- Ivanova K., Stojanovska Z., Badulin V., Kunovska B., Yovcheva M. Radiological impact of surface water and sediment near uranium mining sites // Journal of Radiological Protection, 2015. – V. 35. – P. 819– 834.
- Manjón G., Mantero J., Vioque I., Galván J., Díaz-Francés I., García-Tenorio R. Some naturally occurring radionuclides (NORM) in a river affected by acid mining drainages // Chemosphere, 2019. – V. 223. – P. 536–543.
- Mishra S., Maity S., Pandit G. G. Estimation of distribution coefficient of natural radionuclides in soil around uranium mines and its effect with ionic strength of water // Radiation Protection Dosimetry, 2012. V. 152. № 1–3. P. 229–233.
- Novikov D. A. Hydrogeological conditions and hydrogeochemistry of radon waters in the Zaeltsovsky-Mochishche zone of Novosibirsk, Russia / F. F. Dultsev, R. M. Kamenova-Totzeva, T. V. Korneeva // Environmental Earth Sciences, 2021. – V. 80. – № 216.

- Novikov D. A. Microelements in Radon Waters of the Zaelsovsky field (The Southern Part of West Siberia) / T. V. Korneeva // Journal of Physics: Conference Series, 2019. – V. 1172. – № 1. – № 012096.
- Novikov D. A. Microelements in radon waters of the Zaelsovsky field (the southern part of West Siberia) / T. V. Korneeva // Journal of Physics: Conference Series, 2019. – V. 1172. – № 012096.
- Novikov D. A. Role of water-rock interactions in the formation of the composition of radon waters of the Zaeltsovsky field (the southern part of West Siberia) / F. F. Dultsev, A. V. Chernykh // Journal of Physics: Conference Series, 2020. – V. 1451. – № 012007.
- Yamamoto M., Sakaguchi A., Kofuji H. Uranium in acidic mine drainage at the former Ogoya Mine in Ishikawa Prefecture of Japan // J. Radioanal Nucl Chem., 2010. V. 283. – P. 699–705.

# РАДИОГЕОХИМИЧЕСКИЕ ОСОБЕННОСТИ АЭРОЗОЛЬНЫХ ВЫПАДЕНИЙ В РАЙОНАХ РАЗМЕЩЕНИЯ ПРЕДПРИЯТИЙ ТЕПЛОЭНЕРГЕТИКИ (ЮГ ЗАПАДНОЙ СИБИРИ)

А. В. Таловская<sup>1</sup>, Е. Г. Язиков<sup>1</sup>, В. В. Литау<sup>1</sup>, Т. Е. Адильбаева<sup>1</sup>, Е. С. Торосян<sup>2</sup>, Н. А. Осипова<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Томский политехнический университет Томск, Россия, talovskaya@tpu.ru <sup>2</sup>Юргинский технологический институт Томского политехнического университета Юрга, Россия

## RADIOCHEMICAL SPECIFIC OF AEROSOLS IN THE AREAS IMPACTED WITH THERMAL POWER PLANTS (THE SOUTH OF WESTERN SIBERIA)

A. V. Talovskaya<sup>1</sup>, E. G. Yazikov<sup>1</sup>, V. V. Litay<sup>1</sup>, T. E. Adilbaeva<sup>1</sup>, E. C. Torosyan<sup>2</sup>, N. A. Osipova<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Tomsk Polytechnic University Tomsk, Russia, talovskaya@tpu.ru <sup>2</sup>Yurga Technological Institute Tomsk Polytechnic University, Russia

The paper presents the results of study the radiogeochemical features of particulate matter deposited in snow cover around of thermal power plants. Instrumental neutron-activation analysis was used to study U and Th contents in the samples of particulate phase of snow. It was revealed that U and Th contents were exceeded the background values from 2 to 43 times in the samples. These results demonstrated the anthropogenic origin of the elements. It was identified that U occurred in mode of phosphates and oxides in the samples. Uranium isotopes were mainly correlated with Fe and Mg oxides and insoluble fractions.

### Введение

Загрязнение атмосферного воздуха в значительной мере связано с развитием энергетики. Теплоэлектростанции (ТЭС) в городских и сельских поселениях являются одними из главных техногенных источников загрязнения. На территориях, прилегающих к ТЭС, уровни концентрации газовых и твердых выбросов часто превышают нормативные показатели. Среди выбросов ТЭС, преобладают выбросы от энергетических установок, использующих уголь. Экологические проблемы угольной энергетики связаны с присутствием в углях токсичных химических элементов, а также радиоактивных – урана и тория. Эти элементы выбрасываются в атмосферный воздух в составе мелких и ультрамелких частиц, переносятся на большие расстояния и вовлекаются в геохимические циклы веществ [8, 12, 16].

В Западной Сибири сосредоточены ТЭС, использующие преимущественно уголь в своей топливной структуре. Один из крупнейших в стране и в мире угледобывающих районов – Кузнецкий угольный бассейн – расположен в Кемеровской области. Эти угли в основном используются на ТЭС юга Западной Сибири. Угли при этом характеризуются редкометалльной и радиоактивной геохимической специализацией [1–2, 4, 7]. Поэтому при сжигании углей может происходить антропогенная эмиссия элементов-примесей в окружающую среду. В результате формируются техногенные геохимические поля выпадений радиоактивных элементов в окрестностях ТЭС, которые необходимо детально изучать.

В данной работе представлены исследования уровня антропогенного загрязнения радиоактивными элементами (уран и торий) в зоне воздействия разных ТЭС юга Западной Сибири по результатам изучения состава снегового покрова как планшета-накопителя аэрозольных выпадений.

#### Материалы и методы

Объектами исследования были выбраны ТЭС, расположенные в городах юга Западной Сибири – в Омске, Томске, Северске, Кемерово и Юрге, а также в Центральном Казахстане – Караганде. На ТЭЦ Омска и Караганды используют угли Экибастузского бассейна, а на других изучаемых объектах – угли Кузнецкого бассейна. Отбор проб осуществляли на расстоянии от 0,5 до 4,5 км от источников загрязнения в направлении главенствующего ветра (юг-юго-западное). Кроме того, исследования проводили в зоне воздействия котельных, использующие уголь, природный газа и древесину, расположенные в сельских населенных пунктах Томской области. Для сравнения проведен отбор проб в зонах воздействия угледобывающих предприятий и других промышленных производств в городах.

Для отбора и подготовки проб снегового покрова использовали стандартную методику [5–6] с учетом нашего [13–15] многолетнего практического опыта эколого-геохимических исследований на территории юга Западной Сибири. Пробы отбирали из шурфа на всю мощность снегового покрова, за исключением 5-сантиметрового слоя над почвой. Вес каждой пробы достигал 16–17 кг. После отбора пробы замеряли площадь шурфа и фиксировали дату отбора. Таяние проб снега осуществляли при комнатной температуре. Талую снеговую воду фильтровали через бумажный фильтр типа «синяя лента». Полученный после фильтрования твердый осадок из снеговой пробы высушивали, просеивали с выделением фракции менее 1 мм, а затем взвешивали. Все пробы твёрдого осадка снега и пробы золы уноса с некоторых изучаемых ТЭС были проанализированы инструментальным нейтронно-активационным анализом на содержание (концентрация, мг/кг) 28 химических элементов, включая уран и торий, в аккредитованной ядерно-геохимической лаборатории, функционирующей на базе исследовательского ядерного реактора при Томском политехническом университете (аналитики: А. Ф. Судыко, Л. В. Богутская). Анализ отдельных микрочастиц в пробах выполнялся на сканирующем электронном микроскопе (Hitachi S-3400N с ЭДС BrukerXFlash 4010) в лаборатории МИНОЦ «Урановая геология» ТПУ (консультант: к.г.-м.н., ассистент Ильенок С. С.).

На основе полученной информацией рассчитывали коэффициент концентрации согласно методическим работам [5–6] относительно фона, данные по которому опубликованы в работах [10, 13–15], а также наших данных для района расположения Обсерватория «Фоновая» ИОА СО РАН. Статистический анализ данных содержания элементов в пробах выполнялся в программе «Statistica».

#### Результаты и их обсуждение

В пробах твердого осадка снега из зон воздействия изучаемых ТЭС средние значения концентрации урана изменяются от 1,9 до 8,7 мг/кг, что соответствует коэффициентам концентрации относительно фона из работ [12-13] - от 9 до 43, а тория - от 4,6 до 15,6 мг/кг, превышающие фон от 1,5 до 5 раз (табл. 1). В сравнении с фоном обсерватория «Фоновая» содержание урана изменяется от 1,6 до 4,5 фонов, а тория – от 1,5 до 3 фонов. Для всех изучаемых проб характерна техногенная радиогеохимическая специализация Статистически значимые высокие значения концентраций радиоактивных элементов определены для проб из района расположения ТЭЦ в Юрге и в Северске относительно данных для других изучаемых объектов. В районе ТЭЦ Юрги эта особенность может быть связана с использованием углей, которые обогащены радиоактивными элементами [1, 7]. В окрестностях ТЭС г. Северск повышенные уровни накопления радиоактивных элементов в пробах возможно еще за счет наложение техногенного геохимического воздействия расположенного вблизи предприятия ядерно-топливного цикла. Пробы из зоны воздействия ГРЭС в Томске отличаются пониженными значениями радиоактивных элементов, что может быть связано с использованием в топливном балансе кроме угля еще и природного газа. Также нами обнаружены высокие уровни накопления относительно фона урана и тория в пробах из зоны воздействия сельских котельных, работающие на углях.

Выявлены наиболее высокие концентрации урана и тория в пробах из окрестностей ТЭС, использующие угли Кузнецкого бассейна, в сравнении с результатами исследования проб их районов расположения ТЭЦ, где сжигаются угли Экибастузского бассейна. Эта тенденция также хорошо прослеживается по значениям отношения тория к урану в пробах.

Важным индикаторным показателем для типизации территорий является отношения тория к урану (Th/U) [9–10, 14–15]. По значениям Th/U отношения в пробах твердого осадка снега, ТЭС и другие промышленные объекты можно объединить в четыре области (рис. 1).

Для первой области (I) отношение Th/U близко к 1 единице и ниже, что свидетельствует о урановой природе. В этой области сосредоточены промышленные районы, в производстве которых отмечаются повышенные концентрации урана. Среди них выделяется промышленная зона с редкометалльным производством в г. Усть-Каменогорск (Восточный Казахстан), представленная Ульбинским комбинатом. Эту область также составляет зола уноса с ГРЭС (г. Кемерово). Для второй области (II) величина Th/U изменяется от 1 до 2 единиц. В эту область включены пробы из зоны воздействия ТЭЦ (г. Юрга), сельских угольных котельных (Томская область), угольной шахты (г. Черногорск). В эту группу также входит НПЗ (г. Ачинск [11]), что обусловлено пониженным содержанием радиоактивных элементов в пробах. В этой области также находятся угли Кузнецкого бассейна [1].

Для третьей области (III) величина Th/U изменяется от 2 до 5 единиц, указывая на смешенную природу поступления радиоактивных элементов. В этой группе сосредоточены в основном изучаемые объекты ТЭС (гг. Омск, Томск, Северск, Кемерово, Караганда), а также в г. Новосибирск [3], котельные, использующие древесину и природный газ (Томская область), угледобывающие предприятия (гг. Междуреченск, Киселевск), ядерно-топливный цикл (г. Северск) и кирпичные заводы (г. Томск). В этой области

**Таблица 1.** Содержание радиоактивных элементов и торий-урановое отношение в пробах твердого осадка снега в районах размещения предприятий теплоэнергетики на юге Западной Сибири

Предприятия теплоэнергетики	Диапазон содержаний*, мг/кг		Th/U	Средние значения коэффи- циентов концентрации отно- сительно фона [10, 13—15]]	
	U	Th		U	Th
ТЭЦ-5 г. Омск	$\frac{3,2}{2,8-4,2}$ 12	<u>8,5</u> 7,6 – 10,6 12	2,6	16,0	2,9
ГРЭС-2 г. Мыски	$\frac{5,1}{2,1-8,2}$ 20	<u>11,9</u> 5,1-18,4 20	2,3	25,5	4,1
ТЭЦ г. Северск	<u>6,9</u> <u>3,6 - 10,1</u> 14	<u>15,6</u> 7,2–19,6 14	2,3	34,5	5,4
ГРЭС-2 г. Томск	<u>3,9</u> 1,4 - 7,9 69	7,8 2,4 – 13,2 69	2,0	19,5	2,7
ГРЭС г. Кемерово	4,8 3,3-6,9 9	<u>14,3</u> 8,8 - 18,1 9	2,9	24,0	4,9
ТЭЦ г. Юрга	$\frac{8,7}{7,5-8,1}$ 7	15,6 12,5 - 17,5 7	1,8	43,5	5,4
ТЭЦ г. Караганда	$\frac{1,9}{0,7-2,9}$ 18	4,6 2,9-5,6 18	2,4	9,5	1,6
Котельные на угле**	$\frac{6,1}{2,3-7,1}$ 26	<u>8,6</u> 4,3 – 14,9 26	1,4	30,5	2,9
Котельные на древесине**	$\frac{1,1}{0,6-1,1}$ 5	2,9 1,5 – 4,8 5	2,6	5,5	1,0
Котельные на при- родном газе**	$\frac{2,3}{0,4-3,2}$ 11	$\frac{4,6}{1,4-6,6}$ 11	2,0	11,5	1,6
Региональный фон [10, 13–15]	0,2	2,9	14,5	-	-
Фон – Обсерватория «Фо- новая» ИОА СО РАН	1,9	5,5	2,9	_	_

\* – в числителе – среднее, знаменателе – минимально-максимальное значение и количество проб; \*\* – сельские населенные пункты Томской обл. также сосредоточены зола уноса и угли с изучаемых ТЭС, что указывает на источники поступления радиоактивных элементов в районах размещения ТЭС.

Для четвертой области (IV) отношение Th/U составляет более 5 единиц, что свидетельствует о ториевой природе. Для этой группы характерны низкие концентрации урана. Такие значения торий-уранового отношения характеризуют фоновый район для Западно-Сибирского региона [10, 13–15].

По результатам изучения проб на сканирующем электронном микроскопе выявлены твердофазные формы нахождения урана, представленные U-содержащими частицами (рис. 2). В пробах из района расположения угольных объектов теплоэнергетики (ТЭС и угольные котельные), использующие кузнецкие угли, U-содержащие частицы представлены в виде оксидов урана (рис. 2). Микрофазы фосфатов урана характерны для проб, отобранных в окрестностях ТЭС, где применяется экибастузский уголь. Торий выявлен в виде примеси в составе частиц, содержащие фосфаты редкоземельных элементов.

На примере ГРЭС (г. Томск), где используются угли Кузнецкого бассейна и природный газ, нами были изучены формы нахождения урана и трансурановых элементов в пробах твердого осадка снега. С помощью метода f-радиографии в пробах выявлена молекулярно-рассеянная форма радионуклидов, представленная на детекторе в виде распределения единичных треков от осколков деления радионуклидов [13]. Выявлены высокие значения (5788 трек/мм<sup>2</sup>) плотности единичных треков от осколков деления радионуклидов на детекторе в сравнении с фоновыми значениями (1146–1588 трек/мм<sup>2</sup>) и для проб из районов г. Томск (1792–2835 трек/мм<sup>2</sup>), не



**Рис. 1.** Радиогеохимическая типизация твердого осадка снегового покрова в районах размещения предприятий теплоэнергетики на юге Западной Сибири

(1–9 – ТЭС: 1 – ТЭЦ-5 г. Омск; 2 – ГРЭС г. Мыски; 3 – ТЭЦ г. Северск; 4 – ГРЭС-2 г. Томск; 5 – ГРЭС г. Кемерово; 6 – ТЭЦ г. Юрга; 7 – ТЭЦ-3 г. Новосибирск [3]; 8 – ТЭЦ-2 г. Новосибирск [3]; 9 – ТЭЦ г. Караганда; 10–12 – котельные Томская область: 10 – котельные на угле; 11 – котельные на природном газе; 12 – котельные на древесине; 13–20 – предприятия: 13 – ЯТЦ (г. Северск); 14 – НПЗ (г. Ачинск [11]); 15 – промзона (г. Усть-Каменогорск); 16 – кирпичный завод (г. Томск); 17 – угольный разрез (г. Междуреченск); 18 – угольная шахта (г. Междуреченск); 19 – угольный разрез (г. Киселевск); 20 – угольная шахта (г. Черногорск); 22–25 – зола-уноса ТЭС; 22 – с ГРЭС г. Кемерово; 23 – с ГРЭС г. Томск; 24 – с ТЭЦ г. Караганда; 25 – с ТЭЦ г. Северск; 26 – кузнецкий уголь [1]; 27 – экибастузский уголь [1–2]; фон – [10, 13–15].



**Рис. 2.** Микрофотографии и энергодисперсионные спектры уран-содержащих микрофаз в пробах твердого осадка снега из зоны воздействия объектов теплоэнергетики, использующих уголь: а) в форме фосфатов; б) в форме оксидов (данные сканирующей электронной микроскопии)





подвергаемых воздействию ТЭС, а также для проб из г. Междуреченск (1350 трек/мм<sup>2</sup>), где функционируют угледобывающие предприятия [13].

В пробах из ближней зоны воздействия ГРЭС г. Томск (до 1 км) и в зоне уноса этой ГРЭС определены долевые соотношения различных фракций изотопов урана-238 и урана-235 методом массспектрометрии с индуктивно-связанной плазмой в вытяжках, полученных последовательным экстрагированием химическими растворами (Радиоэкологический цент, Норвегия). В результате определено, что в пробах твердого осадка снега основная доля <sup>238</sup>U и <sup>235</sup>U ассоциирована с оксидами железа и марганца (около 40%) и трудно-растворимыми соединениями (около 30%), а с карбонатными и органическими – около 10% (рис. 3).

Это соотношение отличается от золы уноса, в которой <sup>238</sup>U связан в основном с труднорастворимыми соединениями (56 %), а <sup>235</sup>U – с карбонатными (56 %). В золе уноса <sup>238</sup>U и <sup>235</sup>U также находятся с оксидами железа и марганца – 30 и 42 %, соответственно.

#### Заключение

Таким образом, по данным изучения радиогеохимических особенностей твердого осадка снега в районах расположения ТЭС и угледобывающих предприятий на юге Западной Сибири и в Центральном Казахстане отмечается преимущественно смешанная

#### Литература

- Арбузов С. И. Геохимия редких элементов в углях Сибири / С. И. Арбузов, В. В. Ершов. – Томск: Изд. дом «Д-Принт», 2007. – 468 с.
- Арбузов С. И. Металлоносность углей Сибири // Известия Томского политехнического университета, 2007. – Т. 311. – № 1. – С. 77–83.

природа поступления радиоактивных элементов. В пробах твердого осадка снега из зоны воздействия ТЭС, использующие кузнецкие угли, выявлены наиболее высокие концентрации урана и тория в сравнении с результатами исследования проб их районов расположения ТЭС, где сжигаются экибастузские угли. Близкие уровни накопления радиоактивных элементов, а также величины Th/U отношения в пробах и золе уноса указывают на источники поступления этих элементов как сжигание угля. В пробах выявлены частицы, содержащие уран в форме оксидов и фосфатов. На примере одной из изученных ГРЭС выявлено, что уран и трансурановые элементы в пробах находятся в молекулярно-рассеянной форме, а изотопы урана-235 и урана-238 в основном связаны с оксидами железа и марганца, труднорастворимыми соединениями. Установленные радиогеохимические особенности проб твердого осадка снега в районах расположения изученных ТЭС можно рассматривать как индикаторы техногенного воздействия объектов теплоэнергетики, использующие уголь в технологическом процессе.

Работа выполнена при частичной финансовой поддержке грантов РФФИ № 20-05-00675 А и № 16-45-700184 р\_а. Исследования выполнены в НИ ТПУ в рамках программы повышения конкурентоспособности ТПУ среди ведущих мировых исследовательских центров.

 Артамонова С. Ю. Уран и торий в аэрозольных выпадениях г. Новосибирска и его окрестностей (Западная Сибирь) // Известия ТПУ. Инжиниринг георесурсов, 2020. – Т. 331 – № 7. – С. 212–223.

- Волостнов А. В., Арбузов С. И. Токсичные элементы в углях Сибири // Энергетик, 2011. – № 3. – С. 39–44.
- Геохимия окружающей среды / Ю. Е. Сает,
  Б. А. Ревич, Е. П. Янин и др. М.: Недра, 1990.
   335 с.
- Касимов Н. С. Геохимия снежного покрова в восточном округе Москвы / Н. С. Касимов, Н. Е. Кошелева, Д. В. Власов, Е. В. Терская // Вестн. Моск. ун-та, сер. 5. География, 2012. – № 4. – С. 14–24.
- Нифантов Б. Ф. Угли Кузбасса: химические элементы-примеси и технологии их извлечения при комплексном освоении месторождений / Б. Ф. Нифантов В. П. Потапов, Б. А. Анфёров, Л. В. Кузнецова. – Кемерово: ИУ СО РАН, 2011. – 310 с.
- Ревич Б. А. К оценке влияния деятельности ТЭК на качество окружающей среды и здоровье населения // Проблемы прогнозирования, 2010. – № 4. – С. 87–99.
- Рихванов Л. П. Радиоактивные элементы в окружающей среде / Л. П. Рихванов, С. И. Арбузов, Н. В. Барановская, А. В. Волостнов, Т. А. Архангельская, А. М. Межибор, В. В. Берчук, Л. В. Жорняк, Ю. Л. Замятина, А. Ю. Иванов, А. В. Таловская, С. С. Шатилова, Е. Г. Язиков // Известия ТПУ, 2007. – Т. 311 – № 1. – С. 128–136.
- Шатилов А. Ю. Вещественный состав и геохимическая характеристика атмосферных выпадений на территории Обского бассейна: дис. ... канд. геол.-мин. наук. – Томск, 2001. – 205 с.

- Шахова Т. С. Влияние нефтеперерабатывающих заводов на эколого-геохимическую обстановку прилегающих территорий по данным изучения снегового покрова (на примере гг. Омск, Ачинск, Павлодар): автореф. дис. ... канд. геол.-минерал. наук. – Томск, 2018. – 22 с.
- Юдович Я. Э. Токсичные элементы-примеси в углях / Я. Э. Юдович, М. П. Кетрис. – Екатеринбург: УрО РАН, 2005. – 655 с.
- Язиков Е. Г. Оценка эколого-геохимического состояния территории г. Томска по данным изучения пылеаэрозолей и почв: монография / Е. Г. Язиков, А. В. Таловская, Л. В. Жорняк. – Томск: Изд-во ТПУ, 2010. – 264 с.
- 14. Язиков Е. Г. Радиоактивные элементы в атмосферных выпадениях снегового покрова урбанизированных территориях / Е. Г. Язиков, А. В. Таловская, Е. А. Филимоненко, В. В. Литау, Т. Е. Адильбаева, Т. С. Шахова // Радиоактивность и радиоактивные элементы в среде обитания человека. – Томск, 2016. – С. 747–751.
- Язиков Е. Г. Экогеохимия урбанизированных территорий юга Западной Сибири: дис. ... докт. геолого-минерал. наук. – Томск, 2006. – 423 с.
- 16. Russell M. C. The impact of three recent coal-fired power plant closings on Pittsburgh air quality: a natural experiment / M. C. Russell, J. H. Belle, Y. Liu // Journal of the Air & Waste Management Association, 2017. – V. 67. – № 1. – P. 3–16.