

На правах рукописи

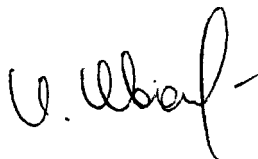
Иванов Иван Александрович

**МИГРАЦИЯ УРАНА И ТРАНСУРАНОВЫХ ЭЛЕМЕНТОВ
В ПОДЗЕМНЫХ ВОДАХ РАЙОНА РАЗМЕЩЕНИЯ ОТКРЫТОГО
ХРАНИЛИЩА ЖИДКИХ РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ оз. КАРАЧАЙ
(ПО «МАЯК», ЧЕЛЯБИНСКАЯ ОБЛ.)**

25.00.36 - Геоэкология

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени
кандидата технических наук



Озерск-2004

Работа выполнена в Центральной заводской лаборатории ФГУП «Производственное объединение «Маяк», г.Озерск Челябинской обл.

Научный руководитель: член-корреспондент РАН, профессор,
доктор геолого-минералогических наук
В.И.Величкин

Научный консультант: кандидат технических наук
Е.Г.Дрожко

Официальные оппоненты: доктор технических наук
Т.А.Гупало
ВНИПИпромтехнологии (ВНИПИПТ)

доктор геолого-минералогических наук,
профессор
Э.Ф.Емлин
Уральская государственная горно-
геологическая академия (УГГГА)

Ведущая организация: ФГУПП «Гидроспещгеология» МПР РФ,
г.Москва

Защита состоится 8 декабря 2004 г. в 14 часов
на заседании диссертационного совета ДСр 201.016.01
при ФГУП «Производственное объединение «Маяк»
по адресу: 456780, г.Озерск Челябинской области, ул.Ермолаева, 18.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке Центральной заводской лаборатории ФГУП «ПО «Маяк».

Автореферат разослан 1 ноября 2004 г.

Ученый секретарь
диссертационного совета,
кандидат химических наук



Е.А.Демченко

Общая характеристика работы

Актуальность проблемы. С 1951 года и по настоящее время озеро Карачай (водоем 9, В-9) является поверхностным хранилищем жидких радиоактивных отходов (ЖРО) ПО «Маяк». На протяжении этого периода оз. Карачай служило и продолжает оставаться источником радионуклидного загрязнения подземных вод, которое происходит путем инфильтрации радиоактивных растворов через проницаемое ложе водоема. В районе водоема был организован регулярный радиационный контроль за техногенным загрязнением, распространяющимся от оз. Карачай. До настоящего времени контроль радионуклидного загрязнения подземных вод в районе оз. Карачай ведется по элементам, имеющим наиболее значительные концентрации в водах водоема - стронцию-90, цезию-137, кобальту-60, рутению-106, тритию. Долгоживущие альфа-излучающие нуклиды, объемная активность которых в воде В-9 на несколько порядков ниже, чем бета- и гамма-излучающих нуклидов, не рассматривались как значимый источник негативного воздействия на подземную гидросферу. Однако, в последнее время вопросам миграции урана и ТУЭ в подземных водах стало уделяться очень серьезное внимание, что нашло отражение в научных программах, выполняемых с начала 1990-х годов по решению Межведомственного координационного научно-технического совета по проблеме оз. Карачай, возглавляемого акад. Н.П. Лаверовым. Проблему изучения основных закономерностей поведения ТУЭ в подземных водах района оз. Карачай как остро назревшую неоднократно подчеркивал акад. Б.Ф. Мясоедов.

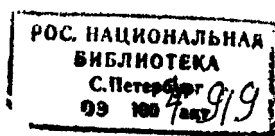
Основными аргументами в пользу необходимости постановки детальных исследований, направленных на изучение поведения урана и ТУЭ в комплексно загрязненных подземных водах района оз. Карачай, являются: 1) известный факт наличия высоких концентраций урана и ТУЭ в сбросах, производимых в водоем, 2) высокая биологическая токсичность и длительный период существования данных нуклидов, 3) недостаточная изученность поведения ТУЭ в природной среде и отсутствие стабильных природных аналогов, 4) известная по имеющимся данным геохимических исследований значимая миграционная способность некоторых природных соединений урана и ТУЭ, 5) необходимость долгосрочного прогнозирования миграции долгоживущих радионуклидов в подземной гидросфере и разработки реабилитационных мероприятий по предотвращению неконтролируемого выхода техногенного радиоактивного загрязнения на дневную поверхность. -

Объектами исследований автора, результаты которых легли в основу настоящей работы, являлись поверхностное хранилище ЖРО оз. Карачай и приповерхностный водоносный горизонт, подвергшийся его воздействию.

Главная цель работы - выявление закономерностей миграции и накопления урана и ТУЭ, распространяющихся в приповерхностном водоносном горизонте от хранилища ЖРО оз. Карачай, и обоснование физической модели проявления этих процессов.

Основными задачами исследований являлись:

1. Выявление особенностей геологического строения и гидрогеологических условий района размещения оз. Карачай, обуславливающих миграцию радионуклидного загрязнения в подземных водах.



2. Определение уровня активности и структуры распределения актинидов в оз.Карачай - источнике комплексного загрязнения подземных вод на протяжении всего периода его эксплуатации в качестве хранилища ЖРО.

3. Изучение распределения и форм нахождения U и ТУЭ в водах и породах водоносного горизонта.

4. Оценка защитных геохимических свойств геологической среды по отношению к урану и ТУЭ.

5. Определение масштаба распространения и скорости миграции U и ТУЭ в подземных водах.

6. Выбор и обоснование индикатора актинидного загрязнения подземных вод.

Фактический материал и методы исследований. Изучение поведения урана и ТУЭ в оз.Карачай и водоносном горизонте основаны на фактических данных, полученных в процессе проведения длительного комплексного (гидрогеохимического и гидродинамического) объектного мониторинга (по более чем 150 наблюдательным скважинам) и выполнения специальных геологических, геофизических, гидрогеологических и гидрогеохимических натурных работ и комплексных лабораторных исследований.

В данной работе используются результаты более тысячи химических и радиохимических анализов проб подземных вод и воды оз.Карачай. Для изучения распределения и форм нахождения техногенных радионуклидов в коренных породах водоносного горизонта и рыхлых донных отложениях оз.Карачай было изучено более 100 образцов.

Лабораторные исследования водных проб и образцов горных пород проводились на базе Центральной заводской лаборатории (ЦЗЛ) ПО «Маяк», лаборатории радиохимии Института геохимии и аналитической химии им. В.И.Вернадского (ГЕОХИ) РАН, лаборатории изотопных методов анализа Всероссийского института минерального сырья (ВИМС) МПР РФ, лаборатории радиогеологии и радиогеоэкологии (ЛРР) Института геологии рудных месторождений, петрографии, минералогии и геохимии (ИГЕМ) РАН.

Изучение природных факторов, определяющих масштаб и структуру загрязнения подземных вод в районе оз.Карачай, проведено на основе анализа и обобщения результатов комплекса полевых геолого-геофизических, гидрогеологических и гидрогеохимических исследований, выполненных в 1960-2000-е годы специалистами ведущих научных и научно-производственных организаций России (ГТП «Гидроспецгеология», ИГЕМ и ИГФ РАН, ВНИПИпромтехнологии и ВНИПИЭТ Минатома РФ, Институт биофизики МЗ РФ и др.).

Основные защищаемые положения:

1. Озеро Карачай (В-9) - поверхностный накопитель жидких радиоактивных отходов (ЖРО) - с 1951 года является постоянно действующим источником загрязнения подземных вод радионуклидами, в том числе ураном и трансурановыми элементами. Природно-техногенные донные отложения водоема являются барьером, определяющим уровень альфа-активности актинидов, поступающих в водоносный горизонт. Нахождение урана в водах озера в слабосорбируемых анионных и нейтральных комплексах предопределяет его проникновение в подземные воды практически в исходных (десятки мг/л) концентрациях. Трансурановые элементы, напротив, хорошо задерживаются донными отложениями и содержатся в подземных водах в концентрациях на 2-5 математических порядков меньше исходных.

2. Уран и ТУЭ образуют в подземных водах пространственно совмещенные концентрически зональные ореолы, размеры и структура которых находятся в зависимости как от исходных концентраций и миграционных форм актинидов, так и от особенностей геологического строения рассматриваемой территории и гидрогеолого-гидрогеохимических условий в водоносном горизонте. Наибольшую площадь (17,3 км²), оконтуренную по величине уровня вмешательства (по НРБ-99), имеет ореол урана. Масштаб распространения других актинидов значительно меньше: ²³⁷Np – 13,4 км², ²⁴¹Am – 7,8 км², ²³⁹⁺²⁴⁰Pu – 7,2 км², ²⁴⁴Cm – 4,1 км².

3. В физико-химических условиях приповерхностного водоносного горизонта уран, в сравнении с другими техногенными радиоизотопами, находится в наиболее подвижной форме, что позволяет рассматривать его в качестве индикатора радиоактивного загрязнения подземных вод в районе оз. Карачай.

4. Выветрелые и трещиноватые вулканы андезито-базальтового состава, слагающие водоносный горизонт района оз. Карачай, способны осаждают мигрирующие в потоке подземных вод уран и ТУЭ. Их задержка осуществляется вторичными сорбционноемкими минералами (гидроксидами и оксидами железа, марганца и титана, а также слоистыми алюмосиликатами и другими гипергенными минералами), которые образовались на поверхностях трещин, являющихся путями транспорта загрязненных подземных вод.

Научная новизна работы.

1. Впервые дана детальная характеристика озеру Карачай как источнику загрязнения подземных вод долгоживущими альфа-излучающими нуклидами - актинидами.

2. Впервые детально и комплексно рассмотрена проблема миграции урана и ТУЭ в водоносном горизонте района оз.Карачай. Определены и проанализированы масштаб распространения, распределение и формы нахождения урана и ТУЭ в подземных водах и породах, слагающих водоносный горизонт.

3. Обоснована роль урана в качестве индикатора техногенного радиоактивного загрязнения подземных вод в районе оз.Карачай.

Личный вклад автора. Автор принимал непосредственное участие в организации и проведении всех видов работ, результаты которых приведены в диссертации, начиная с выбора научного направления и постановки конкретных задач исследований. Основной объем материалов собран, проанализирован и обобщен автором лично.

Практическая значимость. Полученные данные о миграции и распределении урана и ТУЭ в водах и вмещающих породах водоносного горизонта района оз.Карачай позволяют:

оценить современное состояние загрязненности вод и горных пород долгоживущими альфа-излучающими радионуклидами;

использовать в процессе гидрогеохимического мониторинга подземных вод уран в качестве индикатора радиоактивного техногенного загрязнения от оз.Карачай;

оценить возможность вторичного загрязнения подземных вод в результате перехода радионуклидов из твердой фазы в жидкую при возможном изменении физико-химических условий в водоносном горизонте;

разработать долгосрочный прогноз миграции актинидов в подземных водах, определить виды и основное содержание необходимых реабилитационных мероприятий.

Апробация работы. Основные положения работы были доложены и обсуждены на ряде семинаров, симпозиумов и конференций, включая:

- 1995 Proceedings of the Fifth International Conference on Radioactive Waste Management and Environmental Remediation (ICEM'95), Berlin, Germany.
- 1996 Международная конференция "Воздействие атомных электростанций и других радиационно-опасных объектов на гидрологический цикл и водные ресурсы", Обнинск.
- 1997 Joint Russian-American Hydrology Seminar, July 8-9 1997, Berkeley, California, USA.
- 1998 Proceedings of the Spectrum '98 conference, American Nuclear Society, La-Grange, Illinois, USA;
Proceedings Fourth International Symposium & Exhibition on Environmental Contamination in Central and Eastern Europe, Warsaw, Poland.
2-ой семинар НКК МНТЦ «Реабилитация больших территорий» - Снежинск, 1999;
- 1999 Proceedings of the 4th US/CIS Joint Conference on Environmental Hydrology and Hydrogeology, San Francisco, California, USA.
- 2000 Международный симпозиум по геологии урана, Москва, 2000;
Atmospheric, Surface and Subsurface Hydrology and Interactions. 2000 Annual Meeting and International Conference of the American Institute of Hydrology, North Carolina, USA.
- 2001 Proceedings of the 5th US/CIS Joint Conference on Environmental Hydrology and Hydrogeology, San Francisco, California, USA.
- 2002 Международная научно-практическая конференция «Техногенная трансформация геологической среды», Екатеринбург.
- 2003 Четвертая Российская конференция «Радиохимия-2003», г. Озерск.

Публикации. По теме диссертации опубликовано 35 работ, из них статей в специализированных изданиях - 10, тезисов докладов на российских и международных семинарах, конференциях и симпозиумах - 25.

Структура и объем работы. Диссертация состоит из четырех глав, введения и заключения, изложенных на 173 страницах текста, включая 55 рисунков, 20 таблиц. Библиография содержит 203 наименования.

Благодарности. Автор считает своим долгом выразить особую благодарность своим учителям О.Н.Грязнову, М.П.Покровскому, В.И.Чеснокову, Л.М.Самсоновой. Автор глубоко признателен научным руководителям члену-корреспонденту РАН В.И.Величкину и к.т.н. Е.Г.Дрожко, а также Л.М.Самсоновой, Б.Г.Самсонову, С.И.Ровному за критические замечания и ценные советы, большую помощь и поддержку в проведении исследований. Автор признателен коллективам ГПП Гидроспецгеология (А.В.Глаголеву, Н.А.Васильковой, А.В.Скокову и др.), ИГЕМ РАН (А.К.Лисицину, В.И.Мыскину, Н.Н.Тарасову), ВИМС (В.И.Мальшеву, А.Е.Бахуру и всей лаборатории изотопных методов анализа), ГЕОХИ РАН (А.П.Новикову, Т.А.Горяченковой и всей лаборатории радиохимии) за многолетнее плодотворное сотрудничество. Отдельно выражаю благодарность коллегам по работе, без которых данное исследование было бы невозможно, - Г.А.Постоваловой, А.И.Алексахину, П.М.Стукалову, М.Б.Глаголевой, Ю.Г.Мокрову, Биричевой Н.Г. и всей лаборатории охраны окружающей среды ЦЗЛ ПО «Маяк».

Содержание работы

Глава 1 Литературный обзор материалов по проблемам миграции урана и ТУЭ в подземных водах

Проблема миграции актинидов - урана и трансурановых элементов - в подземных водах как части окружающей человека среды занимает в рамках радиоэкологической тематики особое место и в последние годы довольно широко обсуждается в мировой научной литературе.

Выполненный автором обзор и анализ отечественной и зарубежной литературы по всем аспектам проблемы распространения и поведения урана и трансурановых элементов в подземных водах (гидрогеохимия самих элементов и множественные факторы, определяющие миграционную способность урана и ТУЭ) позволяет выделить следующие основные моменты:

миграция урана в реальных подземных водах изучена очень хорошо, ТУЭ - значительно слабее;

в экзогенных условиях уран в подземных водах мигрирует только в шестивалентном состоянии в виде комплексных соединений уранил-иона с органическими и неорганическими лигандами (преимущественно уранил-карбонатные комплексы), коллоидных и псевдоколлоидных форм соединений урана в связи с гидроксидами железа, алюминия, глинистыми частицами, различными растворенными органическими веществами;

формы нахождения урана и, следовательно, его поведение в природных системах во многом определяются физико-химическими параметрами вмещающей среды (в особенности ее окислительно-восстановительными и кислотно-щелочными свойствами);

изменение физико-химических параметров среды может приводить к концентрированию урана, с образованием твердой фазы, на различных геохимических барьерах. Наиболее общей и широко распространенной причиной выведения урана из подземных вод являются процессы восстановления U^{+6} до U^{+4} и его сорбции. Главными восстановителями урана являются органические вещества, сероводород и водород, минералы двухвалентного железа (сульфиды и дисульфиды). Наиболее активными сорбентами урана являются тонкодисперсные массы веществ с высокой поверхностной энергией, а также гумусовые вещества, оксиды и гидроксиды железа, марганца, титана и глинистые минералы;

важной особенностью геохимического поведения урана в природных условиях является его изотопное фракционирование, в результате которого устанавливается неравновесное отношение активностей изотопов урана U^{234} и U^{238} . U^{234} обладает более высокой миграционной способностью, чем уран U^{238} ;

актиниды могут существовать в природных водах в различных степенях окисления в зависимости от химизма среды (присутствия окислителей, восстановителей и комплексообразующих лигандов): нептуний и плутоний - **IV, V, VI**, америций и кюрий - только **III**. **Np** и **Pu** могут существовать одновременно более, чем в одном состоянии окисления;

на миграционную способность актинидов влияет, прежде всего, их состояние окисления и способность образовывать плохо сорбируемые, высокоподвижные отрицательно-заряженные и нейтральные комплексы с природными органическими (растворенные/коллоидные органические вещества, особенно фульвокислоты) и неорга-

ническими (карбонат-ион, за исключением нептуния) лигандами. Трансурановые элементы в одинаковом состоянии окисления ведут себя геохимически аналогично;

основными источниками радионуклидного, в том числе актинидного, загрязнения подземных вод во всем мире являются поверхностные (открытые) и приповерхностные хранилища ЖРО. Часто фильтрующиеся из хранилищ радиоактивные растворы имеют повышенную плотность вследствие повышенной минерализации;

одним из важнейших вопросов при изучении миграции актинидного загрязнения в подземных водах является выбор и обоснование индикатора данного загрязнения. Главными показателями индикатора являются его начальная концентрация и режим поступления в водоносный горизонт;

миграция радионуклидов и, в частности, актинидов в подземных водах происходит, преимущественно, вследствие конвекции. При наличии в водоносном горизонте жидкостей разных плотностей необходимо учитывать фактор гравитации;

снижение скорости миграции актинидов в подземных водах определяют следующие факторы: рассеяние, фильтрационная дисперсия, заполнение непроточного порового объема и взаимодействие с породами водоносного горизонта;

природные грунты и горные породы способны сорбировать, как правило, вещества, находящиеся в растворах в катионной форме;

равновесное распределение радиоактивного элемента между раствором и сорбентом наступает, в общем, очень быстро (от нескольких минут до нескольких суток, в среднем - несколько часов);

сорбционная способность водовмещающих пород по отношению к актинидам зависит от валентности радионуклида/электрического заряда его соединения, химического состава раствора (особенно величины рН и наличия растворенного органического вещества) и физико-химических характеристик пород, зависящих от их минерального и вещественного состава.

На основании всестороннего анализа мирового опыта изучения миграции урана и ТУЭ в подземных водах автором намечены и сформулированы изложенные в вводной части основные направления (задачи) исследований загрязненного водоносного горизонта района оз.Карачай.

Следующие главы посвящены всестороннему и детальному рассмотрению и доказательству защищаемых положений.

Глава 2 Озеро Карачай - источник загрязнения подземных вод ураном и ТУЭ

Геологическое строение и гидрогеологические условия района оз.Карачай

Озеро Карачай расположено на восточном склоне Урала в пределах междуречья верховьев рек Теча и Мишеляк. Особенности геологического строения района определяются его приуроченностью к ядерной части Горненской синклинали (структура первого порядка Кызылташского синклинория), сложенной вулканогенными и вулканогенно-осадочными породами, сформировавшимися в период от раннего силура до девона. Толща сложена преимущественно породами основного состава (андезито-базальты и базальты, реже андезиты), претерпевшими зеленокаменное перерождение (актинолит-эпидотовая и хлорит-эпидотовая стадии).

Породы, слагающие район оз.Карачай, характеризуются интенсивной, но неравномерной тектонической нарушенностью как в плане, так и в разрезе. Преобла-

дающим типом разрывных нарушений являются линейные зоны расланцевания и повышенной трещиноватости соскладчатого заложения, а также милонитовые швы и зоны дробления и брекчирования с хлоритовым, хлорит-эпидот-кварцевым цементом; кварц-карбонатными прожилками. В этих зонах отмечено интенсивное развитие гипергенных глинистых изменений с образованием гидрослюд, каолинита и гидроксидов Fe, Ti (гематит, лейкоксен) и Mn (пирролюзит). Тектонические элементы группируются в зоны разломов субмеридиального, северо-западного и субширотного направлений. Среди них выделяется Мишелякская зона разломов северо-западного направления мощностью в сотни метров.

В верхней части вулканогенного комплекса В.И.Мыскиным (ИГЕМ РАН) выделен полный профиль коры выветривания, который представлен следующими зонами (снизу вверх): дезинтеграции (мощностью до 80 м), начальных глинистых изменений (до 50 м) и глинистых изменений (до 30 м). Общая мощность пород коры выветривания зависит от морфогенетического типа элювия и составляет от первых метров и десятков метров (линейно-площадной тип) до ста и более метров (линейный тип).

К развитию по вулканитам элювию и перекрывающим его рыхлым четвертичным отложениям приурочен водоносный горизонт, мощность которого определяется глубиной залегания подошвы коры выветривания. Подошвой коры выветривания служит относительный водоупор, выделяемый по значительному изменению физико-механических и гидравлических свойств пород. Преобладающая мощность водоносного горизонта в районе - от 40 до 120 м. Наиболее водопроницаемая часть водоносного горизонта (коэффициент фильтрации - от 0,3 до первых м/сут) приурочена к зоне дезинтеграции, сложенной дресвяно-щебнистыми отложениями. На основе многолетних режимных наблюдений и опытных гидрогеологических работ на территории Междуречья установлена резкая трехмерная анизотропия водопроницаемости пород, обусловленная наложением тектонических процессов на экзогенную трещиноватость и образованием отдельных зон высокой водопроницаемости, служащих основными каналами транспорта для потока подземных вод.

Подземные воды района - трещинно-грунтовые и трещинно-жильные - образуют системы бассейнов, соответствующих площадям поверхностных водосборов, с интенсивным водообменом, гидравлически взаимосвязанных и имеющих преимущественно безнапорный характер. Зеркало подземных вод в сглаженном виде повторяет поверхность современного рельефа и залегает на глубинах от 0,2-5 м (на придолинных участках) до 15-20 м (на водораздельных участках).

Безнапорный характер и преимущественно метеорное питание подземных вод определяют направление их движения в соответствии с гипсометрическим положением поверхности земли. Снижение абсолютных отметок с 400-650 м на восточном склоне Урала до 200 м на востоке изучаемой территории определяет региональное движение подземных вод на восток. Кроме этого, главными элементами, определяющими структуру потока, являются: влияние водотоков, водоемов, различных форм макро- и мезорельефа, работа водозаборов, параметры водопроницаемости водовмещающих пород и расположение участков питания.

Химический состав подземных вод района оз. Карачай формируется как за счет природных факторов, так и под действием техногенного влияния. В естественных условиях минерализация подземных вод изменяется в пределах 0,1-0,5 г/л, воды преимущественно гидрокарбонатные кальциево-магниевого; фрагментарно распространены хлоридные и сульфатные подземные воды.

Оз.Карачай тесно связано с подземными водами. Водораздельное положение В-9 определяет существование постоянного потока подземных вод во всех направлениях от него с разгрузкой в промышленные водоемы Теченского каскада (на севере и северо-востоке) и в р.Мишеляк (на юге). Уклон потока подземных вод в пределах описываемой территории варьирует от 0,016 до 0,005, в северном направлении от В-9 он больше, чем в южном, примерно в 2 раза. Скорость потока подземных вод составляет 0,2-0,7 м/сут. В многоводные периоды структура потока подземных вод вокруг оз.Карачай меняется за счет появления местного водораздела южнее В-9, который обуславливает локальное изменение направления потока верхней части горизонта на противоположное и приток вод в В-9 с большей площади водосбора.

Таким образом, водораздельное положение оз.Карачай и наличие приповерхностного водоносного горизонта, приуроченного к имеющей сложное геолого-тектоническое строение коре выветривания вулканогенной толщи, предопределяют как сам факт поступления техногенных радиоактивных растворов в подземные воды, так и последующую миграцию радионуклидного загрязнения в подземной гидросфере.

История эксплуатации, химический и радионуклидный состав оз.Карачай

За все время эксплуатации В-9 (с 1951 г.) в него сброшено около 550 млн. Ки коротко- и долгоживущих радионуклидов. Сбросы продолжают по настоящее время.

Морфометрические параметры В-9 (площадь акватории, объем) постоянно менялись в зависимости от вариаций гидрологического режима водоема и проводившегося благоустройства прибрежных территорий. Максимальная площадь акватории водоема составляла около 520 тыс. кв. м в мае 1962 г. Для предотвращения радиационных катастроф, связанных с возможными экстремальными метеоусловиями (прохождением смерча или урагана через акваторию водоема) с 1986 года ведутся работы по засыпке его акватории. Сейчас водоем представляет собой чашу, основание которой - суглинки дна водоема и полосы прибрежной засыпки до 1973 г. На две трети чаша заполнена скальным грунтом и пустотельными бетонными блоками с проектной пористостью массива около 0,2. Площадь зеркала воды по состоянию на начало 2004 года - 110 тыс. м², объем водоема - около 400 тыс. м³.

Основные составляющие приходной части водного баланса водоема — осадки, сбросы, засыпка и подземный приток. Основные составляющие расходной части - испарение и фильтрация из водоема. Анализ получаемых расчетных величин по статьям баланса свидетельствует о том, что в годовом цикле водоема происходит сработка за счет фильтрации дополнительно поступивших объемов (сбросы+засыпка). За время эксплуатации В-9 в подземные воды через его ложе поступило, по различным оценкам, около 4-5 млн. м³ природно-техногенных растворов.

Химический и радионуклидный состав воды за время эксплуатации водоема (с 1951 г.) претерпевал значительные изменения в зависимости от применяемой технологии и объемов производства (состава и количества сбросов).

Выделяются два основных периода сбросов в оз.Карачай:

1951 - 1970 гг. - использование ацетатной осадительной технологии; максимальное количество сбросов и суммарной активности сбросных растворов (90-140 тыс. м³ и 21-34 млн. Ки в год, в основном короткоживущих радионуклидов); сбросы содержат большое количество солей (до 500 г/л нитрата натрия, до 300 г/л нитрата алюминия, до 60 г/л ацетатов, повышенные содержания железа, хрома, никеля);

с 1971 г. - переход на экстракционную технологию; сокращение объема и общей активности сбросных вод (до 15-20 тыс. м³ и порядка 1 млн. Ки в год к настоящему времени); значительное (в разы) уменьшение минерализации растворов, появление органических веществ (ТБФ, ГХБД, синтин, амины, спирты); общая активность сбросных растворов на 60-80 % обусловлена стронцием-90 и цезием-137.

На основе ретроспективных и современных данных можно выделить следующие *особенности химического и радионуклидного состава воды в водоеме 9*:

воды В-9 являются нитратно-натриевыми высокоминерализованными щелочными растворами среднего (до 0,05 Ки/л) уровня активности, отмечаются повышенные концентрации кальция, магния, сульфат- и хлорид-ионов;

вода В-9 с начала его эксплуатации в качестве хранилища ЖРО всегда характеризовалась повышенной плотностью (до 1,08 г/см³ в начальный период, в последние 20-25 лет - 1,006-1,02 г/см³);

радионуклидный состав воды В-9 всегда был очень сложный, но в течение почти всего периода эксплуатации основной вклад в ее активность вносили цезий-137, стронций-90 и рутений-106; в настоящее время последний не играет значимой роли в общем радионуклидном балансе;

удельная активность суммы альфа-излучающих нуклидов в воде водоема была всегда примерно на четыре порядка ниже удельной бета-активности;

среди всех актиноидов только по концентрации урана в воде В-9 имеется продолжительный (с 1954 г.) ряд наблюдений; об изотопном составе ТУЭ имеются только отрывочные данные;

за время эксплуатации В-9 концентрация урана изменялась в диапазоне от 7 до 215 мг/л, удельная альфа-активность - от $2,7 \cdot 10^3$ до $6,3 \cdot 10^5$ Бк/л; корреляция между концентрацией урана и объемной альфа-активностью в воде водоема отсутствует;

изменение концентрации урана и удельной активности всех альфа-излучающих нуклидов (суммарно) имеет разнонаправленный характер, обусловленный изменением химического состава воды и физико-химических условий в водоеме;

концентрация урана в воде В-9 на протяжении последних тридцати лет оставалась относительно стабильной - изменения происходили в пределах одного порядка, имея слабовыраженную направленность в сторону уменьшения;

максимальные концентрации урана приурочены к периоду эксплуатации водоема, когда вода в нем обладала повышенной минерализацией/плотностью (до середины 70-х годов).

Фактором, стабилизирующим концентрацию радионуклидов в воде водоема 9, является процесс их равновесного распределения между донными отложениями и водой (твердой и жидкой фазами). За годы эксплуатации в водоеме образовались природно-техногенные илы (более 200 тыс. м³), представленные сложной смесью глин, илов, гумусовых кислот, техногенных материалов (органических веществ, смол, легкоподвижных окислов железа, алюминия, хрома).

Современный уровень радиоактивного загрязнения оз. Карачай

В марте 2002 года было выполнено комплексное обследование незакрытой части оз. Карачай, в результате которого получены данные, характеризующие уровень и структуру современного актинидного загрязнения воды и донных отложений водоема (таблица 1).

Таблица 1 – Распределение урана и ТУЭ в оз. Карачай

Среда водоема, показатель и единица измерения		Радионуклид				
		²³⁵⁺²³⁸ U	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Am+ ²³⁸ Pu	²⁴⁴ Cm	²³⁷ Np+ ²³⁴ U
Вода	максимальная удельная активность, Бк/л (17 мг/л);	500	3 10 ⁴	4·10 ⁵	2·10 ⁵	1 10 ⁴
	общий запас, Бк (Ки)	2·10 ¹¹ (6)/6,8 т	2,6 10 ¹⁴ (7 10 ³)			
Донные отложения	максимальная удельная активность, Бк/кг сух. веса (21400 мг/кг)	6,3·10 ⁵ (21400 мг/кг)	1,2·10 ⁹	1,2·10 ¹⁰	2,3·10 ⁹	2·10 ⁷
	общий запас, Бк (Ки)	2,6·10 ¹¹ (8)/9т	3 10 ¹⁶ (8·10 ⁵)			
Средний коэффициент распределения, л/кг		300	2 000 – 20 000			
Общий запас в водоеме, Бк (Ки)		46·10 ¹¹ (14)/16т	3·10 ¹⁶ (8·10 ⁵)			

Приведенные в таблице значения показывают: альфа-активность воды В-9 обусловлена, в основном, америцием-241 и кюрием-244;

альфа-активность донных отложений В-9 обусловлена, в основном, америцием-241, кюрием-244 и плутонием-239,240;

удельная/объемная альфа-активность урана как в воде, так и в донных отложениях на 3-5 математических порядков ниже, чем ТУЭ;

более 99% активности альфа-излучающих радионуклидов депонировано в грунтах дна; уран распределен практически поровну между водой и донными отложениями (соответственно, 7 т и 9 т).

Кроме этого, определено:

вклад каждого актинида в альфа-активность воды относительно постоянен: U-238 – 0-3 %, U-235 – 0-2,6 %, U-234+Np-237 – 2-12 %, Cm-244 – 17-30 %, Pu-239,240 – 5-20 %, Am-241+Pu-238 – 40-50 %;

изотопный состав техногенного урана в воде водоема 9 существенным образом отличается от состава природного урана повышенной долей изотопов U^{235} (16,5-28,0 % от общего весового количества) и U^{234} (0,013-0,035 %);

в грунтах дна максимум удельной активности альфа-излучателей связан с верхним слоем 0-10 см.

Формы нахождения актинидов в водах оз. Карачай. Геохимическими расчетами форм нахождения урана в водах оз. Карачай на модели GEOCHEQ (М.В. Мироненко, ГЕОХИ им. В.И. Вернадского РАН, 2002) показано, что весь уран содержится в виде гидрокарбонатного комплекса $(UO_2)_2CO_3(OH)_3^-$; карбонатных комплексов $UO_2(CO_3)_2^{2-}$ и $UO_2(CO_3)_3^{4-}$, а также нейтрального гидрокомплекса $UO_2(OH)_2$. Катионные формы UO_2OH^+ и UO_2^{2+} в существующих в водоеме физико-химических условиях присутствуют, но заметной роли не играют. Нахождение урана в виде анионных форм (расчетное) и нейтральных коллоидов/псевдоколлоидов (вероятное) предполагает его слабую способность сорбироваться минералами и органическим веществом донных отложений и вмещающих пород, поскольку последние, как правило, являются катионообменниками. Высокие реальные коэффициенты распределения урана между донными отложениями и водой оз. Карачай объясняются, видимо, селективной сорбцией урана, находящегося в вышеуказанных катионных формах, имеющих, при малой доле в общем балансе форм урана, довольно значительную величину в физическом

(весовом) выражении. Учитывая огромный объем профильтровавшихся из водоема содержащих уран растворов (до 5 млн. м³ при средней концентрации урана 35 мг/л, т.е. всего около 165 т урана), такое предположение не лишено оснований (9 т урана, находящихся в донных отложениях, из поступивших в водоем 165 т, или около 5 %, вполне могло находиться в катионной форме).

Относительно трансурановых элементов можно только предположить, что, судя по их огромным значениям коэффициента распределения между донными отложениями и водой В-9, данные радионуклиды находятся, в основном, в виде положительно заряженных соединений.

Таким образом, изучение распределения актинидов в различных средах водоема В-9 показало, что 1) оз. Карачай (его жидкая и твердая фазы) содержит уран и ТУЭ в уникально больших для природно-техногенных объектов концентрациях, 2) донные отложения В-9 создают мощный сорбционный барьер на пути миграции урана и ТУЭ в подземные воды, выводя значительные их количества из процессов дальнейшего распространения в водоносном горизонте.

Глава 3 Миграция урана и ТУЭ в подземных водах района озера Карачай

Фоновые концентрации урана и ТУЭ в подземных водах

Фоновые концентрации урана и ТУЭ в подземных водах района определялись на участках, удаленных от всех известных техногенных объектов, способных повлиять на геохимическое состояние водонасыщенного горизонта.

Геохимический фон урана составляет 0,49 мкг/л. Минимально аномальное содержание урана - 1,3 мкг/л, или в пересчете на природный уран 0,03 Бк/л, что на два порядка меньше предельно безопасного уровня — «уровня вмешательства (УВ)» по Нормам радиационной безопасности НРБ-99 (3 Бк/л). Фоновые концентрации ТУЭ находятся на уровне значительно ниже установленных норм для питьевых вод (УВ по НРБ-99).

Изотопный состав техногенного урана

Наличие критериев загрязнения природных вод по каждому изотопу урана в отдельности, содержащихся в нормативных документах (НРБ-99, ОСПОРБ-99), обусловило постановку изотопных исследований. В 2001 году совместно с лабораторией радиохимии ГЕОХИ РАН и лабораторией радиоизотопных методов МГУ впервые был определен изотопный состав техногенного урана в наиболее загрязненных подземных водах района оз. Карачай.

Объемная активность изотопов урана почти во всех представленных пробах превысила значения УВ: для U^{234} - в 6,7 - 450 раз, U^{238} - в 5,8-300 раз, для U^{235} этот параметр составляет 0,2-25. Изотопный состав техногенного урана существенным образом отличается от природного следующим:

относительно широким диапазоном вариаций количественного (массового) соотношения изотопов (от 0,0048 до 0,0116 % - для U^{234} , от 0,56 до 3,92 % - для U^{235} , от 96,08 до 99,44 % - для U^{238});

повышенным содержанием U^{234} , а в ряде случаев, и U^{235} (вклад U^{234} и U^{235} в общее весовое содержание техногенного урана выше, чем природного, в среднем в 1,3 и в 1,65 раз, соответственно);

изменчивым (неравновесным) отношением объемных активностей U^{234}/U^{238} (меняется в пределах 1,09 - 2,22).

Разнообразие изотопного состава техногенного урана в пределах ореола загрязненных подземных вод, по-видимому, обусловлено изменчивостью во времени радионуклидного состава жидких отходов, поступающих в водоем 9 и далее в водоносный горизонт, а также известными процессами фракционирования изотопов, протекающими в природной среде.

Изменчивость изотопного состава техногенного урана в загрязненных подземных водах приводит к значительным вариациям отношения «весовое содержание-удельная активность». Поэтому, при проведении радиационного мониторинга подземных вод необходимо знать минимальную массовую концентрацию урана, при которой возможно превышение значений УВ. Расчеты консервативного варианта (техногенный уран с максимальным содержанием U^{234} и минимальным - U^{238}) показали, что уже при концентрации урана 74 мкг/л суммарная активность изотопов урана в техногено-загрязненных подземных водах может достигать значений УВ (3 Бк/л).

Масштаб и структура загрязнения подземных вод ураном и ТУЭ

Регулярные наблюдения за миграцией урана в подземных водах района оз.Карачай проводятся с 1984 года по существующей сети наблюдательных скважин. Изучение трансурановых элементов в подземных водах района междуречья Теча-Мишеляк началось менее 10 лет назад. В 2001 г. впервые были выполнены детальные (более 130 шт.) комплексные гидрогеорadioхимические исследования (в том числе и ТУЭ) в районе оз.Карачай. Анализы выполнены в лаборатории радиохимии ГЕОХИ им. В.И.Вернадского РАН.

Данные по изотопному составу и уровням загрязнения подземных вод трансурановыми элементами (и ураном) приведены в таблице 2. Для сравнения в таблице приведены аналогичные данные по воде В-9.

Таблица 2 — Изотопный состав альфа-излучающих радионуклидов в оз Карачай и загрязненных подземных водах (2001-2002 гг.)

Характеристика техногено-загрязненных вод, Показатель и единица измерения		Радионуклид				
		U	^{234}Pu	^{241}Am	^{244}Cm	^{237}Np
Значения УВ, Бк/л		3,0	0,56	0,69	1,2	1,3
Подземные воды	минимальный вклад, %	80,0	0,006	0,004	0,001	0,05
	максимальный вклад, %	99,5	0,2	1,5	0,05	20
	среднее значение, %	97	0,06	0,2	0,02	2,7
	максимальная объемная активность, Бк/л	2 300	2,1	6,4	14,0	18,2
Интенсивность загрязнения подземных вод ОА _{уд} УВ		766	3,7	93	11,7	140
Вода водоема В-9	минимальный вклад, %	1	0,5	57	25	0,2
	максимальный вклад, %	7	6	66	37	1
	среднее значение, %	3,8	3,6	62,3	29,8	0,5
	максимальная объемная активность, Бк/л	$1,2 \cdot 10^6$	$9,0 \cdot 10^6$	$8,5 \cdot 10^8$ ($9,6 \cdot 10^8$)	$6,2 \cdot 10^8$	$3,3 \cdot 10^8$ ($9,3 \cdot 10^7$)
Интенсивность загрязнения воды В-9 ОА _{уд} УВ		$4,1 \cdot 10^3$	$1,6 \cdot 10^5$	$1,2 \cdot 10^6$	$5,1 \cdot 10^5$	$2,5 \cdot 10^5$

Примечание: с учетом суммы изотопов $^{241}Am + ^{238}Pu$, с учетом суммы изотопов $^{237}Np + ^{234}U$

Анализ представленных в таблице данных позволяет выделить:

сравнительно низкий уровень загрязнения подземных вод ТУЭ на фоне высокой удельной активности трансуранового загрязнения в источнике (воде В-9), превышающей значения УВ в тысячи, миллионы раз (в зависимости от радионуклида);

существенные различия в изотопном составе (соотношении объемных активностей изотопов) ТУЭ, находящихся в воде водоема В-9 и в загрязненных подземных водах: основной вклад в альфа-активность воды оз.Карачай вносят ^{241}Am (более 60%) и ^{244}Cm (около 30%), в подчиненном количестве присутствуют (в порядке уменьшения): $^{239+240}\text{Pu}$ (3,6%) > U (2,7%) > ^{237}Np (0,5 %). В подземных водах соотношение нуклидов резко меняется в сторону увеличения доли урана (более 90% общей активности), далее по убыванию следуют: ^{237}Np (2,7%) > ^{241}Am (0,2%) > $^{239+240}\text{Pu}$ (0,06%) > ^{244}Cm (0,02%).

Таким образом, благодаря нахождению в водах озера в слабосорбируемых анионных и нейтральных комплексах уран попадает в подземные воды практически в исходных (десятки мг/л) концентрациях, определяя (на 90% и более) уровень их альфа-активности; трансурановые элементы, напротив, наблюдаются в подземных водах в концентрациях на несколько математических порядков ниже, чем в водоеме.

Описание и параметры ореолоурана и ТУЭ

Уран. Техногенный уран формирует в подземных водах района водоема В-9 довольно сложный по форме (рисунок 1) и весьма контрастный по концентрациям ореол, его максимальные содержания значительно (в десятки тысяч раз) превышают фоновый уровень и примерно в 500 раз значение УВ. Ореол загрязнения по урану (так же как и далее для ТУЭ) воспроизводится в плоскости максимальных концентраций.

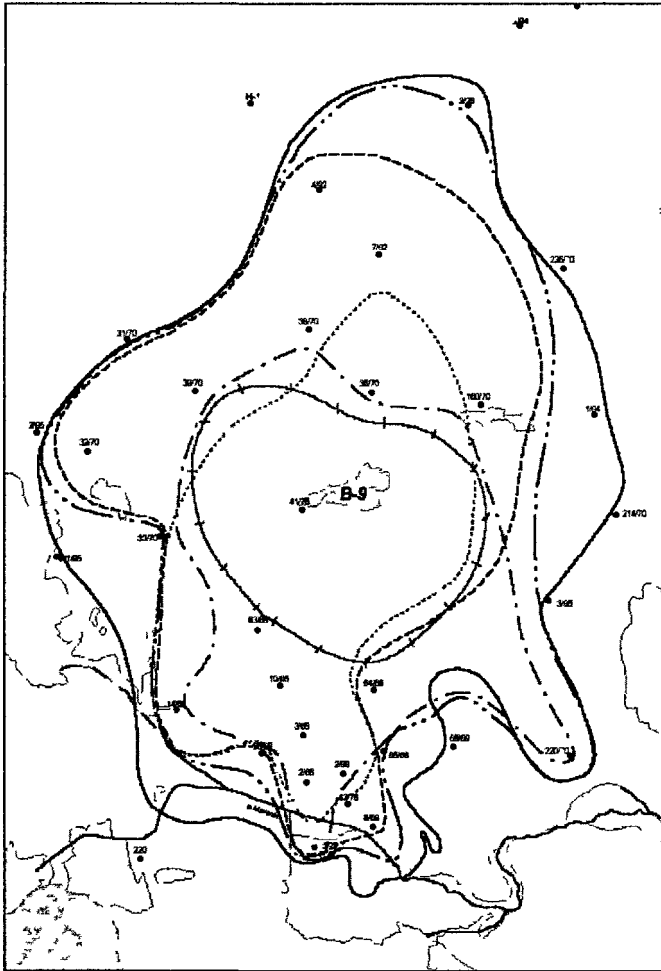
В площадном строении ореола урана, с учетом выявленных ранее физико-химических особенностей загрязненных подземных вод района В-9 (особенно наличия области высокоминерализованных растворов повышенной плотности), можно условно выделить четыре зоны:

- высококонцентрированных растворов (с содержанием урана более 10 мг/л),
- распространения низкоактивных (по урану) жидких отходов в водоносном горизонте (с содержанием урана от 10УВ, т.е. 750 мкг/л, до 10 мг/л),
- загрязненных подземных вод (с содержанием урана от 1УВ до 10УВ, т.е. от 75 до 750 мкг/л),
- рассеяния вещества (от минимально-аномальных содержаний до 1УВ, т.е. 75 мкг/л).

В разрезе ореол загрязненного ураном подземных вод представляет собой горизонтально залегающую линзу, ограниченную (в значении УВ): снизу - подошвой коры выветривания вулканитов, разделяющей проницаемые и практически водоупорные породы; сверху — зеркалом подземных вод. Ореол в разрезе имеет зональное строение, с наиболее концентрированным нижним слоем и постепенным разубоживанием к верхнему. Мощность ореола соответствует мощности водоносного горизонта и составляет от 40-60 до 100 и более метров.

Можно выделить следующие особенности структуры распределения и динамики распространения урана в подземных водах:

максимальные концентрации урана приурочены не к источнику загрязнения (В-9), а к области так называемых «неразбавленных растворов», где концентрация урана выше, чем в воде водоема, и соответствует ретроспективной концентрации урана в оз.Карачай. Подобная структура пространственного распределения в пределах



Условные обозначения:

- | | | | |
|-------|---------------------------|-----------|------------------------|
| — | - нитрат-ион (45 мг/л) | —+— | - изотрий (1,2 Бк/л) |
| - - - | - уран валовый (75 мкг/л) | - - - | - нептуний (1,3 Бк/л) |
| - · - | - америций (0,69 Бк/л) | - · - · - | - плутоний (0,58 Бк/л) |

Рисунок 1 - Схема распространения урана, ТУЭ и нитрат-иона в подземных водах района оз.Карачай

собственного ореола нейтрального к породам водовмещающей среды нитрат-иона;

в южной части ореола, в отличие от его северной ветви, процесс площадного распространения загрязненных ураном подземных вод резко замедлился со времени достижения ими долины реки Мишеляк; отмечается только внутреннее перераспределение концентраций урана за счет продолжающегося расширения области концентрированных растворов, определяемой по скорости накопления урана в воде скважин, расположенных вблизи границы данной области: от 0,4 мг/лтод до 1,8 мг/лтод;

на правобережье р.Мишеляк граница распространения урана продолжает продвигаться (со скоростью 15-20 м в год) за счет процессов конвекции и гравитации и в настоящее время находится на расстоянии 270 - 300 м южнее русла реки;

область распространения техногенного урана в подземных водах (з границах УВ) постоянно увеличивается, в основном, за счет продолжающейся миграции потока загрязненных подземных вод в северном и северо-восточном направлении в условиях отсутствия каких-либо барьеров (геохимических, гидродинамических, структурно-геологических и др.), что в экологическом аспекте, учитывая разгрузку подземных вод в промводоемы Теченского каскада, не вызывает особого беспокойства.

ТУЭ. Трансурановые элементы ($^{239,240}\text{Pu}$, ^{237}Np , ^{241}Am , ^{244}Cm) образуют вокруг оз. Карачай пространственно совмещенные (в том числе с ураном, нитрат-ионом и стронцием-90) и схожие по форме ореолы (рисунок 1) в границах значений УВ.

Основные параметры ореолов урана и ТУЭ приведены в таблице 3; здесь же для сравнения даны параметры изученных ранее ореолов нитрат-иона, стронция-90 и цезия-137 (значение 10УВ является нижней границей для низкоактивных отходов).

Таблица 3 - Размеры ореолов распространения в подземных водах актинидов, нитрат-иона, стронция-90 и цезия-137 (2001 г.)

Радионуклид	В границах значений 1УВ*					В границах значений 10УВ				
	Площадь, км ²	Расстояние от центра В-9 по направлениям, км				Площадь, км ²	Расстояние от центра В-9 по направлениям, км			
		С	Ю	З	В		С	Ю	З	В
U	17,3	3,2	3,1	2,5	1,5	13,9	2,3	3,0	2,4	1,4
^{237}Np	13,4	2,8	3,0	2,5	1,3	2,6	0,8	2,6	0,6	0,4
^{241}Am	7,8	1,3	3,0	1,4	1,2	ореол отсутствует				
$^{239,240}\text{Pu}$	7,2	1,7	2,7	1,4	1,0	ореол отсутствует				
^{244}Cm	4,1	0,7	1,5	1,2	1,2	0,5	0,3	0,3	0,5	0,4
(Нитрат-ион)	20,6	3,5	3,35	2,6	2,3	-	-	-	-	-
^{90}Sr	16,5	3,3	3,0	2,2	2,0	13,7	3,1	2,8	2,0	1,7
^{137}Cs	8,8	1,7	2,6**	1,6	1,3	6,0	1,6	1,7**	1,4	1,0

Примечание: * - по урану - 75 мкг/л, для NO₃ - в границах значений ПДК,

** - в юго-западном направлении

Из представленных данных видно, что уран образует в подземных водах ореол, превосходящий по площади ореолы не только всех трансурановых элементов (в целом, все актиниды можно расположить в следующий ряд по убыванию площади их ореолов: $U > ^{237}\text{Np} > ^{241}\text{Am} > ^{239+240}\text{Pu} > ^{244}\text{Cm}$), но и вообще всех техногенных радионуклидов, поступающих из оз. Карачай.

Уровень загрязнения части подземных вод ураном, нептунием-237 и кюрием-244 соответствует низкоактивным жидким отходам. Площади этих зон составляют 10-20 % от общей площади оролов каждого элемента.

Формы нахождения урана и трансурановых элементов в подземных водах

Обнаружение значительного по масштабу распространения актинидного загрязнения подземных вод в районе оз.Карачай и необходимость прогнозирования продолжающихся процессов миграции урана и ТУЭ в водоносном горизонте обусловили постановку исследований по определению форм нахождения долгоживущих альфа-излучателей в миграционных процессах. Исследование форм нахождения урана и ТУЭ в реальных подземных водах района оз.Карачай включало следующие направления:

- изучение фазового распределения радионуклидов путем ультрафильтрации подземных вод через мембранные фильтры,
- изучение геохимических форм подвижности с использованием методов электрофореза и сорбции на ионообменных смолах,
- оценка влияния растворенного органического вещества на распределение форм нахождения ТУЭ.

Проведенными исследованиями по ультрафильтрации проб загрязненных подземных вод установлено: 1) U и ^{237}Np находятся преимущественно в виде растворенных соединений (соответственно, **95% и 90%**), 2) $^{239+240}\text{Pu}$ находится на 65% в форме коллоидов, на 35% - в растворенном виде, 3) ^{241}Am находится приблизительно в равной степени как в растворенном виде, так и в форме коллоидов, 4) все актиниды слабо связаны с обнаруженными взвесями (первые %), наличие которых в природных условиях маловероятно и связано, по-видимому, с образованием при нарушении естественного залегания пород в процессе бурения и при последующих прокачках скважин.

Изучение геохимических форм подвижности радионуклидов показало, что в истинно растворимом состоянии актиниды присутствуют, в основном, в анионной форме. Полученные опытные данные хорошо согласуются с теоретическими предположениями, результатами геохимических расчетов и натурными наблюдениями. Так, учитывая химический состав подземных вод (слабощелочные, pH 7,5-8,3, и открытые в отношении углекислоты) и результаты расчета форм нахождения в воде оз.Карачай, можно с достаточной долей уверенности сказать, что, например, уран мигрирует в подземных водах преимущественно в виде анионных трикарбонат-уранила $[\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3]^{4-}$, дикарбонат-уранила $[\text{UO}_2(\text{CO}_3)_2]^{2-}$, гидрокарбонатного комплекса $[(\text{UO}_2)_2\text{CO}_3(\text{OH})_3]^{-}$, а также нейтрального гидрокомплекса $\text{UO}_2(\text{OH})_2$. Нептуний в виде нептуноил-иона NpO_2^+ , в природных условиях никогда не образуя карбонатов, в существующих в водоносном горизонте физико-химических условиях теоретически может существовать и мигрировать в виде гидрокси-/сульфатных/нитратных анионных комплексов. Окончательно вопрос об истинных формах миграции урана и нептуния в изучаемых подземных водах должен быть решен в дальнейшем при постановке детальных радиохимических исследований.

Растворенные формы плутония и америция в подземных водах представлены, исходя из термодинамических предпосылок, видимо, карбонатами $\text{Pu}(\text{CO}_3)_3^{3-}$, $\text{Pu}(\text{OH})\text{CO}_3^-$ и $\text{Am}(\text{CO}_3)_3^{3-}$.

Изучение распределения актинидов по размеру коллоидов показало, что максимальные содержания плутония и америция обнаружены в самых мелких коллоидах

- размером 3 и 1,5 нм. Лабораторными экспериментами также показано, что доля плутония в коллоидном состоянии существенно возрастает в подземных водах, в которых отмечаются повышенные концентрации растворенного органического вещества.

Изучение коллоидной фракции (размер частиц от 450 нм до 3 кД) загрязненных подземных вод, отобранных в южной фронтальной части ореола, показало, что основная часть коллоидов, с которыми в различной степени связаны все актиниды, имеет неорганическую (минеральную) природу; правда, пока не определено, природного или техногенного происхождения. И только в отношении америция и, отчасти, нептуния природное органическое вещество играет относительно заметную роль: с фульвокислотами связано от трети до четверти данных радионуклидов.

Анализ результатов лабораторных исследований форм нахождения урана и ТУЭ в загрязненных подземных водах района оз.Карачай позволяет сделать следующий основной **вывод**:

все исследуемые актиниды находятся в подземных водах преимущественно в высоко подвижных миграционных формах, нейтральных к вмещающей среде: уран и нептуний — в виде растворенных анионных комплексов, плутоний и америций — в виде неорганических, в основном, и органических коллоидов.

Скорость миграции урана и ТУЭ в подземных водах

Уран и ТУЭ начали поступать в подземные воды с самого начала эксплуатации оз.Карачай в качестве хранилища ЖРО. Попав в водоносный горизонт, радионуклиды мигрировали в соответствии со структурой потока подземных вод. Скорость миграции изотопов, кроме скорости потока подземных вод и фильтрационной дисперсии, определяется, главным образом, формой нахождения радионуклидов, от которой зависит степень их задержки породами водоносного горизонта.

Скорость миграции в подземных водах района оз.Карачай урана и ТУЭ определялась исходя из удаленности вод с граничными значениями наблюдаемых компонентов от источника загрязнения за известный промежуток времени (в нашем случае, за 50 лет). Этот вариант - оценочный, он позволяет, зная сложившуюся к настоящему времени картину загрязнения подземных вод, определить только среднегололетнюю скорость распространения техногенных компонентов (таблица 4). Для сравнения даны скорости распространения нитрат-иона, урана, стронция-90 и цезия-137, рассчитанные таким же способом.

Таблица 4 - Средняя скорость миграции в подземных водах актинидов, нитрат-иона, стронция-90 и цезия-137

Радионуклид	Скорость, м/год							
	Граница значений ГУВ*				Граница значений 10УВ			
	Направление от В-9				Направление от В-9			
	С	Ю	З	В	С	Ю	З	В
U	64	62	50	30	46	60	48	28
²³⁷ Np	56	60	50	26	16	52	12	8
²⁴¹ Am	26	60	28	24	Ореол отсутствует			
^{239,240} Pu	34	54	28	20	Ореол отсутствует			
²⁴⁴ Cm	14	30	24	24	6	6	10	8
(Нитрат-ион)	70	67	52	46	-	-	-	-
⁹⁰ Sr	66	60	44	40	62	54	40	34
¹³⁷ Cs	34	52	32	26	32	34	28	20

Примечание: * - для урана - 75 мкГ/л, для NO₃⁻ - в границах значений ПДК (45 мг/л).

Приведенные в таблице данные показывают:

почти все рассматриваемые техногенные радионуклиды, за исключением цезия и юрия, обладают близкими скоростями миграции, не значительно уступающими скорости распространения нитрат-иона;

максимальную скорость продвижения радионуклидного загрязнения имеет в северном и южном направлении;

в южном направлении средняя скорость продвижения границы области высоких (более 10 УВ) концентраций урана, нептуния и стронция практически равна скорости их распространения в значениях УВ, что говорит о резком замедлении распространения фронта радионуклидного загрязнения после достижения им долины р.Мишеляк (нитрат-ион и стронций, по результатам режимных наблюдений, появились здесь к началу 1980-х годов, продвигаясь до этого со скоростью 70-80 м/год), поэтому полученные значения скоростей элементов, граница которых фиксируется на правобережье реки, - урана, нептуния, америция, стронция и нитрат-иона, являются сугубо оценочными (заниженными для периода 1950-80-х годов и резко завышенными для последних 5-10 лет).

Замедление скорости продвижения радионуклидного, в том числе актинидного, загрязнения в пределах долины р.Мишеляк определяется следующим рядом геолого-гидрогеологических факторов:

наличием Мишелякской зоны разломов, разворачивающей и, предположительно, дренирующей поток загрязненных подземных вод;

строением подошвы водоносного горизонта (наличием так называемых «карманов» - контрастных углублений с мощностью элювия во многие десятки метров - на поверхности относительного водоупора, замедляющих продвижение фронта загрязнения до тех пор, пока загрязненные воды благодаря повышенной плотности не заполнят эти структуры, образовав своеобразные хранилища радиоактивных вод);

наличием подземного потока, направленного навстречу распространяющемуся на юг загрязнению и создающего своеобразный гидродинамический барьер.

Влияние данных факторов на скорость распространения актинидов (а также и всех других техногенных загрязнителей) в подземных водах можно проиллюстрировать временным графиком изменения концентрации урана в зависимости от удаления от оз.Карачай в южном направлении (рисунок 2). Хорошо видно, что при приближении к р.Мишеляк, области дренирования противоположно направленным потокам и наличия тектонических структур, концентрация урана в подземных водах резко - на 2-3 порядка - убывает на расстоянии менее 100 м.

Таким образом, анализ структуры загрязнения подземных вод ураном и трансурановыми элементами показал:

уран и ТУЭ образуют в подземных водах пространственно совмещенные концентрически-зональные ореолы;

благодаря высокой исходной концентрации и нахождению в высокоподвижных миграционных формах, уран образует в подземных водах самый большой по площади ореол среди всех техногенных радионуклидов (17,3 км²), масштаб распространения трансурановых элементов значительно меньше: ²³⁷Np - 13,4 км², ²⁴¹Am - 7,8 км², ²³⁸⁺²⁴⁰Pu - 7,2 км², ²⁴⁴Cm - 4,1 км²;

распространение актинидного загрязнения в подземных водах продолжается, преимущественное направление - северное, что в экологическом аспекте, учитывая разгрузку подземных вод в приемные емкости Теченского каскада, не представля-

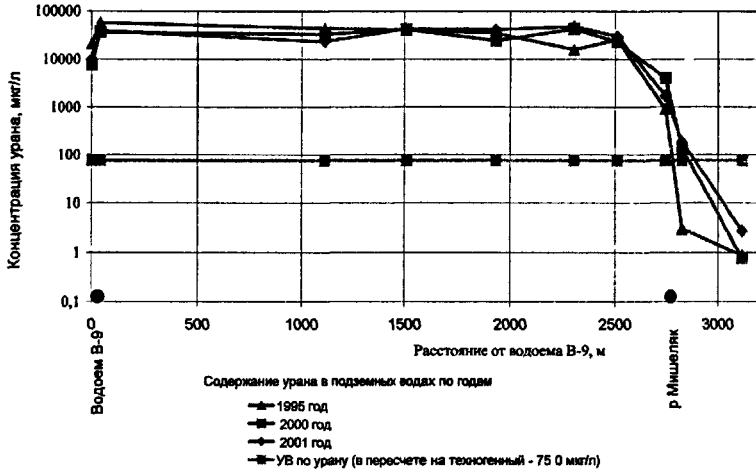


Рисунок 2-Содержание урана в подземных водах южной части ореола

от особого беспокойства; в южном, наиболее экологически опасном направлении, по достижению долины реки Мишелак, продвижение фронта загрязнения резко замедлилось благодаря влиянию геолого-гидрогеологических факторов.

Корреляционные связи между концентрациями урана, ТУЭ и нитрат-иона

Для выбора наиболее представительного индикатора радиоактивного загрязнения подземных вод актинидами рассмотрены зависимости концентраций отдельных элементов - урана, плутония, нептуния и амерция в подземных водах от соответствующих концентраций самого миграционно способного техногенного компонента - нитрат-иона. Исходные данные представляют собой максимальные значения концентраций загрязняющих веществ, приуроченные к нижним интервалам водоносного горизонта, в одних и тех же скважинах, расположенных по всей площади ореола загрязнения подземных вод от оз. Карачай.

В соответствии с предложенной Б.Г. и Л.М. Самсоновыми классификацией (1987), связь актинидов с нитрат-ионом определяется как «связь между парой устойчивых в растворе стабильных индикаторов, мигрирующих в анионной форме или в форме нейтральных комплексов» исходя из: 1) для рассматриваемых актинидов период полураспада составляет сотни-тысячи-миллионы лет и может не учитываться, 2) проявление влияния процессов сорбции вероятно только в период становления ореола загрязнения, который, по данным многолетних наблюдений, составляет годы или первые десятки лет. (Основная часть взятых для расчета экспериментальных данных относится к центральной части ореола загрязнения, сформированной в течение 40-50 лет. В нашем случае сорбционные факторы могут оказывать свое влияние только для граничных точек ореола.)

Исходя из вышесказанного, искомые зависимости между индикаторами должны иметь линейную зависимость вида $C_a = aC_{NO_3} + b$, где под C_a и C_{NO_3} понимаются со-

ответствующие удельные активности/концентрации актинидов и нитрат-иона, отнесенные к исходной концентрации загрязняющих веществ (под исходной концентрацией понимается максимальная концентрация этих веществ в области неразбавленных растворов, сформировавшейся в водоносном горизонте под ложем оз. Карачай - таблица 5). Использование коэффициента b в линейном уравнении позволяет оценить погрешность и отклонение от пропорциональности полученной оценки (по отношению к максимальной концентрации).

Таблица 5 – Принятые для расчета максимальные концентрации (удельные активности) компонентов-загрязнителей подземных вод (C_0)

Нитрат-ион, мг/л	U, мг/л	Pu-239, 240, Бк/л	Am-241, Бк/л	Np-237, Бк/л
52900	62	2,05	6,4	18,2

Уравнения линейной зависимости определялись методом наименьших квадратов с помощью программы Statgraphics Plus 5.1. Полученные результаты представлены в таблице 6.

Таблица 6 – Уравнения линейной зависимости и коэффициенты корреляции между концентрациями нитрат-иона, урана и ТУЭ

Индикатор	Вид зависимости между удельной активностью/концентрацией актинидов и нитрат-иона	Коэффициент корреляции r
U	$U = -0,011 + 0,99 * NO_3$	0,99
Pu-239, 240	$Pu-239,240 = 0,08 + 0,74 * NO_3$	0,79
Am-241	$Am-241 = 0,05 + 0,35 * NO_3$	0,49
Np-237	$Np-237 = 0,22 + 0,75 * NO_3$	0,88

Обобщая результаты корреляционного анализа, можно сделать следующие выводы:

1) Между концентрациями нитрат-иона и актинидов в подземных водах существует корреляционная связь. Высокий коэффициент корреляции 0,79–0,98 для урана, плутония и нептуния подтверждает правомерность использования линейной зависимости и позволяет сделать вывод, что изменение содержания этих радионуклидов в подземных водах при удалении от источника загрязнения определяется, преимущественно, фильтрационной дисперсией, а само их распространение обусловлено, главным образом, несорбируемыми формами. Особенно это характерно для урана, который распространяется почти идентично нитрат-иону ($r=0,98$, $a=0,99$, $b=0,01$). Некоторое отклонение от линейности для плутония и нептуния ($r=0,79$ и $0,88$, $a=0,74$ и $0,75$, $b=0,05$ и $0,22$) характеризует, видимо, влияние граничных участков ореола загрязнения и может говорить о том, что в процессе миграции данных радионуклидов действуют и имеют определенное значение некоторые факторы задержки (к примеру, сорбция на породах водоносного горизонта в пределах передовой каймы ореола загрязнения).

2) Зависимость между америцием и нитрат-ионом нельзя рассматривать как строго линейную ($r=0,49$, $a=0,35$, $b=0,05$). Построенная для этого набора данных экспоненциальная зависимость типа $C_{Am} = \exp(a+b C_{NO_3})$ имеет более высокий коэффициент корреляции: $r=0,58$. Это свидетельствует о влиянии дополнительных факторов рассеяния кроме фильтрационной дисперсии.

Учитывая результаты корреляционного анализа, а также выявленные особенности геомиграционного поведения, уран можно рассматривать в качестве геохимического индикатора загрязнения подземных вод района оз.Карачай как долгоживущими альфа-излучающими, так и всеми остальными техногенными радионуклидами.

Глава 4 Условия нахождения урана и ТУЭ в породах водоносного горизонта района оз.Карачай

Постановка работ по изучению радионуклидов, в том числе и актинидов, находящихся в твердой фазе ореола загрязненных подземных вод района оз.Карачай, обусловлена двумя основными причинами:

необходимостью оценки влияния пород водоносного горизонта на миграцию радионуклидов, находящихся в подземных водах;

требованием учета возможной десорбции техногенных радионуклидов из водовмещающих пород (после консервации оз.Карачай и изоляции его от подземных вод, а также при изменении физико-химических условий в водоносном горизонте) при долгосрочном геомиграционном прогнозировании.

Комплексные лабораторные исследования, направленные на изучение распределения и форм нахождения урана и ТУЭ в андезито-базальтовых вулканитах, слагающих водоносный горизонт района оз.Карачай и служащих средой транспорта для содержащих техногенные нуклиды подземных вод, были начаты совсем недавно (в 1990-е годы) и проводились автором в составе большого коллектива специалистов ПО «Маяк», ВИМС им. Федоровского МПР РФ, 1111 «Гидроспецгеология», ГЕОХИ РАН, ФИБ-1 МЗ РФ.

В качестве объекта изучения использовались образцы пород, отобранные из керна наблюдательных гидрогеологических скважин, пробуренных в пределах как северной, так и южной частях ореола загрязненных подземных вод.

Удельная активность и распределение урана и ТУЭ в породах

Изучение радиоактивности пород водоносного горизонта района оз.Карачай комплексом лабораторных методов позволило выявить следующие особенности нахождения актинидов в твердой фазе ореола загрязненных подземных вод:

как и другие техногенные радионуклиды, актиниды в породах приурочены к участкам интенсивного проявления гипергенных изменений (проницаемые трещины разных порядков, выполненные вторичной минерализацией в слабо измененных породах нижней части профиля выветривания, являющейся средой транспорта для наиболее загрязненных подземных вод), активность практически отсутствует в основной массе вулканитов и на вторичных карбонатах;

наибольший вклад в суммарную альфа-активность пород вносит уран (до 99 %), его удельная активность во вторичной минерализации может достигать 1500-2000 Бк/кг;

удельная активность урана и плутония резко убывает по направлению от активной поверхности трещины, покрытой вторичными минералами, вглубь неизменной монолитной породы (глубина проникновения радионуклидов не превышает 5-7 мм), что говорит о крайне незначительной роли диффузионных процессов в мобилизации радионуклидов;

общий уровень загрязнения всего массива пород водоносного горизонта ураном и ТУЭ низкий и значительно меньше (на два порядка и более) граничного значения для твердых радиоактивных отходов.

Формы нахождения урана в горных породах

Определение минеральных форм техногенных радионуклидов в породах водоносного горизонта района оз.Карачай проводилось методом электронной микроскопии. Изучалась, в основном, тонкодисперсная гипергенная минерализация как радиоактивных, так и неактивных образцов из керна скважин.

Выполненные электронно-микроскопические исследования выявили следующее:

вторичные образования в радиоактивных образцах пород представлены минералами, характерными для окислительных физико-химических условий: железо- и марганецсодержащими гидроокислами (гидрогетит, ферроксигит, гидрогоматит и др.), слоистыми алюмосиликатами, поликомпонентной аморфной составляющей, апатитом, хлоритом, асболоном, вернадитом, ольдгамитом и др.; встречено природное углеродистое вещество; слаборадиоактивные образцы отличаются значительной долей карбонатно-аморфной составляющей;

обнаруженный в твердой фазе уран находится, в основном, в виде оксида, представленного четырьмя морфологическими разновидностями — пленочками, глобулами, кристаллами и в виде гелеподобного аморфного вещества; в единичных случаях встречены коффинит с пленочной формой обособления и отенит в виде микропластинок; размеры выделений урана - от сотых долей до первых мкм;

в крупных трещинках отмечены живые сульфат-редуцирующие бактерии, которые, по-видимому, способствовали созданию локальных восстановительных условий, что позволило сформироваться фазам четырехвалентного урана;

ТУЭ не образуют самостоятельных минеральных фаз и находятся в твердой фазе, вероятнее всего, изоморфно замещая уран (чему способствует одинаковая кристаллическая структура оксидов урана и плутония) и в связи с вторичными минеральной и аморфной фазами, обладающими высокой сорбционной способностью по отношению ко всем радионуклидам.

Защитные геохимические свойства геологической среды района оз. Карачай по отношению к актинидам

При прогнозировании миграции актинидов в подземных водах особое значение имеет объективная оценка защитных свойств геологической среды, то есть таких ее свойств, которые обуславливают противодействие распространению радионуклидного загрязнения в подземной гидросфере. Опыт гидрогеохимического изучения природных и техногенных процессов на месторождениях радиоактивного сырья показывает, что только детальное изучение физико-химического равновесия водных растворов с горными породами (с максимальным приближением к исходным состояниям) приводит к результатам, при которых теоретическое описание процессов хорошо согласуется с наблюдаемыми фактами.

Взаимодействие радиоактивных веществ с геологической средой включает в себя многообразные физико-химические процессы и явления (растворение и гидролиз, радиолит, ионный обмен и окислительно-восстановительные реакции, сорбция и соосаждение, коагуляция и кристаллизация, аморфизация и т.д.), последовательное изучение которых практически не возможно. Поэтому в геохимии и геоэкологии ши-

роко и эффективно применяются интегральные количественные показатели состояний и свойств природной гидрогеохимической среды, ее реакции на различные техногенные воздействия.

В условиях гипергенеза наиболее общими количественными показателями гидрогеохимической обстановки являются значения ее рН и Eh. Для характеристики гидрогеохимической среды рН и Eh измеряются в пробах подземных вод, отобранных с минимальными искажениями исходных свойств водного раствора (изоляция пробы от воздуха для исключения дегазации, окисления кислородом и т.п.). Для оценки состояний равновесия водного раствора с разновидностями пород и минералов применяется измерение их стационарных значений в герметично упакованных водонасыщенных тонко измельченных пастообразных суспензиях (Лисицин, 1975). Измерения в раздробленных образцах отражают свойства пород в объеме, а не только на поверхности трещин, что позволяет интерпретировать получаемые гидрогеохимические параметры как тот предел, который может быть достигнут при большой продолжительности установления равновесия водного раствора с горной породой. Измерение гидрогеохимических параметров *in situ* может производиться с помощью скважинного гидрогеохимического зонда (Солодов, 2004).

Для характеристики гидрогеохимических свойств силурийских вулканогенно-осадочных пород, слагающих водоносный горизонт в районе оз.Карачай, отбирались образцы исходного субстрата и гипергенно-преобразованных разностей в профиле коры выветривания. Измерения состояний равновесия (Eh-pH) пород с водным раствором показали вполне закономерное расположение полученных значений на диаграмме в координатах Eh-pH. Значения замеров образцов с признаками окисления железосодержащих минералов находятся в поле устойчивости гидроксидов **Fe(III)**, а исходные породы без признаков окисления - в поле устойчивости соединений **Fe(II)**. Окисленный глинистый элювий обуславливает широкий интервал рН от 5 до 8 и несколько более с преобладанием образцов с рН равновесия более 7. Слабокислую среду создает как часть образцов окисленного элювия, так и эпигенетически обеленные подпочвенные глины, размещающиеся на диаграмме в поле устойчивости соединений Fe(H).

Широкое поле господства окислительных условий в выветрелых породах с глубиной в исходных неокисленных породах сменяется более узкими вариациями слабощелочной среды при достаточно широких различиях восстановительной способности пород (значения Eh от 0 до -420 мВ при рН около 8 и более). Сопоставление результатов измерений Eh-pH стационарного равновесия водного раствора с породами окрестностей оз.Карачай и полей устойчивости оксидов урана, плутония, нептуния и америция (ниже -(150-200) мВ при рН несколько больше 7) позволяет полагать, что в исходных породах, не затронутых окислительными процессами, эти наиболее экологически опасные актиниды встречают среду, неблагоприятную для их миграции.

В слабощелочной восстановительной обстановке уран обнаруживает наибольшую устойчивость в растворе, поэтому он может рассматриваться как актинид, восстановительное осаждение которого из раствора можно считать гарантией осаждения плутония, нептуния и америция на восстановительном геохимическом барьере.

Таким образом, выветрелые и трещиноватые вулканы андезитобазальтового состава, слагающие водоносный горизонт района оз. Карачай, способны осаждают мигрирующие в потоке подземных вод уран и ТУЭ. Их задержание осуществляется вторичными сорбционноемкими минералами (гидроксидами и оксидами железа, марганца и титана, а также слоистыми алюмосиликатами и

другими гипергенными минералами), которые образовались на поверхностях трещин, являющихся путями транспорта загрязненных подземных вод. В неокисленных и неветрелых породах самых нижних частей водоносного горизонта и тектонических зон глубинного заложения имеются условия для полного восстановительного осаждения из подземных вод трансурановых актинидов (Pu, Np, Am), а в наиболее восстановленных породах - и урана в форме соответствующих оксидов.

В заключительной части диссертации сформулированы основные выводы, сделанные по результатам работы:

1. Озеро Карачай (В-9) — поверхностный накопитель жидких радиоактивных отходов (ЖРО) - с 1951 года является постоянно действующим источником загрязнения подземных вод радионуклидами, в том числе ураном и трансурановыми элементами. Природно-техногенные донные отложения водоема являются барьером, определяющим уровень альфа-активности актинидов, поступающих в водоносный горизонт. Нахождение урана в водах озера в слабосорбируемых анионных и нейтральных комплексах предопределяет его проникновение в подземные воды практически в исходных (десятки мг/л) концентрациях. Трансурановые элементы, напротив, хорошо задерживаются донными отложениями и содержатся в подземных водах в концентрациях на 2-5 математических порядков меньше исходных.

2. Уран и ТУЭ образуют в подземных водах пространственно совмещенные концентрически зональные ореолы, размеры и структура которых находятся в зависимости как от исходных концентраций и миграционных форм актинидов, так и от особенностей геологического строения рассматриваемой территории и гидрогеолого-гидрогеохимических условий в водоносном горизонте. Наибольшую площадь (17,3 км²), оконтуренную по величине уровня вмешательства (по НРБ-99), имеет ореол урана. Масштаб распространения других актинидов значительно меньше: ²³⁷Np – 13,4 км², ²⁴¹Am – 7,8 км², ²³⁹⁺²⁴⁰Pu – 7,2 км², ²⁴⁴Cm – 4,1 км².

3. В физико-химических условиях приповерхностного водоносного горизонта уран, в сравнении с другими техногенными радиоизотопами, находится в наиболее подвижной форме, что позволяет рассматривать его в качестве индикатора радиоактивного загрязнения подземных вод в районе оз. Карачай.

4. Ветрелые и трещиноватые вулканы андезито-базальтового состава, слагающие водоносный горизонт района оз. Карачай, способны осаждать мигрирующие в потоке подземных вод уран и ТУЭ. Их задержка осуществляется вторичными сорбционными минералами (гидроксидами и оксидами железа, марганца и титана, а также слоистыми алюмосиликатами и другими гипергенными минералами), которые образовались на поверхностях трещин, являющихся путями транспорта загрязненных подземных вод.

Основные публикации автора по теме диссертации

1 Дрожко Е.Г., Иванов И.А., Алексахин А.И., Самсонова Л.М., Глаголев А.В. Современное состояние подземной гидросферы в районе ПО "Маяк" // Вопросы радиационной безопасности. - 1996. - №1. - С. 11-19.

2 Задержка радионуклидов твердой фазой геологического массива вблизи озера Карачай / Дрожко Е.Г., Иванов И.А., Самсонова Л.М., Самсонов Б.Г., Малышев В.И., Бахур А.Е., Салмин Ю.П., Березина Л.А. // Вопросы радиационной безопасности. - 1996. - №2. - С.22-27.

3 Дрожко Е.Г., Иванов И.А., Самсонова Л.М., Василькова Н.А., Глаголев А.В., Тер-Саакян К.С., Зинин А.И., Зинина Г.А. Гидрогеологические условия района Карачай и численное моделирование миграции загрязнений в подземных водах // Вопросы радиационной безопасности. - 1996. - №4. - С.5-14.

4 Самсонов Б.Г., Малышев В.И., Бахур А.Е., Салмин Ю.П., Дубинчук В.Т., Березина Л.А., Иванов И.А., Алексахин А.И. Вещество задержки растворенных компонентов при прохождении радиохимических промстоков в геологическом массиве // Вопросы радиационной безопасности. - 1997. - №4. - С.28-34.

5 Drozhko E.G., Ivanov I.A., Aleksakhin A.I., Samsonova L.M., Vasilkova N.A. Mayak Site Characterization: Interpretation of field tests for evaluation of hydraulic properties of fractured rock // Joint Russian-American Hydrology Seminar, July 8-9 1997, PUB-804. - LBNL, Berkeley, California, 1997. - P. 15-33.

6 Дрожко Е.Г., Иванов И.А., Самсонова Л.М., Глаголев А.В., Тер-Саакян Н.Ф., Скоков А.В., Луни Б., Николе Р. Определение гидрогеологических параметров в неоднородных анизотропных трещиноватых средах (Часть I. Постановка полевых экспериментов и предварительные результаты) // Вопросы радиационной безопасности. - 1998. - №1. - С.9-22.

7 Glagolev, A.V., Ter-Saakian S. A., Ivanov I. A., Poshokov A. K., Looney B. B., Nichols R. L., A. Hutter. Russian/American field studies around Lake Karachai. // Proceedings of the Spectrum '98 conference. - American Nuclear Society, LaGrange, Illinois, 1998. - P. 927-931.

8 Drozhko E. G., Glinsky M. L., Alexahkin A.I., Ivanov I. A., Poshokov A. K., Looney B. B., Nichols R. L., Hutter A. R. Russian/American Subsurface Contaminant Transport Studies Around Lake Karachai // Proceedings of the Fourth International Symposium and Exhibition on Environmental Contamination in Central and Eastern Europe - Warsaw-98. - Florida State University, Tallahassee, Florida, 1999.

9 Drozhko E., Glinsky M., Glagolev A.V., Alexahkin A.I., Ivanov I.A., Poshokov A. K., Looney B.B., Nichols R. L., Hutter A. R. Russian/American Subsurface Contaminant Transport Studies Around Lake Karachai // Proceedings of the Fourth International Symposium and Exhibition on Environmental Contamination in Central and Eastern Europe - Warsaw-98. - Florida State University, Tallahassee, Florida, 1999.

10 Drozhko E., Ivanov I., Mokrov Yu., Samsonova L., Kochergina N. Study of the Industrial Solutions and Water-Bearing Rocks Interaction in the Process of Contaminated Transport // Proceedings of the 4th US/CIS Joint Conference on Environmental Hydrology and Hydrogeology, San Francisco, California, USA, 7-11 November, 1999.

11 Sysoev A.N., Petrov V.A., Ivanov I.A., Volkov A.B. Geomorphological and tectonophysical approach to the identification of sites for radioactive waste disposal at the PA Mayak territory, Russia // Radioactive Waste Management and Environmental Remediation, ASME, 1999.

12 Бахур Е.А., Березина Л.А., Дрожко Е.Г., Дубинчук В.Т., Иванов И.А., Кочергина Н.В., Малышев В.И., Мануйлова Л.И., Салмин Ю.П., Самсонов Б.Г., Самсонова Л.М. Особенности задержки горными породами техногенных радионуклидов, мигрирующих в подземных водах вблизи оз.Карачай // Материалы Международного симпозиума по геологии урана. - Москва, 2000. - С. 153-154.

13 Drozhko E., Ivanov L., Glinisky M., Kotcherghina N., Hutter A. Retardation factors of industrial radionuclides migrating with groundwater in fractured rocks near lake Karachay // Atmospheric, Surface and Subsurface Hydrology and Interactions. 2000 Annual Meeting and International Conference of the American Institute of Hydrology, North Carolina, November 5-8,2000 - P. 21-22.

14 Лисицин А.К., Мыскин В.И., Ганина Н.И., Шулик Л.С., Дрожко Е.Г., Иванов И.А., Алексахин А.И. Защитные геохимические свойства геологической среды района озера Карачай // Вопросы радиационной безопасности. - 2001. - №4. - С.9-22.

15 Drozhko E.G., Ivanov L.A., Samsonova L.M., Glagolev A.V., Glinisky M.X., Ter-Saakian N.F., Skokov A.V., Looney B., Nichols R., Hutter A., Wollenberg H. Assessment of hydrological parameters in heterogeneous fractured rock // Environmental Geology. - 2002. - Vol. 42. - №2-3. - P. 178-186.

16 Иванов И.А., Алексахин А.И., Самсонова Л.М., Глаголев А.В., Кочергина Н.В. Взаимодействие промышленных растворов с породами водоносного горизонта района оз. Карачай - хранилища жидких радиоактивных отходов // Техногенная трансформация геологической среды: Материалы Международной научно-практической конференции, Россия, Екатеринбург, УГГА, 17-19 декабря 2002.

17 Иванов И.А., Постовалова Г.А. Миграция техногенного урана в подземных водах района озера Карачай // Вопросы радиационной безопасности. - 2003. - №1. - С. 44-52.

18 Глаголенко Ю.В., Дрожко Е.Г., Мокрое Ю.Г., Стукалов П.М., Иванов И.А., Алексахин А.И. Современное состояние и обеспечение вывода из эксплуатации водоемов-хранилищ жидких среднеактивных отходов — озера Карачай и хранилища Старое Болото / Вопросы радиационной безопасности. - 2003. - №1. - С. 14-19.

19 Лаверов Н.П., Петров В.А., Величкин В.И., Полуэктов В.В., Жариков А.В., Насимов Р.М., Дьяур Н.И., Ровный С.И., Дрожко Е.Г., Иванов И.А. Петрофизические и минерально-химические аспекты выбора участков для изоляции ВАО в метавулканитах района ПО «Маяк», Южный Урал // Геоэкология. - 2003. - №1. - С.5-22.

20 Дрожко Е.Г., Стукалов П.М., Иванов И.А., Алексахин А.И. Результаты комплексного обследования водоема 9 в 2002 году // Вопросы радиационной безопасности. - 2004. - №1. - С.33-43.

Отпечатано на ризографе
в ЦЗЛФГУП «ПО «Маяк»

Уд. 22/4763

#22954