semipalatinsk Nuclear Test Site*. Final report, 2003. NATO SfP-9760046(99).
 30. Polyakov E.V., Egorov Yu.V. Sovremennyye metody opredeleniya fiziko-khimicheskogo sostoyaniya mikroelementov v prirodnykh vodakh [Modern methods for determining physico-chemical state of microelements in natural waters]. *Uspekhi khimii*, 2003, vol. 72, no. 11, pp. 1103–1114.
 31. Aidarkhanov A.O. Mechanisms for surface contamination of soils and bottom sediments in the Shagan River zone within former Semipalatinsk Nuclear Test Site. *J. of Environ. Radioact.*, 2013, vol. 124, pp. 163–170.
 32. Panitskiy A.V., Lukashenko S.N., Magasheva R.Yu. Kharakternye osobennosti radioaktivnogo zagryazneniya komponentov prirodnoy sredy ekosistem vodotokov shtolen gornogo massiva Degelen [Peculiarities of radioactive contamination of environmental components of tunnel outflowing waterstreams ecosystems of massif Delegen]. *Aktualnye voprosy radioekologii Kazakhstana* [Current issues of radioecology of Kazakhstan]. Pavlodar, Dom pechati Publ., 2010. Iss. 2, pp. 57–102.
 33. Subbotin S.B., Dubasov Y.V. Radioactive contamination of water of the Degelen mountain massif. *Radiochemistry*, 2013, vol. 55, no. 6, pp. 647–654.
 34. *Osmonics Pure Water Handbook*. 2nd ed. Minnetonka, Osmonics Inc., 1997. 149 p.
 35. *Nauchnoe reshenie chernobylskikh problem: itogi 10-letiya (osnovnye itogi nauchnogo obespecheniya realizatsii gosudarstvennykh programm Respubliki Belarus po preodoleniyu posledstvy katastrofy na Chernobylskoy AES na 1996–2000 i 2001–2005 gg.)* [Scientific solution of the Chernobyl problems: the results of the 10th anniversary (the main results of scientific support for the implementation of the state programs of the Republic of Belarus for overcoming the consequences of the Chernobyl catastrophe for 1996–2000 and 2001–2005)]. Gomel, RNIP «Institute of Radiology» Publ., 2006. 103 p.
 36. Rudenko L.I., Sklyar V.Ya., Khan V.E. Izuchenie fazovogo raspredeleniya i form nakhozhdeniya radionuklidov v vode iz vnutrennikh pomescheny obekta «Ukrytie» i v gruntovykh vodakh promplohchadki metodom ultrafiltratsii [Study of phase distribution and speciations of radionuclides in water from the interior of the «Ukrytie» and the industrial site in groundwater by ultrafiltration]. *Rep. NAS of Ukraine*, 1998, no. 6, pp. 153–157.
 37. Linnik V.G. Radioactive contamination of the Balchug (Upper Yenisey) floodplain, Russia in relation to sedimentation processes and geomorphology. *Sci. Total Environ.*, 2005, vol. 339, pp. 233–251.
 38. Bolsunovskiy A. Unique diversity of radioactive particles found in the Yenisei River floodplain. *Nature: Sci. Rep.*, 2017, vol. 7, no. 1, pp. 1–10.
 39. *Radioactive Particles in the Environment: Sources, Particle Characterization and Analytical Techniques*. IAEA TECDOC., No. 1663, Vienna, 2011, 90 p.

Received: 8 February 2018.

Information about the authors

Andrey S. Toropov, postgraduate student, National Research Tomsk Polytechnic University.