

УДК 550.47.502.55 621.039.73; 665.7

СОРБЦИЯ УРАНА, НЕПТУНИЯ И ПЛУТОНИЯ НА ПИРИТЕ, СИДЕРИТЕ И ГЕМАТИТЕ ПОСЛЕ ИХ МИКРОБНОГО ПРЕОБРАЗОВАНИЯ В УСЛОВИЯХ ВЕРХНИХ ВОДОНОСНЫХ ГОРИЗОНТОВ

© 2024 Г. Д. Артемьев^a, Ю. В. Коневник^a, А. П. Новиков^b, А. В. Сафонов^{a,*}

^aИнститут физической химии и электрохимии им. А.Н. Фрумкина РАН,
Ленинский пр., д. 31, корп. 4, 119071, Москва, Российская Федерация

^bИнститут геохимии и аналитической химии им. В.И. Вернадского РАН,
ул. Косыгина, д. 19, 119991, Москва, Российская Федерация

*e-mail: alexeysafonof@gmail.com

Поступила в редакцию 13.09.2024 г., после доработки 23.10.2024 г., принята к публикации 30.10.2024 г

Исследовано влияние микроорганизмов, отобранных из наблюдательных скважин в районе законсервированного хранилища жидких радиоактивных отходов (РАО) водоема Б-2 Сибирского химического комбината, на иммобилизацию урана, плутония и нептуния на пирите, сидерите и гетите. Результаты лабораторных экспериментов и термодинамического моделирования показали, что микробное преобразование железосодержащих минералов приводит к увеличению иммобилизации актинидов за счет появления новых биогенных железистых и сульфидно-железистых минеральных фаз.

Ключевые слова: уран, плутоний, нептуний, пирит, сидерит, гетит, микробное преобразование минералов, термодинамическое моделирование

DOI: 10.31857/S0033831124060114

ВВЕДЕНИЕ

Бассейны-хранилища РАО использовались на предприятиях ЯТЦ России и других стран [1, 2] на начальных этапах развития атомной энергетики. На сегодняшний день подобные хранилища признаны небезопасными вследствие контакта отходов с окружающей средой при переливах и в результате инфильтрации растворимых компонентов через дно и стеки [3–5]. По этой причине в соответствии с современными требованиями к безопасности они подлежат консервации [6]. Наибольшую опасность в биосфере представляют радионуклиды с длительным периодом полураспада, обладающие высокой растворимостью в высших степенях окисления, к которым относятся актиниды: U, Pu, Np. Попадание актинидов в верхние водоносные горизонты является наиболее сложной проблемой на этапе эксплуатации и консервации хранилищ, поскольку приводит к их неконтролируемой миграции и создает риски их попадания в водозаборы и открытую гидросеть [5]. Важным фактором, влияющим на миграцию актинидов в подземных водах, является геохимический. Наличие растворенного органического вещества и гидрокарбонатов природной или техногенной природы способствует образованию высокорастворимых актинидных комплексов, а доступ кислорода и высокий нитратный фон способствуют

миграции актинидов в окисленной, более растворимой форме [7, 8]. Кроме того, наличие в подземных водах железистых и глинистых взвесей может способствовать миграции актинидов в виде псевдоколлоидных частиц [9–10]. Важным фактором, обеспечивающим иммобилизацию актинидов, является геологический, который обусловлен минеральным и элементным составом вмещающих пород. Особую роль в иммобилизации актинидов играют глинистые и железистые минералы в составе пород. Железо в водоносных горизонтах может находиться в составе глинистых минералов, слюд или в мономинеральных формах в зависимости от окислительной обстановки. Наиболее распространенными железистыми минеральными фазами являются сульфидные (пирит, пирротин), карбонатные (сидерит) или оксидные (гетит, гематит, магнетит). Иммобилизация актинидов происходит, как правило, в оксидных пленках на поверхности железистых минералов [11, 12].

Еще одним фактором, влияющим на подвижность актинидов, являются биогеохимические процессы, стимулированные попаданием макрокомпонентов отходов (преимущественно нитрат- и сульфат ионов) в подземные воды, которые на сегодняшний день остаются наименее изучены [13, 14]. Ранее было установлено, что снижение редокс-потенциала системы при развитии микрофлоры может привести

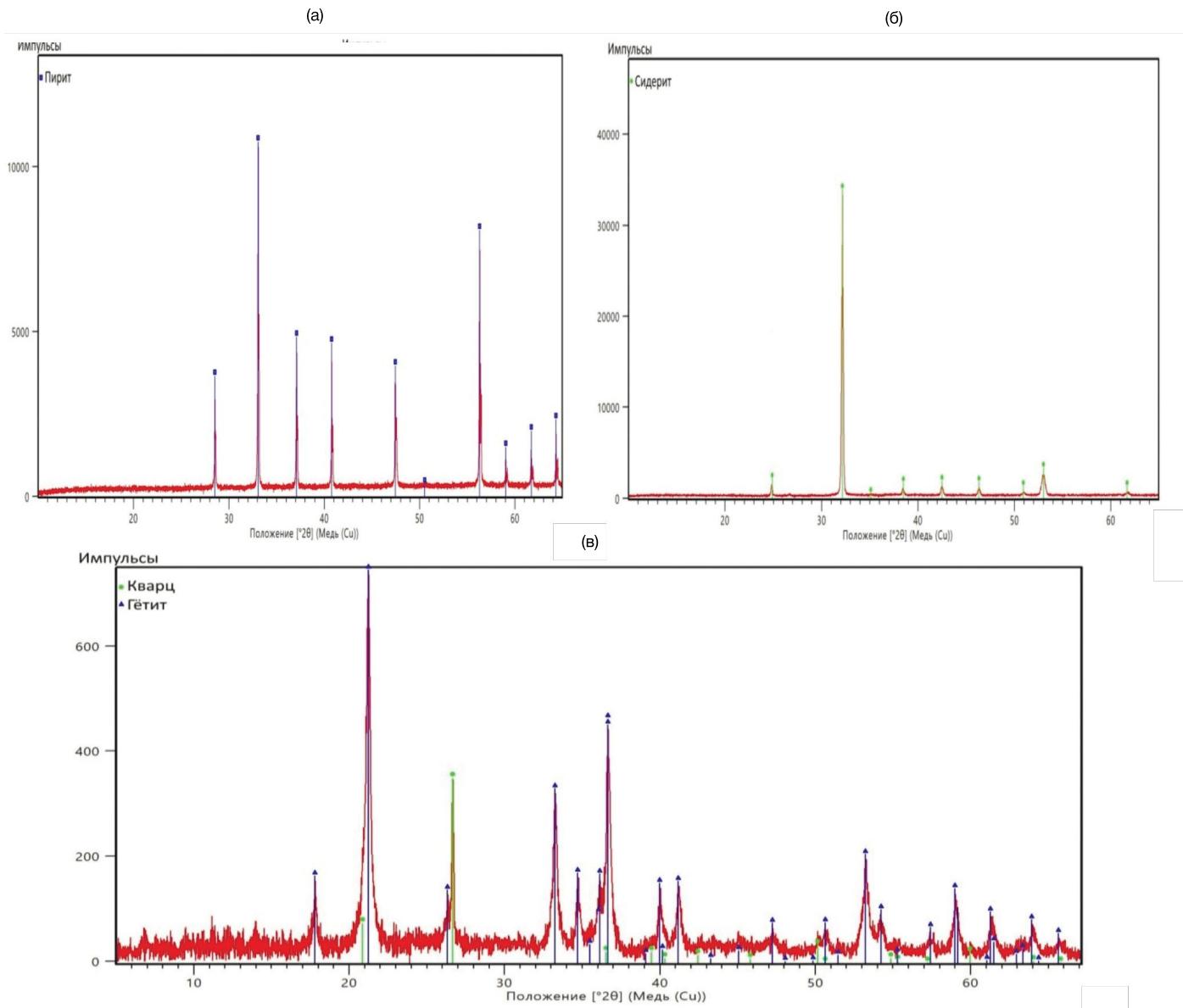


Рис. 1. Дифрактограммы: а – пирит (красная линия) и данные для пирита из базы данных PDF-2 (синяя линия); б – сидерит (красная линия) и данные для сидерита из базы данных PDF-2 (зеленая линия); в – гетит (красная линия) и данные для гетита (синяя линия) из базы данных PDF-2.

к созданию восстановительных условий, оптимальных для иммобилизации актинидов (урана, нептуния) в малорастворимых восстановленных фазах [15]. Кроме того, функционирование микроорганизмов цикла железа в условиях дефицита органических доноров электронов может приводить к изменению железистых минералов, восстановительному растворению железа или его окислению и дальнейшему переотложению окисленных железистых фаз (ферригидрит, аморфные оксигидроксиды железа), обладающих высокой сорбционной емкостью по актинидам [16, 17]. Немаловажным фактором является то, что железистые минералы, в том числе гетит, сидерит, пирит, могут иметь биогенное происхождение.

Скорости и степени их микробного преобразования обусловливаются особенностями кристаллических решеток минералов и степенью окисления в них железа. Анализ генов 16S рРНК микробного сообщества в пробах подземных вод, отобранных вблизи бассейна Б2 на Сибирском химическом комбинате (СХК), позволил выявить высокое разнообразие микроорганизмов цикла железа. Обнаружены бактерии рода *Gallionella* и *Thiobacillus*, известные способностью окислять железо. В пробах верхнего горизонта 30% от общего числа бактерий представлены бактериями родов *Pseudomonas* и *Acidovorax Shewanella*, восстанавливающими железо [18].

Целью данной работы была оценка влияния микробного преобразования железистых минералов на сорбцию урана, нептуния и плутония с использованием микробного сообщества, выделенного из подземных вод бассейна Б2 СХК.

МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ

Материалы

В работе использованы сульфидный железистый минерал пирит (Красноярский край), карбонатный железистый минерал сидерит (Курская обл.), а также гетитсодержащая порода (Кемеровская обл.). Методом порошковой рентгеновской дифракции установлен фазовый состав исследуемых образцов (рис. 1а–в) и подтвержден мономинеральный состав пирита и сидерита. В составе гетитсодержащей породы содержалось 73% гетита и 27% кварца.

Методическая часть

Эксперименты по микробному преобразованию пирита, сидерита и гематита проводили при температуре 20°C в герметично закрытых флаконах объемом 50 мл, в которые помещали навески минералов (10 г). Предварительно минералы дробили и просеивали через сита. В экспериментах использовали фракцию частиц с размером 300–100 мкм. Жидкой фазой служила подземная вода, отобранная из скважины Б2-45, имеющая состав, мг/л: Na^+ 760, Mg^{2+} 63.4, NH_4^+ 9.25, Ca^{2+} 375, NO_3^- 3280, HCO_3^- 140.3, SO_4^{2-} 460, Fe 27.2. Окислительно-восстановительный потенциал (Eh) составлял +120 мВ, pH 6.2. При культивировании для предотвращения развития органотрофных бактерий концентрация глюкозы как источника органического вещества составляла 25 мг/л. В аликоватах, отобранных в разные временные интервалы, определяли содержание железа в растворе. На поверхности минералов оценивали микробное биообрастание. После 45 сут биологического преобразования образцов минералов проводили сорбционные эксперименты.

Сорбционные эксперименты проводили в полипропиленовых виалах, в которые вносили по 20 мл модельной воды состава, мг/л: Ca^{2+} 94.0, Mg^{2+} 21.6, Na^+ 45.4, $\Sigma(\text{CO}_3^{2-} + \text{HCO}_3^-)$ 465.4, SO_4^{2-} 30.0, Cl^- 10.0; pH 7.3–7.5. Модельная вода содержала радионуклиды в концентрации, моль/л (Бк/л): ^{233}U (UO_2^{2+}) 4.8×10^{-7} (4.0×10^4), ^{237}Np (NpO_2^+) 1.5×10^{-5} (9.3×10^4), ^{238}Pu (Pu^{4+}) 6.0×10^{-10} (9.0×10^4). Сорбцию проводили при периодическом перемешивании (встряхивание 1 раз в сутки). Через 28 сут из раствора отбирали аликовоты жидкой фазы, в которой анализировали содержание радионуклидов жидкоксцинтиляционным методом с применением радиометра Tri-Carb-3180 TR/SL (PerkinElmer, США). Перед анализом аликовоты центрифугировали 5 мин при 5000 об/мин для осаждения взвешенных частиц.

По уменьшению активности в растворе рассчитывали степень сорбции радионуклида ($S, \%$) по формуле:

$$S = \frac{C_0 - C}{C_0} \times 100\%,$$

где C_0 и C – соответственно начальная и конечная удельная активности радионуклида в растворе, Бк/мл.

Соответствующий коэффициент распределения (K_d) рассчитывали по формуле:

$$K_d = \frac{N}{C} = \frac{C_0 - C}{C_0} \times \frac{V}{m},$$

где N – количество радионуклида в образце, Бк/г; V – объем жидкой фазы, мл; m – масса образца, г.

Содержание железа в растворе определяли с помощью масс-спектрометра с индуктивно связанный плазмой (ИСП-МС) X Series2 (Thermo Fisher Scientific, Массачусетс, США).

Ионный состав пробы воды и содержание анионов в пробе в экспериментах определяли на системе капиллярного электрофореза нового поколения Capel-205. Идентификацию и количественное определение анализируемых катионов и анионов проводили косвенным методом путем измерения УФ поглощения при 254 нм. Электрофорез проводили в необработанных капиллярах из плавленого кварца длиной 60 см (эффективная длина 50 см) и внутренним диаметром 75 мкм. Капилляр выдерживали при температуре 20°C, а приложенное напряжение составляло +13 кВ для катионов или –17 кВ для анионов.

pH определяли с помощью pH-метра-ионометра pH-150МИ (Россия), снабженного комбинированным электродом.

Окислительно-восстановительный потенциал (Eh) определяли с помощью многофункционального приборного комплекса “Эксперт-001” (Россия), снабженного комбинированным электродом.

Рентгенофазовый анализ (РФА) исходных образов проводили на порошковом рентгеновском дифрактометре Panalytical Aeris (Malvern, Великобритания, <https://www.malvernpanalytical.com/en>) с медным анодом (излучение $\text{Cu}K_{\alpha}$, 40 кВ, 15 мА) в Центре коллективного пользования Института физической химии и электрохимии РАН. Образцы высушивали и измельчали в корундовой ступке до порошкообразного состояния. Съемку проводили в диапазоне 2θ от 2° до 65° с шагом 0.002° и дивергентный щелью 1/4 рад. Полученные результаты интерпретировали с помощью программы HighScore Plus (<https://www.malvernpanalytical.com/en/products/category/software/x-ray-diffraction-software/highscore-with-plus-option>), базы данных PDF2 (<https://www.icdd.com/pdf-2/>).

Рост микроорганизмов на минералах определяли с использованием МТТ-теста [13], показывающего дыхательную активность прикрепленных клеток.

Таблица 1. Коэффициенты распределения радионуклидов на минералах до и после микробного выщелачивания (30-е сутки), см³/г (погрешность измерения не превышала 10%)

Минерал	Pu		Np		U	
	до	после	до	после	до	после
Сидерит	1450	1010	60	40	50	330
Пирит	1020	4080	100	260	20	250
Гетит	1140	2040	30	50	35	450

В моделировании применяли расчетный код геохимического моделирования PHREEQC 2.18 [19]. Программа PHREEQC основана на решении систем уравнений закона действия масс и материального баланса. При моделировании оценивали индексы насыщения для твердых минеральных фаз исследуемых радионуклидов. Индекс насыщения SI представляет собой разность между десятичными логарифмами текущих произведений ионной активности *i*-й фазы и константы растворимости соответствующего минерала. Отрицательные значения индекса насыщения (SI) указывают на то, что фаза растворима, при положительных значениях SI фаза образует нерастворимое соединение:

$$SI = \lg \text{ПАИ} - \lg K_p,$$

где ПАИ – произведение активности ионов в растворе, K_p – константа растворимости минеральной фазы. Для геохимического моделирования были использованы три базы термодинамических данных (БТД): LLNL, PSINA и NEA.

В каждом случае проводили три параллельных эксперимента, статистический анализ результатов осуществляли с использованием программ, реализованных в Microsoft Excel.

РЕЗУЛЬТАТЫ

Оценка изменения сорбции актинидов на минералах в результате микробных процессов

В табл. 1 приведены значения коэффициентов распределения, полученные на образцах до и после их микробиологической обработки. Обнаружено, что изменение коэффициентов распределения для Pu, Np и U происходит разнонаправленно на каждом образце. Для сидерита отмечено снижение коэффициентов распределения для Pu и Np в 1.5 раза, при этом для U отмечается шестикратное увеличение. Для образцов пирита после обработки наблюдается четырехкратное увеличение сорбции плутония, для нептуния наблюдалось увеличение сорбции в 2.5 раза, для урана – в 10 раз. Для гетитсодержащего образца отмечается двукратное увеличение сорбции плутония, для U значения коэффициента распределения

увеличивается более, чем в 12 раз, для нептуния сорбция возрастает незначительно.

Кинетика сорбции урана для микробных и исходных образцов заметно отличалась (рис. 2). Для исходных образцов сорбционное равновесие достигалось к 5-м суткам, для микробно-преобразованных – к 20-м суткам, что говорит о значительном вкладе восстановления урана во взаимодействие с материалами. Характер сорбции нептуния и плутония для исходных и микробно-преобразованных образцов принципиально не изменялся, и после 1 ч эксперимента степень сорбции достигала 98–99% (рис. 2б, в).

Оценка биообрастания минералов и кинетика выщелачивания железа

Для оценки интенсивности микробного преобразования проводили анализ микробной активности на поверхности образцов (рис. 3). Максимальная интенсивность микробного дыхания отмечалась к 30-м суткам для пирита, поскольку помимо железа в его составе содержится сера, необходимая для развития микроорганизмов. Мы полагаем, что в данном случае в биообрастании участвовали как железо, так и сероокисляющие микроорганизмы.

Минимальное микробное обрастание отмечено для сидерита. В этом минерале железо находится, как и в пирите, в восстановленном виде, при этом в случае сидерита оно менее подвержено микробному выщелачиванию. В случае сидерита можно предполагать развитие железоокисляющих бактерий на первом этапе (в окислительных условиях) и железо-восстановляющих – на втором этапе (в восстановительных условиях.) Микробная активность на поверхности гетитсодержащего образца была чуть ниже, чем на пирите. Микробное обрастание гетита можно объяснить наличием в нем разных форм железа из-за его сравнительно низкой устойчивости к окислению.

Важно отметить, что на 5-е и 10-е сутки эксперимента интенсивность микробного дыхания на гетите была выше, чем на пирите. Кроме того, на 35–45-е сутки интенсивность микробного дыхания на гетитсодержащей породе также превышала таковую на пирите. Высокую интенсивность биообрастания

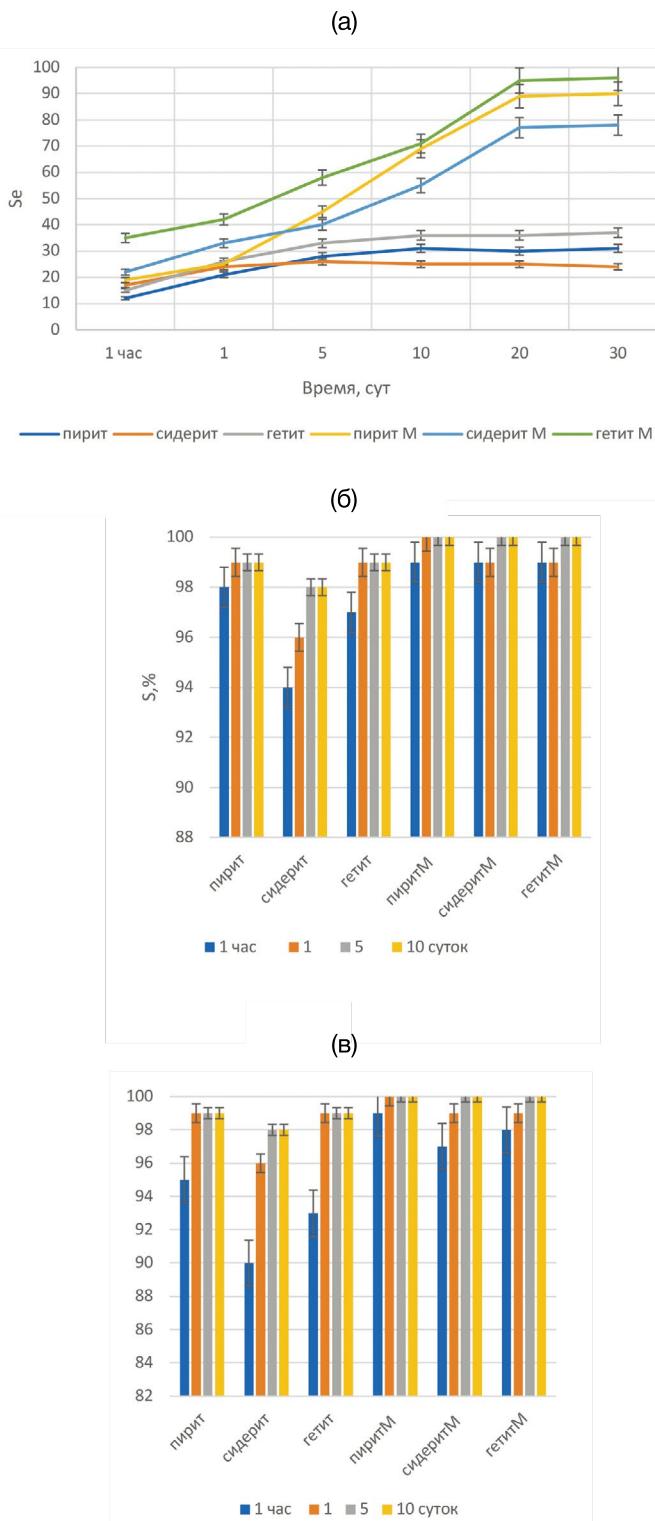


Рис. 2. Кинетика сорбции урана (а), плутония (б) и нептуния (в) на исходных и микробно-преобразованных образцах (М).

гетитсодержащей породы можно объяснить развитием железоокисляющих микроорганизмов на начальном этапе и железовосстановливающих на последующих этапах.

Анализ процесса выщелачивания железа из минералов (рис. 4) показывает, что наиболее активно выщелачивание железа происходит из образца гетита к 20-м суткам, когда значения Eh установились на уровне -150 мВ за счет активности анаэробных железовосстановливающих бактерий. При этом на 25-е сутки и далее содержание железа в растворе стало резко снижаться, несмотря на восстановительные условия. Это, по нашему мнению, свидетельствует об образовании вторичных аутигенных железистых минеральных фаз. Для системы с сидеритом, где микробная активность была значительно ниже, снижение редокс-потенциала системы протекало не так значительно.

В окислительных условиях наблюдали небольшое снижение концентрации железа в растворе. На 15–20е сутки, когда значение ОВП находилось в диапазоне $+(5–10)$ мВ, наблюдали увеличение содержания железа за счет активации анаэробной железовоосстанавливющей микрофлоры. Общий выход железа в раствор был не столь активный, как случае с гетитом. В системе, содержащей пирит, сдвиг редокс-потенциала в восстановительную область произошел к 15-м суткам, что сопровождалось увеличением содержания железа в растворе до 6 мг/л к 25-м суткам, после чего, как и в случае двух других систем, наблюдалось снижение содержания железа за счет его переотложения.

Оценка биогенного изменения минеральных образцов

Изменение сорбции актинидов на минеральных образцах после микробного преобразования можно объяснить процессом выщелачивания и последующего биогенного переотложения железа в виде новых минеральных фаз. Минеральный состав данных фаз трудно анализировать инструментальными методами по причине их мелкой дисперсности на поверхности минерала и рентгеноаморфности. Поэтому для понимания их состава был использован расчетный подход с помощью программного кода PHREEQC (табл. 2). В основе расчета лежали данные изменения Eh , полученные в эксперименте по выщелачиванию минералов (рис. 4).

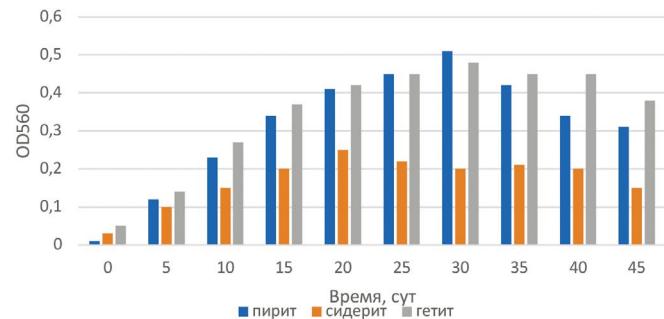


Рис. 3. Микробная дыхательная активность на образцах минералов, отн. ед.

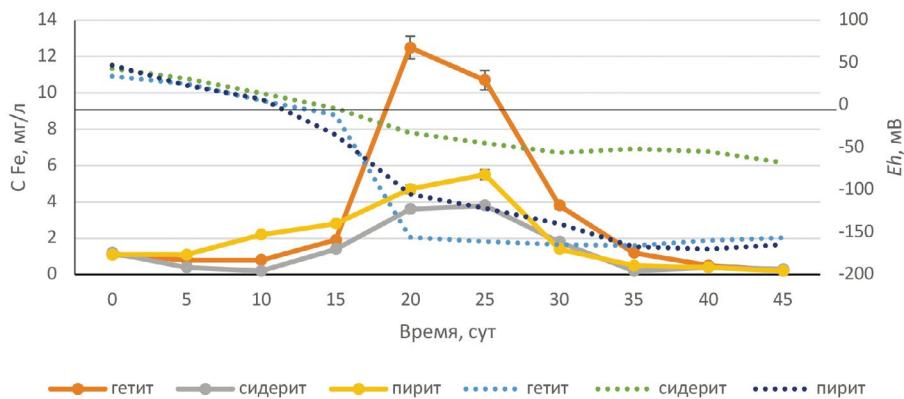


Рис. 4. Концентрация железа, мг/л, и значения Eh , мВ, (пунктирная линия) при преобразовании минеральных образцов микробным сообществом.

Таблица 2. Значения индекса насыщения (фаза образуется при $SI \geq 0$) биогенных форм железа в экспериментах

Eh , мВ	$Fe(OH)_2$	$Fe(OH)_3$	Гематит	Пирротин	Троилит	Гидротроилит
+50	0.2	15.9	0.2	-6.7	-1.3	-2.3
0	2.1	1.0	-1.1	-6.0	-0.8	0.1
-50	-0.2	-0.2	-2.2	-0.3	3.6	1.6
-150	-0.7	-1.2	-4.7	0.8	4.8	2.4

На первом этапе при в окислительных значениях редокс-потенциала в твердой фазе могут присутствовать преимущественно гидроксиды железа(III), после биогенно-опосредованного снижения редокс-потенциала до 0 мВ на поверхности минералов могут образовываться гидроксиды железа(II), при дальнейшем снижении редокс-потенциала можно ожидать образование как железисто-оксидных, так и железисто-сульфидных минеральных фаз (троилита, гидротроилита, а также с некоторой вероятностью пирротина). Полученные расчетные данные согласуются с результатами опытов в лабораторных и полевых условиях [19, 20].

Таким образом, значительное увеличение коэффициентов распределения урана (табл. 1) на всех образцах после микробного воздействия можно объяснить его сорбцией на биогенных новообразованных восстановленных железистых фазах и возможным восстановлением за счет восстановленного железа и сульфидной серы. Для плутония и нептуния увеличение коэффициентов распределения на пирите (табл. 1) можно объяснить наличием серосодержащих биогенных фаз, образовавшихся за счет деятельности железовосстановливающих и сульфатвосстановливающих микроорганизмов. Увеличение коэффициентов распределения для нептуния в

2.5 раза на пирите после микробного преобразования можно объяснить процессом восстановления нептуния сульфидными биогенными фазами [14, 20, 21]. Для остальных минералов, не содержащих серу, характерно не столь интенсивное биообразование, приводящее к накоплению преимущественно железисто-гидроксидных минеральных фаз. При этом перекрывание естественных сайтов связывания микробными биопленками может являться причиной снижения коэффициентов распределения плутония, как это происходит на примере сидерита.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В подземных водах вблизи бассейна хранилища радиоактивных отходов Б2 на территории СХК деятельность микроорганизмов циклов серы и железа может оказывать влияние на мобильность актинидов за счет преобразования железистых и сульфидно-железистых минеральных фаз. В результате лабораторных модельных экспериментов установлено, что на образцах гетита, сидерита и пирита, подвергшихся микробному воздействию, значительно увеличивается иммобилизация урана. Для нептуния и плутония наиболее значимую роль микробные процессы играют при преобразовании пирита. В случае

сидерита и гематита микробные процессы могут снижать сорбцию нептуния и плутония за счет перекрывания сорбционных центров микробными биопленками. Микробное преобразование железистых минералов зависит от их элементного состава. Так, для минералов, имеющих в составе серу и железо в различных степенях окисления, развитие микробных процессов происходит более интенсивно, что приводит к выщелачиванию железа из состава минерала и его дальнейшему переотложению преимущественно в сульфидных фазах. Полученные данные показывают важность учета вклада биогеохимических процессов при создании моделей миграции радионуклидов в геосфере.

ФИНАНСИРОВАНИЕ РАБОТЫ

Работа поддержана грантом РНФ 23-24-00381.

КОНФЛИКТ ИНТЕРЕСОВ

Авторы заявляют об отсутствии конфликта интересов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Абрамов А.А., Дорофеев А.Н., Тяжкороб Ж.В., Савкин М.Н., Веденникова М.В., Линге И.И., Уткин С.С., Дорогов В.И., Самойлов А.А., Бирюков Д.В., Крышев И.И., Бочкарев В.В., Непейпиво М.А., Абакумова А.С., Барчуков В.Г., Кочетков О.А., Касаткин В.В., Поцяпун Н.П., Репин В.С., Курындина Л.А. Особые радиоактивные отходы / Под общей ред. И.И. Линге. М.: САМ полиграфист, 2015. 240 с.
2. Цебаковская Н.С., Уткин С.С., Иванова А.Ю., Сахаров В.К., Полунин К.Е. Лучшие зарубежные практики вывода из эксплуатации ядерных установок и реабилитации загрязненных территорий / Под общей ред. И.И. Линге, А.А. Абрамова. М.: ИБРАЭ РАН, 2017. Т. 1. 336 с.
3. Глинский М.Л., Ветров В.А., Абрамов А.А., Чертков Л.Г. Объектный мониторинг состояния недр на предприятиях атомной отрасли / Под ред. д.г.-м.н. В.А. Ветрова. М.: Б.С.Г. Пресс, 2015. 264 с
4. Богуславский А.Е., Гаськова О.Л., Шемелина О.В. // Радиохимия. 2016. Т. 58. № 3. С. 279–283.
5. Boguslavsky A.E., Gaskova O.L., Naymushina O.S., Popova N.M., Safonov A.V. // Appl. Geochem. 2020. Vol. 119. ID 104598.
6. Захарова Е.В., Андрющенко Н.Д., Родыгина Н.И., Ермолов В.М. Инженерные барьеры безопасности при выводе из эксплуатации объектов ядерного топливного цикла // Тез. докл. конф. ArgillaStudium-2017. М., 27.11–01.12.2017. С. 50–54.
7. Nolan J., Weber K.A. // Environ. Sci. Technol. Lett. 2015. Vol. 2. P. 215–220.
8. Novikov A.P., Vlasova I.E., Safonov A.V., Ermolaev V.M., Zakharova E.V., Kalmykov S.N. // J. Environ. Radioact. 2018. Vol. 192. P. 334–341.
9. Novikov A.P., Kalmykov S.N., Utsunomiya S., Ewing R.C., Horreard F., Merkulov A.A., et al. // Science. New Ser. 2006. Vol. 314. N. 5799. P. 638–641.
10. Maher K., Bargar J.R., Brown G.E., Jr. // Inorg. Chem. 2013. Vol. 52. N 7. P. 3510–3532.
11. Pearce C.I., Rosso K.M., Patrick R.A., Felmy A.R. Redox-Reactive Minerals: Properties, Reactions and Applications in Clean Technologies 2017 / Eds. I.A.M. Ahmed, K.A. Hudson-Edwards. Eur. Mineralogical Union, 2017
12. Сафонов А.В., Андрющенко Н.Д., Иванов П.В., Болдырев К.А., Бабич Т.Л., Герман К.Э., Захарова Е.В. // Радиохимия. 2019. Т. 61. № 1. С. 63–71.
13. Lloyd J.R., Renshaw J.C. // Metal Ions in Biological Systems: Book Ser. 2005. Vol. 44. P. 205–240.
14. Новиков А.П., Сафонов А.В., Бабич Т.Л., Болдырев К.А., Крючков Д.В., Лавринович Е.А., Кузовкина Е.В., Емельянов А.М., Горяченкова Т.А. // Геохимия. 2020. Т. 65. № 2. С. 145–152.
15. Borch T., Kretzschmar R., Kappler A., Cappellen P. V., Ginder-Vogel M., Voegelin A., Campbell K. // Environ. Sci. Technol. 2010. Vol. 44. N 1. P. 15–23.
16. Anderson C., Johnsson A., Moll H., Pedersen K. // Geomicrobiol. J. 2011. Vol. 28. № 5–6. P. 540–561.
17. Safonov A.V., Babich T.L., Sokolova D.S., Grouzdev D.S., Tourova T.P., Poltarau A.B., et al. // Front. Microbiol. 2018. Vol. 9, N AUG. P. 1985.
18. Parkhurst D.L., Appelo C.A.J. // User's Guide to PHREEQC (Version 2)—A Computer Program for Speciation, Batch-Reaction, One-Dimensional Transport, and Inverse Geochemical Calculations. Denver, Colorado, 1999.
19. Li D., Kaplan D.I. // J. Hazard. Mater. 2012. Vol. 243. P. 1–18.
20. Safonov A.V., Popova N.M., Boldyrev K.A., Lavrinovich E.A., Boeva N.M., Artemiev G.D., et al. // J. Geochem. Explor. 2022. Vol. 240. ID 107052.
21. O'Loughlin E.J., Boyanov M.I., Antonopoulos D.A., Kemner K.M. // Aquatic Redox Chemistry. Am. Chem. Soc., 2011. P. 477–517.

Sorption of Uranium, Neptunium, and Plutonium onto Pyrite, Siderite, and Hematite after Their Microbial Transformation under the Conditions of Upper Aquifers

G. D. Artem'ev^a, Yu. V. Konevnik^a, A. P. Novikov^b, and A. V. Safonov^{a,*}

^a*Frumkin Institute of Physical Chemistry and Electrochemistry, RAS,*

Leninskii pr. 31, korp. 4, 119071 Moscow, Russia

^b*Vernadsky Institute of Geochemistry and Analytical Chemistry,
RAS, ul. Kosygina 19, 119991 Moscow, Russia*

**e-mail: alexeysafonof@gmail.com*

Received September 13, 2024; revised October 23, 2024; accepted October 30, 2024

The effect that microorganisms taken from observation wells in the region of the decommissioned liquid radioactive waste (RW) repository, B-2 reservoir, of the Siberian Chemical Combine exert on the immobilization of uranium, plutonium, and neptunium on pyrite, siderite, and goethite was studied. The results of laboratory experiments and thermodynamic modeling show that the microbial transformation of iron-containing minerals leads to an increase in the immobilization of actinides due to the appearance of new biogenic ferriferous and sulfide-ferriferous mineral phases.

Keywords: uranium, neptunium, plutonium, pyrite, siderite, goethite, microbial transformation of minerals, thermodynamic modeling