

Биогеохимические факторы миграции урана и технеция в подземных водах в районе поверхностных и глубинных хранилищ РАО

Р.А. Алдабаев, Н.М. Попова, Н.Д. Андрищенко, К.А. Болдырев, А.В. Сафонов,
К.Э. Герман, Е.В. Захарова

Институт физической химии и электрохимии им. А.Н. Фрумкина Российской академии наук, 119071, Москва, Ленинский проспект, 31, корп. 4
Институт безопасного развития атомной энергетики РАН

В статье приведены результаты исследований влияния микроорганизмов на иммобилизацию урана и технеция на песчаных породах верхних водоносных горизонтов в районе законсервированного хранилища жидких радиоактивных отходов (РАО) водоема Б-2 АО «СХК». В основе исследования лежали работы по лабораторному и компьютерному геохимическое моделированию в программном коде PREEQC. Показано, что под влиянием микроорганизмов могут формироваться восстановительные условия, способствующие иммобилизации радионуклидов с переменной степенью окисления в смеси с биогенным сульфидом. При этом обрастание поверхности частиц водоносных пород микробными биопленками полисахаридной природы приводит к повышению эффективности иммобилизации урана.

Biogeochemical impact of Uranium and Technetium migration in subsurface water near to RW repository R.A. Aldabaev, N.M. Popova, N.D. Andryushchenko, K.A. Boldyrev, A.V. Safonov, K.E. German, E.V. Zakharova Russian academy of sciences A.N. Frumkin Institute of Physical chemistry and Electrochemistry RAS

The paper presents data on the role of microbiological factors in behavior, uranium and technetium in the upper aquifers (10-15 m) near the surface repository of radioactive waste (Russia, Tomsk region). The presence of nitrate ions and a small amount of dissolved oxygen leads to high values of the redox potential, which creates the prerequisites for uranium and technetium high migration activity in higher oxidation states. The results of computer geochemical modeling have shown that the immobilization of technetium in the formation occurs mainly in the form of a tetravalent oxide and in a mixture with a biogenic sulphide. Uranium is immobilized in the form of biogenic uraninite.

В работе исследовали микробное сообщество пластовой воды, отобранной на территории АО «СХК» из наблюдательных скважин по контуру законсервированного хранилища жидких РАО – бассейна Б-2. Состав микробного сообщества пластовой жидкости, отобранной из этих скважин, был проанализирован методом высокопроизводительного секвенирования генов 16S рРНК. В полученных библиотеках генов 16S рРНК на уровне высших таксонов домена *Bacteria* численно преобладали последовательности бактерий филума *Proteobacteria* (97%), были обнаружены также последовательности бактерий филумов *Actinobacteria*, *Bacteroidetes*, *Firmicutes* и *Parcubacteria*, большая часть которых способна использовать нитраты и металлы в высших степенях окисления в качестве акцепторов электронов. Максимальная численность аэробных органотрофных (до 10^6 кл/мл), а также факультативно анаэробных денитрифицирующих бактерий (10^5 кл/мл) была отмечена в пробах с высоким уровнем загрязнения. Во всех пробах численность сульфатредуцирующих и железоредуцирующих бактерий была низка, вероятно, вследствие высокого окислительно-восстановительного потенциала среды, обусловленного повышенным содержанием нитратов в воде. Установлено, что стимулирование микробного сообщества органическими соединениями приводило к смещению ОВП потенциала системы в восстановительную область (рис 1 а).

Эксперимент по сорбции технеция в присутствии бактерий был проведен на пробах песка, отобранных из загрязненных водоносных горизонтов. Сорбция технеция на исходном песке не превышала 5 %, тогда как в присутствии микроорганизмов за 21 сутки достигла 100%, что можно объяснить снижением его растворимости в результате биовосстановления Tc (VII) до Tc (IV).

Соотношение содержания окисленных и восстановленных форм урана и технеция на песке в присутствии микробного сообщества и без него приведены на рисунке 1б. Отметим, что только в присутствии микроорганизмов происходило полное восстановление урана и технеция.

На основании полученных экспериментальных результатов было проведено компьютерное моделирование форм урана и технеция для геохимических условий, соответствующих верхнему водоносному горизонту. При лабораторном моделировании биологических процессов в системе происходило восстановление сульфат-ионов до сульфид-ионов, выпадающих в виде черного осадка сульфида железа, который также может способствовать иммобилизации ряда металлов в восстановленной форме, например, технеция.

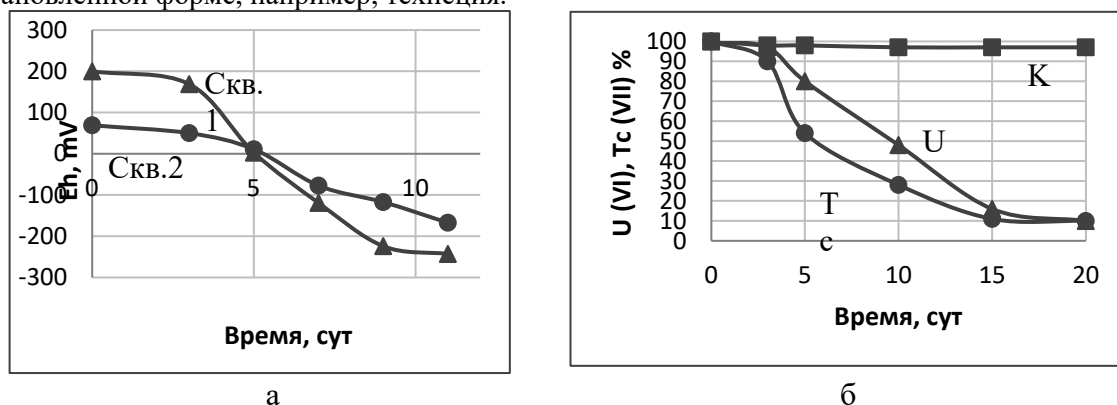


Рис.1. (а) снижение редокс-потенциала в пробах пластовой воды из скважин 1 и 2 (б) и восстановление урана и технеция в пробах из скважины 1

Таблица 1. Значения индексов насыщения (SI) для твердых фаз нижних степеней окисления урана и технеция для системы раствора 1 в зависимости от окислительно-восстановительных условий среды

Eh мВ	SI							
	Уранинит	UO _{2(ам.)}	UO _{2.25}	UO _{2.25(beta)}	UO _{2.33(beta)}	Tc ₂ S ₇	TcO ₂ :2H ₂ O _(ам.)	TcS ₂
70	0.03	-4.92	0.15	0.07	-0.16	-141.90	-0.46	-37.80
50	0.73	-4.21	0.68	0.60	0.78	-112.55	0.87	-27.94
30	1.43	-3.51	1.19	1.12	1.70	-94.40	1.05	-22.06
0	2.32	-2.62	1.82	1.74	2.78	-49.88	1.07	-7.81
-70	2.77	-2.18	1.64	1.56	2.00	12.40	1.07	12.12
-120	2.77	-2.17	1.20	1.12	0.82	56.88	1.07	26.35
-150	2.77	-2.17	0.93	0.86	10.11	83.56	1.07	34.89

На основании проведенных расчетов (табл. 1), потребление кислорода в системе и соответственно снижение окислительно-восстановительного потенциала до -250 мВ (рис. 1а) за счет микробных процессов должно привести к полному восстановлению уранил- и пертехнетат-ионов. Основная биогенная фаза урана в заданных геохимических условиях, близких условиям исследованного подземного песчаного водоносного горизонта, будет представлена уранинитом и смешанными оксидными формами, для технеция будут доминировать восстановленные сульфидные минералы.

1. К.Е. German, V. Peretrukhin, et all. Sorption of long-lived technetium from radioactive wastes and ground water by sulfides and sulfide rocks. Proceedings of the "Fourth International Symposium on Technetium in Chemistry and Nuclear Medicine". Seminario Maggiore, Bressanone, (Italy) 12-14 Settembre 1994. Eds. M. Nicolini, G. Bandoli, U. Mazzi. SGEditoriali, Padova. 1994. Pp. 93-97.
2. J. R. LLOYD, H.-F. NOTING, V. A. SOLE, K. BOSECKER, and L. E. MCASKIE, Technetium Reduction and Precipitation by Sulfate-Reducing Bacteria, Geomicrobiology Journal 15, 45 (1998).