

---

КОНТИНЕНТАЛЬНАЯ РАДИОЭКОЛОГИЯ

---

УДК 546.79:543.52:579.695

ИММОБИЛИЗАЦИЯ U, Nr, Pu И Am  
НА ВМЕЩАЮЩИХ ПОРОДАХ ВОДОНОСНЫХ ГОРИЗОНТОВ  
ПОСЛЕ МИКРОБНОГО БИООБРАСТАНИЯ

© 2025 г. И. Ю. Мясников<sup>1,\*</sup>, Г. Д. Артемьев<sup>2</sup>, А. В. Сафонов<sup>1</sup>,  
М. Б. Попова<sup>1</sup>, И. Е. Казинская<sup>1</sup>, А. П. Новиков<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Институт геохимии и аналитической химии РАН им. В. И. Вернадского, г. Москва, Россия

<sup>2</sup>Институт физической химии и электрохимии РАН им. А. Н. Фрумкина, г. Москва, Россия

\*E-mail: myasnikov@geokhi.com

Поступила в редакцию 10.09.2024 г.

После доработки 31.10.2025 г.

Принята к публикации 12.11.2025 г.

В статье приведены результаты исследований влияния микроорганизмов на иммобилизацию урана, нептуния, плутония и америция на песчаных породах из верхних и нижних водоносных горизонтов пластовых вод, отобранных вблизи законсервированного хранилища жидких радиоактивных отходов и хранилища жидких радиоактивных отходов ОАО “СХК”. Показано, что под влиянием микроорганизмов могут формироваться восстановительные условия, способствующие иммобилизации радионуклидов с переменной степенью окисления. Микробные процессы восстановления сульфатов могут приводить к образованию железистых сульфидных осадков, что является важным фактором иммобилизации актинидов на вмещающих породах. Обрастание поверхности частиц водоносных пород микробными биопленками также приводит к повышению эффективности иммобилизации актинидов. Стимулирование микробных процессов может способствовать формированию восстановительного сорбционно-осадительного барьера *in situ* вблизи хранилищ радиоактивных отходов.

**Ключевые слова:** актиниды, микроорганизмы, биопленки, вмещающие породы водоносных горизонтов, сорбция, биовосстановление, биотрансформация

**DOI:** 10.7868/S3034590125060097

Радиационная опасность объектов атомной энергетики и связанной с ними инфраструктуры определяется безопасным хранением радиоактивных отходов. Наиболее острые проблемы создаются жидкими радиоактивными отходами (ЖРО), образование которых сопровождает все этапы ядерного топливного цикла (ЯТЦ). На Сибирском химическом (СХК) и Горно-химическом комбинатах (ГХК) для утилизации ЖРО применяется их закачка в глубоко залегающие пластины осадочных пород [1] на глубинах 300–400 м. На ряде предприятий, особенно на начальных этапах их деятельности, для хранения ЖРО преимущественно низкого уровня активности использовались поверхностные бассейны-хранилища. Если при глубинной закачке латеральная и вертикальная миграция радионуклидов составляет не более чем несколько десятков метров [2], то при хранении ЖРО в поверхностных бассейнах происходит постепенная деградация гидроизолирующих свойств их стенок, что приводит

к неконтролируемой миграции радионуклидов в подземных водах [3] и риску их попадания в водозаборы и открытую гидросеть.

При оценке миграции наиболее опасных долгоживущих радионуклидов (уран, плутоний, америций, нептуний) в подземных водах вблизи хранилищ РАО необходимо учитывать геохимические условия подземных вод, минеральный и фракционный состав вмещающих пород, гидрогеологические параметры водоносных горизонтов. В подземных водах при захоронении ЖРО обеспечивается низкая скорость водообмена и высокая сорбционная емкость пород для актинидов в восстановительных условиях, в приповерхностных водах контакт с поверхностью создает дополнительные риски миграции актинидов в окислительных условиях. В предыдущих работах изучено влияние на миграцию радионуклидов в глубинных водоносных горизонтах ряда факторов, таких как состав воды, взвешенного

вещества и вмещающих пород [4, 5]. Изучен состав и морфология коллоидных частиц, содержащих радионуклиды [6, 7].

Причинами возникновения геохимического противомиграционного барьера для актинидов в подземных и приповерхностных водах могут быть микробиологические процессы, инициируемые высоким нитратным фоном ЖРО [8]. Ранее для верхних (в районе водоема Б2) и нижних горизонтов (Пл 18, 18а) Сибирского химического комбината были проведены микробиологические исследования [9, 10]. В пробах из верхнего горизонта выявлены бактерии филумов *Proteobacteria*, *Actinobacteria*, *Bacteroidetes*, *Firmicutes* и *Parcubacteria*. Среди них присутствовали организмы как с аэробным, так и с анаэробным типом дыхания, например, бактерии родов *Thermotomas*, *Pseudomonas*, способные восстанавливать широкий ряд окислителей, включая нитрат-, арсенат-, ванадат- и хромат-ионы, уран, плутоний. В глубинных водоносных горизонтах выявлены бактерии, способные восстанавливать железо (+3), сульфат-ионы и другие окислители, принадлежащие к родам *Shewanella*, *Sulfuricurvum*, *Thiobacillus*, *Acidiferrobacter*, *Sulfuritalea*, *Simplicispira*, *Sulfuricella*, *Sulfuriferula*.

Целью данной работы была оценка роли биогенных фаз, полученных в процессе культивирования микрофлоры в пробах подземных вод, на сорбцию актинидов (U, Nr, Ru, Am).

## МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ

### Материалы

Пробоотбор подземных вод проведен из скважин после откачки воды в объеме полутора стволов. Вода для химического анализа при пробоотборе была профильтрована через фильтр из стекловолокна с диаметром пор 500–600 нм в герметичные стеклянные емкости, предварительно заполненные азотом. Определение pH, Eh проводили на месте отбора проб.

Измерение активности актинидов проводили на альфа-спектрометре Alpha Analyst (Canberra Ind) с полупроводниковым детектором с площадью чувствительной зоны 600 мм<sup>2</sup>. Время набора спектра подбирали таким образом, чтобы относительная ошибка определения не превышала 5% при  $P = 0.95$ .

Оценка разнообразия микробных сообществ в пробах, загрязненных радионуклидами под-

земных вод из верхних и нижних водоносных горизонтов в районе хранилища радиоактивных отходов, а также характеристизация проб суглинков, подверженных биогенному преобразованию, была выполнена сотрудниками Федерального исследовательского центра “Фундаментальные основы биотехнологии” РАН и Института физической химии и электрохимии им. А.Н. Фрумкина РАН. Информация приведена в выпусках журналов серий Genome announcement [10, 11].

Пробы пластовой воды верхнего (1) и нижнего горизонта (2), профильтрованные через фильтр 0.22 мкм, использовали в качестве водной фазы при проведении сорбционного эксперимента. Состав водных фаз представлен в табл. 1.

На втором этапе эксперимента были использованы песчано-суглинистые породы верхнего и нижнего горизонтов:

1. Суглинок из верхнего горизонта в районе бассейна ЖРО, 14 м;
2. Супесь из зоны дисперсии РАО в районе полигона Северский АО “СХК”, 333 м;
3. Супесь из зоны дисперсии РАО в районе полигона Северский АО “СХК”, 335 м;
4. Супесь из зоны дисперсии РАО в районе полигона Северский АО “СХК”, 335 м;
5. Супесь из зоны дисперсии РАО в районе полигона Северский АО “СХК”, 330 м.

Элементный состав пород представлен в табл. 2, минералогический в табл. 3.

**Таблица 1.** Состав водных фаз

**Table 1.** Composition of aqueous phases

| Элемент | Единицы измерения | Проба 1 | Проба 2 |
|---------|-------------------|---------|---------|
| Al      | мг/л              | 003     | <0.008  |
| Ca      |                   | 83.0    | 151.5   |
| Fe      |                   | <0.01   | <0.01   |
| K       |                   | 2.93    | 15.4    |
| Mg      |                   | 26.9    | 76.8    |
| Na      |                   | 229     | 411     |
| P       |                   | <0.01   | <0.01   |
| S       |                   | 11.8    | 89.5    |
| Si      |                   | 6.19    | 8.78    |
| Mn      |                   | 250     | 114     |
| Ba      | Мкг/л             | 158     | 229     |
| Sr      |                   | 7595    | 435     |
| U       |                   | 126     | 0.4     |

**Таблица 2.** Элементный состав образцов супесей, мас. %**Table 2.** Elemental composition of sandy loam samples, wt %

| Образец | Na <sub>2</sub> O | MgO  | Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> | SiO <sub>2</sub> | K <sub>2</sub> O | CaO  | TiO <sub>2</sub> | MnO   | Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> | P <sub>2</sub> O <sub>5</sub> | S     |
|---------|-------------------|------|--------------------------------|------------------|------------------|------|------------------|-------|--------------------------------|-------------------------------|-------|
| 1       | 1.68              | 1.14 | 8.64                           | 79.32            | 1.69             | 1.46 | 0.39             | 0.038 | 2.75                           | 0.07                          | 0.09  |
| 2       | 3.18              | 2.80 | 7.78                           | 74.20            | 1.98             | 4.45 | 0.01             | 0.001 | 2.15                           | 0.05                          | 2.78  |
| 3       | 1.11              | 0.98 | 11.81                          | 77.51            | 2.82             | 0.44 | 0.60             | 0.11  | 4.41                           | 0.10                          | <0.02 |
| 4       | 1.20              | 0.96 | 11.69                          | 79.03            | 3.00             | 0.46 | 0.57             | 0.06  | 2.84                           | 0.08                          | <0.02 |
| 5       | 1.2               | 1.4  | 13.4                           | 75.7             | 2.9              | 1.5  | 0.78             | 0.11  | 2.9                            | 0.1                           | <0.02 |

**Таблица 3.** Минеральный состав образцов, %**Table 3.** Mineral composition of samples, %

| Минерал               | 1  | 2  | 3  | 4  | 5  |
|-----------------------|----|----|----|----|----|
| Кварц                 | 50 | 42 | 49 | 53 | 36 |
| Сидерит               | 4  | —  | 3  | 1  | 4  |
| Кальцит               | —  | 4  | —  | —  | —  |
| Калиевый полевой шпат | 22 | 20 | 20 | 20 | 10 |
| Альбит                | 3  | 6  | —  | —  | 25 |
| Амфибол               | —  | —  | —  | —  | 2  |
| Гетит                 | 4  | 2  | 3  | 1  | —  |
| Смектит               | 8  | 13 | 5  | 5  | 10 |
| Каолинит              | 3  | 3  | 5  | 5  | 5  |
| Иллит                 | 5  | 10 | 5  | 5  | 5  |
| Хлорит                | —  | —  | —  | —  | 3  |

## МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТОВ

Эксперименты проходили в два этапа. На первом были использованы образцы воды, отобранные из нижнего (1) и верхнего (2) горизонтов, в которых проводилось стимулирование микробных процессов путем добавления глюкозы. Пробы культивировались при комнатной температуре в течение двух месяцев до появления соответствующих осадков. Для появления сульфидных осадков в пробы было добавлено 1.5 г/л сульфата натрия, для появления железистых осадков были добавлены растворимые формы железа: в первом случае 500 мг/л хлорида железа(III), во втором —нитрат железа(II). Пробы с окисленным и восстановленным железом были продуты аргоном для создания анаэробной атмосферы. После появления осадков биогенного окисленного (Fe<sub>3</sub>) и восстановленного (Fe<sub>2</sub>) же-

леза и сульфидного осадка (S<sub>2</sub>), их отделяли путем центрифugирования, сушили в анаэробной атмосфере и проводили сорбционные эксперименты.

Полученные осадки были рентгеноаморфны, по данным дифференциальной сканирующей калориметрии (ДСК) осадок Fe<sub>2</sub> содержал смесь аморфных оксигидроксидов железа, осадок Fe<sub>3</sub> был более кристалличен. На основе данных порошковой дифрактометрии в нем наблюдались фазы, которые можно отнести к гетиту и ферригидриту. В сульфидном осадке на фоне рентгеноаморфного гало наблюдались кристаллические фазы, которые можно отнести к пирротину и троилиту. Во всех случаях в составе осадка содержалось 10–20% органического вещества полисахаридной бактериальной биопленки.

Породы подвергались биогенному преобразованию путем их двухмесячного культивирования с глюкозой в качестве источника углерода в водной фазе соответствующего горизонта.

Для анализа прочности связывания актинидов использовали наиболее часто применяемую схему Tessier [12]. В соответствии с этой схемой выделяют следующие фракции (табл. 4): обменная, специфически сорбированная (связанная с карбонатами), связанная с Fe–Mn-оксидами, связанная с органическим веществом и остаточная.

При работе с обработанными суглинками водоносных горизонтов сорбция радионуклидов проводилась в анаэробных условиях из модельных растворов, отличающихся содержанием нитрата натрия. Первый раствор его не содержал, во втором его концентрация достигала 10000 мг/л, значение pH обоих растворов был в районе 7.0. Объем водной фазы был 10 мл, вес твердого образца — 1 г. Все эксперименты про-

**Таблица 4.** Фракции десорбции по методу [12]**Table 4.** Desorption fractions by the method

| Форма                    | Реагенты  | Время контакта фаз, ч, Т |
|--------------------------|---|--------------------------|
| 1. Обменная              | 1 М $\text{NH}_4\text{COOH}$ (рН = 7.0)   | 16, 20°C                 |
| 2. Карбонаты             | 1 М $\text{CH}_3\text{COOH}$ (рН = 7.0)   | 16, 20°C                 |
| 3. Fe/Mn оксиды          | 0.4 М $\text{NH}_2\text{OH} \cdot \text{HCl}$ в 25% $\text{CH}_3\text{COOH}$ (рН = 1.0)         | 4, 800°C                 |
| 4. Органические вещества | 30% $\text{H}_2\text{O}_2$ , затем 1 М $\text{NH}_4\text{COOH}$ в 20% $\text{HNO}_3$ (рН = 2.0) | 16, 200°C                |
| 5. Остаток               | HF, 1 : 10 (рН = 0)   | 3, 1050°C                |

водили на обработанных микроорганизмами породах (системы 1–5) и необработанных (система –10).

## РЕЗУЛЬТАТЫ

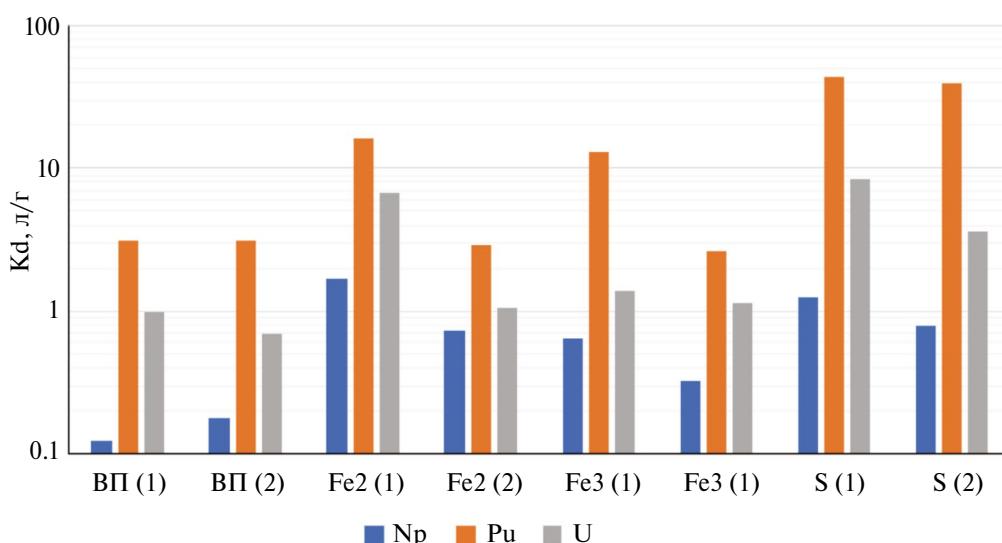
### *Сорбция урана, нептуния, плутония и америция вмещающими породами до и после биогенного воздействия*

Результаты сорбционных экспериментов на биогенных фазах при добавлении сульфата

и железа к пробам воды верхнего и нижнего горизонтов представлены на рис. 1. После добавления железа во всех случаях образовались оксидно-гидроксидные железистые фазы, при добавлении сульфатов отмечено образование сульфидных железистых фаз, анализ которых методом порошковой дифракции был невозможен из-за их рентгеноаморфности. В окислительных условиях добавление железа привело к образованию гидроксидных фаз с доминированием железа 3+.

Значения коэффициентов распределения актинидов на всех биогенных твердых фазах были выше, чем на породах. Плутоний сорбировался значительно сильнее, чем уран и нептуний. Степень сорбции урана из вод верхнего горизонта во всех случаях меньше, чем из нижнего. Это объясняется, по-видимому, более высокой концентрацией урана в водной фазе (табл. 1). Коэффициенты сорбции всех актинидов были максимальны на биогенных сульфидах. Важно отметить, что нептуний эффективно сорбируется также и на двухвалентном железе. Полученные сорбционные закономерности можно объяснить данными по степеням окисления десорбированных 1 М HCl актинидов. Определение степеней окисления актинидов проводили методами люминесценции на активированных ими кристаллофосфорах и мембрально-экстракционным [13].

В водной фазе после сорбции нептуний был пятивалентным. Содержание плутония и урана в водной фазе после сорбции слишком мало



**Рис. 1.** Квазиравновесные коэффициенты распределения, л/г. ВП — вмещающая порода без биогенного преобразования.

**Fig. 1.** Quasi-equilibrium distribution coefficients, L/g. HR — host rock without biogenic transformation

для определения состояния окисления. После десорбции 1М HCl уран и плутоний находились в шести- и четырехвалентных состояниях соответственно.

По экстракционным данным U(IV) и Np(IV) в заметных количествах до 50% были обнаружены только в системах с биогенным двухвалентным железом и биогенными сульфидами.

Для получения дополнительной информации по формам нахождения радионуклидов в биогенных твердых фазах и прочности их связи были проведены эксперименты по последовательному выщелачиванию (табл. 5–7).

Все полученные биогенные фазы прочно удерживают актиниды. Плутоний в наибольшей степени обнаружен в органической фракции. Уран — во фракции оксидов. Нептуний

ведет себя подобно плутонию, что косвенно подтверждает его восстановительную сорбцию на биогенных фазах. Однако для фазы с окислительными свойствами ( $Fe^{3+}$ ) в остатке обнаруживается значительно меньше нептуния (всего 20%) и почти столько же в подвижной карбонатной фракции. В этой фракции обнаруживается и значительное количество урана. Для сульфидов железа история получения сорбционного материала не имеет значения, препараты после сорбции из разных горизонтов не отличаются по прочности связи актинидов с твердой фазой. Уран менееочно связан, чем плутоний — до 10–13% находятся в подвижных фракциях, для плутония только 5–9%. В труднорастворимых фракциях уран находится в основном во фракции оксидов, плутоний — в органическом веществе. В остатке находится 31–39% урана и 59–66% плутония.

Квазиравновесие установилось для плутония за 5 дней, америция — 10 дней, урана — 15 дней, нептуния 50 дней. На рис. 2 приведены степени сорбции радионуклидов из слабо минерализованного раствора 1. На рис. 3 — из сильно минерализованного раствора 2.

Плутоний количественно сорбировался из обоих растворов на всех образцах, как подвергшихся микробному росту, так и без микробиоты. Сорбция урана была выше из раствора 1, причем на образцах 1–5 существенно выше, чем на образцах 6–10 (не подвергенных биопреобразованию). На образцах 2 и 5 уран сорбировался количественно, что может указывать на редокс-преобразование форм окисления урана. Сорбционное поведение нептуния сходно с ураном, но, неожиданно, степени сорбции нептуния оказались выше, чем урана. Так как Np(V) является самой слабо сорбируемой формой, это также указывает на возможное восстановление нептуния до Np(IV). Америций сорбируется не полностью и в одинаковой степени на биогенных и абиогенных образцах. Проведенное определение форм окисления актинидов в солянокислом растворе после десорбции из биогенных фаз показало, что в растворе — смесь U(IV), U(VI), Np(IV) и Np(V). Содержание актинидов в низких состояниях окисления наибольшее в образцах 2 и 5, что позволяет объяснить сорбционные данные. Плутоний и америций находятся в самых устойчивых формах Pu(IV) и Am(III).

Таким образом, проведенные исследования показывают высокую сорбционную эффективность биогенных минеральных осадков.

**Таблица 5.** Степени выделения плутония, %

**Table 5.** Degrees of plutonium release, %

| Проба   | 1<br>(обмен.) | 2<br>(карб.) | 3<br>(оксид.) | 4<br>(орг.) | 5<br>(остаток) |
|---------|---------------|--------------|---------------|-------------|----------------|
| Fe2 (1) | 5             | 3            | 10            | 23          | 59             |
| Fe3 (2) | 1             | 4            | 12            | 17          | 66             |
| S (1)   | 3             | 3            | 13            | 20          | 61             |
| S (2)   | 6             | 3            | 12            | 16          | 63             |

**Таблица 6.** Степени выделения урана, %

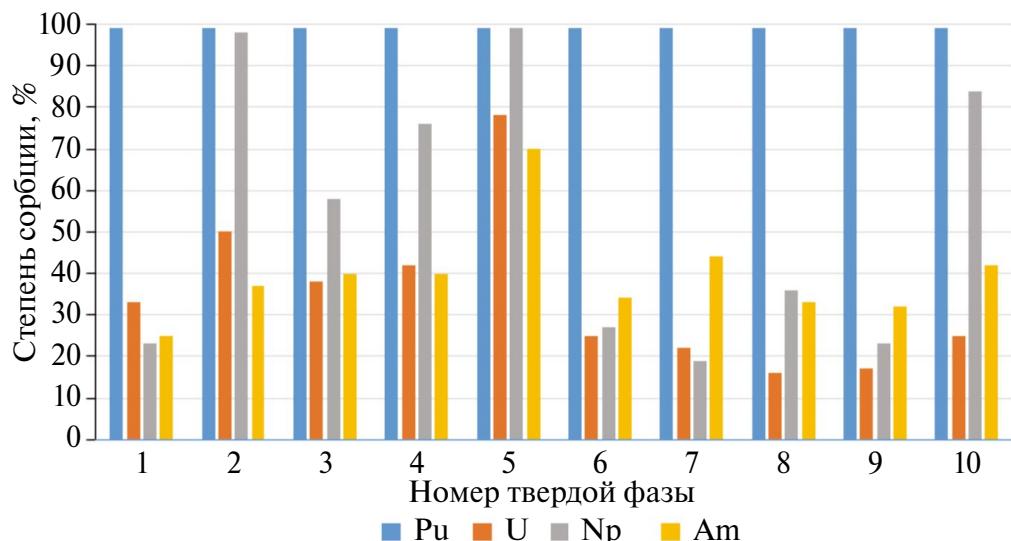
**Table 6.** Degrees of uranium release, %

| Проба   | 1<br>(обмен.) | 2<br>(карб.) | 3<br>(оксид.) | 4<br>(орг.) | 5<br>(остаток) |
|---------|---------------|--------------|---------------|-------------|----------------|
| Fe2 (1) | 4             | 8            | 32            | 17          | 39             |
| Fe3 (2) | 2             | 10           | 34            | 17          | 37             |
| S (1)   | 4             | 6            | 36            | 21          | 33             |
| S (2)   | 6             | 7            | 34            | 22          | 31             |

**Таблица 7.** Степени выделения нептуния, %

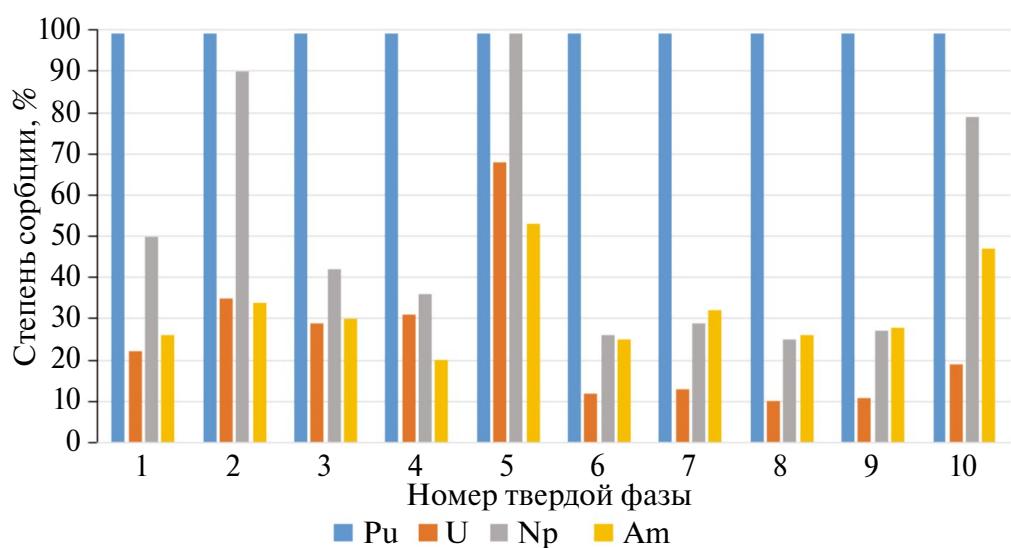
**Table 7.** Degrees of neptunium release, %

| Проба   | 1<br>(обмен.) | 2<br>(карб.) | 3<br>(оксид.) | 4<br>(орг.) | 5<br>(остаток) |
|---------|---------------|--------------|---------------|-------------|----------------|
| Fe2 (1) | 2             | 4            | 11            | 32          | 51             |
| Fe3 (2) | 1             | 17           | 35            | 27          | 20             |
| S (1)   | 2             | 5            | 15            | 30          | 48             |
| S (2)   | 2             | 6            | 15            | 31          | 46             |



**Рис. 2.** Степени сорбции радионуклидов из раствора 1%. Номер твердой фазы соответствует породам 1–5, приведенным в табл. 1, обработанных микроорганизмами породах (системы 1–5) и необработанных (система 6–10).

**Fig. 2.** Sorption degrees of radionuclides from solution 1%. The solid phase numbers correspond to rocks 1–5 listed in Table 1, treated with microorganisms (systems 1–5) and untreated (systems 6–10).



**Рис. 3.** Степени сорбции радионуклидов из раствора 2, (солевой раствор)%. Номер твердой фазы соответствует породам 1–5, приведенных в табл 1, обработанных микроорганизмами породах (системы 1–5) и необработанных (система 6–10).

**Fig. 3.** Sorption degrees of radionuclides from solution 2 (saline solution), %. The solid phase numbers correspond to rocks 1–5 listed in Table 1, treated with microorganisms (systems 1–5) and untreated (systems 6–10).

## ОБСУЖДЕНИЕ

По результатам десорбционных лабораторных экспериментов было установлено, что:

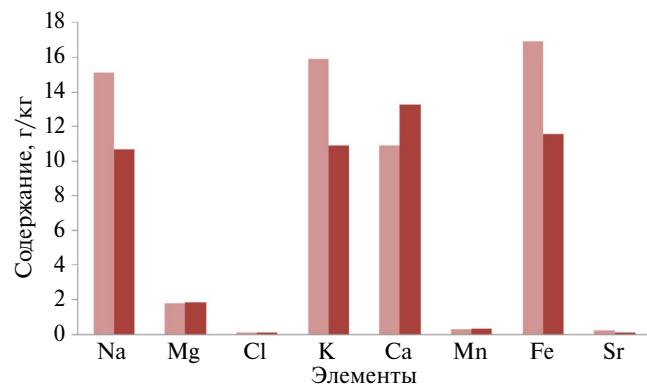
1. Подвижность нептуния была менее значительной, чем америция и плутония, причем выщелачивание природной водой выше, чем этой водой с добавкой субстрата. Максимальное выщелачивание наблюдалось для пород с низким содержанием алюмосиликатов и высоким содержанием серы.
2. Для образцов с высоким содержанием серы — значительное снижение выщелачивания америция и плутония.
3. Плутоний и америций хуже вымываются из образцов, содержащих смектит.
4. Возникновение активных микробных процессов на породах может быть связано с восстановлением железа и превращением высококристаллических железосодержащих фаз в менее кристаллические с более высокой сорбционной способностью по отношению к актинидам.

Ранее в работах был проведен детальный анализ биогенного изменения минерального состава супесей различного состава, отобранных из водоносных горизонтов, исследованных в данной работе [14–16]. Было установлено, что микробные процессы оказывают комплексное влияние на породы, которое заключается как в изменении состава глинистой фракции (частичное растворение глин с образованием аморфного кремнезема, образование смешанослойных глинистых минералов), так и в изменении состава примесных минералов (восстановление железа магнетита и гематита, с образованием сидерита, пирротина, гидротроилита, восстановление растворимого сульфата и сульфатных минералов до сульфидных фаз, образование карбонатных фаз за счет образования углекислоты при клеточном дыхании, отложение фосфатных фаз). Все эти биогенные минеральные фазы могут оказывать значительное влияние на иммобилизацию и прочность связывания акти-

нидов на породах. Кроме того, было отмечено, что важным начальным этапом преобразования пород является развитие микробных биопленок, которые защищают микроорганизмы от агрессивного воздействия раствора и способствуют первичному накоплению ряда элементов за счет органических функциональных групп (гидроксильных, карбоксильных, карбонильных и др.). Накопление актинидов в микробных биопленках является значимым фактором их иммобилизации в окружающей среде [17, 18]. Стоит отметить, что для урана и нептуния хорошо изучены процессы микробного восстановления до маломобильных плохорастворимых минеральных фаз [19].

Оценка изменения элементного состава образца после микробной обработки показала отложение кальция и выщелачивание важных для клетки элементов, среди которых: натрий, калий и железо (рис. 4). Отложение кальция может протекать в полисахаридном матриксе в комплексе с биогенными карбонатами [20].

Было дополнительно проведено исследование изменения минерального состава пород за счет фильтрации радиоактивных отходов в подземные воды в условиях биогенного воздействия. Время обработки составляло 1 год при комнатной температуре. ППП — потери при прокаливании образца (табл. 8).



**Рис. 4.** Изменение элементного состава породы 1 до (розовый) и после (красный) микробной обработки.  
**Fig. 4.** Changes in the elemental composition of sample 1 before (pink) and after microbial treatment (red).

**Таблица 8.** Химический состав пород, мас.%, до и после обработки

**Table 8.** Chemical composition of rocks before and after treatment

|       | ППП1000 | Na <sub>2</sub> O | MgO  | Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> | SiO <sub>2</sub> | K <sub>2</sub> O | CaO  | TiO <sub>2</sub> | MnO   | Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> | P <sub>2</sub> O <sub>5</sub> |
|-------|---------|-------------------|------|--------------------------------|------------------|------------------|------|------------------|-------|--------------------------------|-------------------------------|
| До    | 1.51    | 1.96              | 0.72 | 10.23                          | 81.09            | 2.09             | 1.55 | 0.52             | 0.044 | 2.25                           | 0.07                          |
| После | 1.96    | 1.54              | 1.00 | 8.44                           | 76.14            | 1.83             | 1.80 | 0.39             | 0.062 | 3.42                           | 0.11                          |

Установлено, что в обработанном образце песчаника произошло накопление магния, кальция, вероятно, в виде карбонатных форм. Обнаружено снижение содержания алюминия и кремния, вероятно, за счет частичного растворения алюмосиликатов. Можно отметить накопление техногенного железа.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Изучены основные биогеохимические механизмы иммобилизации актинидов на породах водоносных горизонтов вблизи хранилища жидких радиоактивных отходов. В пробах подземных вод, загрязненных нитрат-ионами и актинидами, обитало разнообразное микробное сообщество, включающее бактерии, восстанавливающие нитраты, сульфаты, железо. Их активация в результате попадания компонентов отходов, в первую очередь нитрат-ионов, может привести к изменению геохимических условий, способствующих иммобилизации актинидов в восстановленных формах: Np в виде  $\text{Np}(\text{OH})_4$  и  $\text{NpO}_2$ , для плутония  $\text{Pu}(\text{OH})_4$  и  $\text{PuO}_2$ , для урана — уранинит и смешанные оксиды. Образование железистых сульфидных осадков является важным фактором и основным биогеохимическим механизмом иммобилизации урана на породах. Дополнительное стимулирование микробных процессов может способствовать формированию восстановительного сорбционно-осадительного барьера вблизи хранилища *in situ*. Эти результаты подчеркивают важность учета состава горных пород при разработке стратегий изменения подвижности актинидов с использованием методов биоремедиации. Полученные в работе данные могут быть использованы в качестве научных основ для разработки биогеохимического барьера для актинидов в пластовых водах верхнего и нижнего горизонта ОАО “СХК”.

## БЛАГОДАРНОСТИ

Работа выполнена по теме № FMMZ-2024-0053 государственного задания Института геохимии и аналитической химии им. В.И. Вернадского Российской академии наук (ГЕОХИ РАН) и государственного задания Института физической химии и электрохимии им А.Н. Фрумкина РАН (ИФХЭ РАН)

## КОНФЛИКТ ИНТЕРЕСОВ

Авторы заявляют об отсутствии конфликта интересов.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Рыбальченко А.И., Пименов М.К., Костин П.П. и др. Глубинное захоронение жидких радиоактивных отходов. М.: ИздАТ; 1994. 256 с. [Rybal'chenko A.I., Pimenov M.K., Kostin P.P., et al. Deep disposal of liquid radioactive waste. Moscow: IzdatAT; 1994. 256 p. (In Russ.)].
2. Зубков А.А., Макарова О.В., Данилов В.В. и др. Техногенные геохимические процессы в песчаных пластах-коллекторах при захоронении жидких радиоактивных отходов. *Геоэкология*. 2002; 2:133–44. [Zubkov A.A., Makarova O.V., Danilov V.V., et al. Technogenic geochemical processes in sand strata-collectors during the disposal of liquid radioactive waste. *Geoekologiya*. 2002; 2:133–44. (In Russ.)].
3. Boguslavsky A.E., Gaskova O.L., Naymushina O.S., Popova N.M., Safonov A.V. Environmental monitoring of low-level radioactive waste disposal in electrochemical plant facilities in Zelenogorsk. *Russia. Appl. Geochem.* 2020; 119:104598.
4. Novikov A.P. Migration of Radionuclides in the Environment. *Geochem. Int.* 2010; (48):1285–98.
5. Novikov A.P., Vlasova I.E., Safonov A.V., Ermolayev V.M., Zakharova E.V., Kalmykov S.N. Speciation of actinides in groundwater samples collected near deep nuclear waste repositories. *J. Environ. Radioact.* 2018; 192:334–41.
6. Новиков А.П., Захарова Е.В., Горяченкова Т.А., Кузовкина Е.В., Емельянов А.М. Фракционирование коллоидного вещества пластовых вод при глубинном захоронении радиоактивных отходов. *Геохимия*. 2018; 56(7):718–24. [Novikov A.P., Zakharova E.V., Goryachenkova T.A., Kuzovkina E.V., Emelyanov A.M. Fractionation of colloidal substance in formation waters during deep disposal of radioactive waste. *Geokhimiya*. 2018; 56(7):718–24. (In Russ.)].
7. Novikov A.P., Goryachenkova T.A., Travkina A.V., Myasnikov I.Yu. Speciation of Actinides in the Environment. In: Advances in Geochemistry, Analytical Chemistry, and Planetary Sciences: 75th Anniversary of the Vernadsky Institute of the Russian Academy of Sciences. Springer; 2023:629–43. [https://doi.org/10.1007/978-3-031-0988-3\\_42](https://doi.org/10.1007/978-3-031-0988-3_42)
8. Lovley D.R., Phillips E.J., Gorby Y.A., Landa E.R. Microbial reduction of uranium. *Nature*. 1991; 350: 413–6.
9. Nazina T.N., Luk'yanova E.A., Zakharova E.V., Konstantinova L.I., Kalmykov S.N., Poltarau A.B., Zubkov A.A. Microorganisms in a Disposal Site for Liquid Radioactive Wastes and Their Influence on Radionuclides. *Geomicrobiol. J.* 2010; 27(5):473–86. <https://doi.org/10.1080/01490451003719044>
10. Safonov A.V., Babich T.L., Sokolova D. Microbial community and *in situ* bioremediation of groundwater

- by nitrate removal in the zone of a radioactive waste surface repository. *Front. Microbiol.* 2018; 9:1985. <https://doi.org/10.3389/fmicb.2018.01985>
11. Grouzdev D.S., Safonov A.V., Babich T.L., Tourova T.P., Krutkina M.S., Nazina T.N. Draft genome sequence of a dissimilatory U(VI)-reducing bacterium, *Shewanella xiamenensis* strain DCB2-1, isolated from nitrate- and radionuclide-contaminated groundwater in Russia. *Genome Announc.* 2018; 6.
  12. Tessier A., Campbell P.G., Bisson M. Sequential extraction procedure for the speciation of particulate trace metals. *Anal. Chem.* 1979; 51:844–51.
  13. Мясоедов Б.Ф., Новиков А.П., Павлозкая Ф.И. Проблемы анализа природных объектов при определении содержания и форм нахождения радионуклидов. *Ж. аналит. химии.* 1996; 51(1):124–30. [Myasoedov B.F., Novikov A.P., Pavlotskaya F.I. Problems of natural object analysis for determining the content and forms of radionuclides. *J. Anal. Chem.* 1996; 51(1):124–30. (In Russ.)].
  14. Сафонов А.В., Попова Н., Болдырев К., Лавринович Е., Боева Н., Артемьев Г., Кузовкина Е., Емельянов А., Мясников И., Захарова Е., Новиков А. *J. Geochem Explor.* 2022; 240:107052. [Safonov A.V., Popova N., Boldyrev K., Lavrinovich E., Boeva N., Artemiev G., Kuzovkina E., Emelyanov A., Myasnikov I., Zakharova E., Novikov A. *J. Geochem. Explor.* 2022; 240:107052.]
  15. Сафонов А.В., Андрющенко Н.Д., Иванов П.В., Болдырев К.А., Бабич Т.Л., Герман К.Е., Захарова Е.В. Биогенные факторы иммобилизации радионуклидов на песчаных породах верхних водоносных горизонтов. *Radiochemistry.* 2019; 61(1): 99–108.
  16. Artem'ev G.D., Popova N., Boldyrev K., Chistyakova N., Boeva N., Safonov A.V. Sorptionofuranium, neptunium, and plutonium onto pyrite, siderite, and hematite after their microbial transformation under the conditions of upperaquifers. *Radiochemistry.* 2024; 66(5):774–781.
  17. Artemiev G., Popova N., Boldyrev K., Volkov I., Chistyakova N., Boeva N., Safonov A. Microbial transformation of upper aquifers loamy rocks under complex pollution during in situ bioremediation. *Groundw. Sustain. Dev.* 2025; 101487.
  18. Neu M.P., Boukhalfa H., Merroun M.L. Biominerization and biotransformations of actinide materials. *MRS Bull.* 2010; 35(11):849–857.
  19. Lloyd J.R. Microbial reduction of metals and radioisotopes. *FEMS Microbiol. Rev.* 2003; 27(2–3):411–425.
  20. Williamson A.J., et al. Microbial reduction of U(VI) under alkaline conditions: implications for radioactive waste geodisposal. *Environ. Sci. Technol.* 2014; 48(22): 13549–13556.
  21. Парфенова В.В., Мальник В.В., Бойко С.М., Шевелева Н.Г., Логачева Н.Ф., Евстигнеева Т.Д., Сутурин А.Н., Тимошкин О.А. Сообщества гидробионтов, развивающиеся на поверхности раздела фаз: вода – горные породы в озере Байкал. *Экология.* 2008; (3):211–16. [Parfenova V.V., Malnik V.V., Boyko S.M., Sheveleva N.G., Logacheva N.F., Evstigneeva T.D., Suturina A.N., Timoshkin O.A. Hydrobiological communities developing at the water-rock interface in Lake Baikal. *Ecology.* 2008; (3):211–16. (In Russ.)].

## Immobilization of U, Np, Pu, and Am on Host Rocks of Sandy Aquifers after Microbial Biofouling

I. Yu. Myasnikov<sup>1,\*</sup>, G. D. Artemyev<sup>2</sup>, A. V. Safonov<sup>1</sup>,

Popova M. B.<sup>1</sup>, I. E. Kazinskaya<sup>1</sup>, A. P. Novikov<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Vernadsky Institute of Geochemistry and Analytical Chemistry,  
Russian Academy of Sciences, Moscow, Russian Federation

<sup>2</sup>Institute of Physical Chemistry and Electrochemistry, Russian Academy of Sciences,  
Moscow, Russian Federation

\*e-mail: myasnikov@geokhi.ru

Understanding the interactions between microorganisms and actinides is essential for predicting the long-term behavior of radioactive contaminants in subsurface environments. This study examines the microbial processes that contribute to the immobilization of uranium, neptunium, plutonium, and americium in sandstones from the upper and lower aquifers surrounding a mothballed liquid radioactive waste (LRW) reservoir and the LRW storage facility of the Siberian Chemical Plant (SCP). Groundwater from these sites, enriched in nitrate ions and actinides, harbored diverse microbial communities capable of nitrate, sulfate, and iron reduction. Their metabolic activity, likely stimulated by nitrate inputs from the wastes, can drive local redox conditions toward strongly reducing states. Such conditions promote the transformation of actinides into poorly soluble reduced forms –  $\text{Np}(\text{OH})_4$  and  $\text{NpO}_2$  for neptunium,  $\text{Pu}(\text{OH})_4$  and  $\text{PuO}_2$  for plutonium, and uraninite or mixed uranium oxides. In parallel, microbial sulfate reduction facilitates the precipitation of ferruginous sulfides, which serves as a key biogeochemical sink for uranium on mineral surfaces. Biofilm

formation on aquifer rock particles further enhances the retention of actinides. Together, these processes may establish a reducing sorption–precipitation barrier *in situ* near LRW storage sites. The results highlight the central role of microbially mediated redox transformations in controlling actinide mobility and provide a scientific foundation for the development of engineered biogeochemical barriers to mitigate actinide migration in subsurface environments at the SCP site.

**Keywords:** actinides, microorganisms, biofilms, host rocks of aquifers, sorption, bioreduction, biotransformation

## ИНФОРМАЦИЯ ОБ АВТОРАХ

Мясников Иван Юрьевич, ORCID:

<http://orcid.org/0000-0002-2091-821X> Институт геохимии и аналитической химии РАН им. В.И. Вернадского, Москва, Россия; подготовка публикации, обсуждение результатов, альфа-спектрометрические измерения.

Myasnikov Ivan Yuryevich, ORCID:

<http://orcid.org/0000-0002-2091-821X> Vernadsky Institute of Geochemistry and Analytical Chemistry, Russian Academy of Sciences, Moscow, Russian Federation; preparation of the publication, discussion of results, alpha spectrometry measurements.

Артемьев Григорий Денисович, ORCID:

<http://orcid.org/0000-0001-8018-6287> Институт физической химии и электрохимии РАН им. А.Н. Фрумкина, Москва, Россия; измерения на дифрактометре.

Artemiev Grigoriy Denisovich, ORCID:

<http://orcid.org/0000-0001-8018-6287> Institute of Physical Chemistry and Electrochemistry, Russian Academy of Sciences, Moscow, Russian Federation; operation of the X-ray diffractometer.

Сафонов Алексей Владимирович, ORCID:

<http://orcid.org/0000-0001-6920-4659> Институт физической химии и электрохимии РАН им. А.Н. Фрумкина, Москва, Россия; отбор проб, обсуждение результатов, планирование эксперимента, фильтрация.

Safonov Alexey Vladimirovich, ORCID:

<http://orcid.org/0000-0001-6920-4659> Institute of Physical Chemistry and Electrochemistry, Russian Academy of Sciences, Moscow, Russian Federation;

sampling, discussion of results, experiment planning, filtration.

Попова Марина Борисовна, ORCID:

<https://orcid.org/0009-0007-5888-7010> Институт геохимии и аналитической химии РАН им. В.И. Вернадского, Москва, Россия; пробо-подготовка, обсуждение результатов.

Popova Marina Borisovna, ORCID:

<https://orcid.org/0009-0007-5888-7010> Vernadsky Institute of Geochemistry and Analytical Chemistry, Russian Academy of Sciences, Moscow, Russian Federation; sample preparation, discussion of results.

Казинская Ирина Евгеньевна, ORCID:

<http://orcid.org/0009-0004-3489-3414> Институт геохимии и аналитической химии РАН им. В.И. Вернадского, Москва, Россия; пробо-подготовка, радиометрические измерения.

Kazinskaya Irina Evgenievna, , ORCID:

<http://orcid.org/0009-0004-3489-3414> Vernadsky Institute of Geochemistry and Analytical Chemistry, Russian Academy of Sciences, Moscow, Russian Federation; sample preparation, radiometric measurements.

Новиков Александр Павлович, ORCID:

<http://orcid.org/0000-0002-2955-6876> Институт геохимии и аналитической химии РАН им. В.И. Вернадского, Москва, Россия; постановка задач и обсуждение результатов.

Novikov Alexander Pavlovich, ORCID:

<http://orcid.org/0000-0002-2955-6876> Vernadsky Institute of Geochemistry and Analytical Chemistry, Russian Academy of Sciences, Moscow, Russian Federation; experiment planning, discussion of results.