

«МИГРАЦИЯ, БИОАККУМУЛЯЦИЯ И БИОТРАНСФОРМАЦИЯ ТЕХНОГЕННЫХ АКТИНИДОВ В ВОДНЫХ И НАЗЕМНЫХ БИОГЕОЦЕНОЗАХ»

ВВЕДЕНИЕ

Радиоактивность – это самопроизвольный распад атомных ядер вещества с испусканием ядерных излучений: альфа-частиц (ядер гелия), бета-частиц (электронов) и гамма-квантов. Известны и другие более редкие виды распада: спонтанное деление ядер, двойной бета-распад, испускание ядерных кластеров и т.д. Для оценки воздействия ионизирующего излучения на объекты окружающей среды и живые организмы используют понятие «дозы». Поглощенная доза – это отношение энергии, переданной объекту излучением, к его массе. Для оценки воздействия излучения на живые организмы используют эквивалентную дозу, при расчете которой учитывается тот факт, что ионизирующее излучения различного типа и энергии по-разному воздействуют на организм. Таким образом, токсичность радионуклидов зависит от типа и энергии их излучения. Хотя рекомендации Международной комиссии по радиационной защите не делают различия между естественными и искусственными радионуклидами, именно последние отличаются высокой удельной активностью. Поэтому данная работа посвящена исследованию процессов миграции и распределения искусственных радионуклидов в природной среде.

Искусственные радионуклиды и, прежде всего, наиболее опасные изотопы трансурановых элементов (ТУЭ), стали постоянным и необратимыми компонентами биосферы вследствие проводившихся ядерных взрывов, сброса радиоактивных отходов в водоемы, а также нарушений технологий и аварийных ситуаций на предприятиях ядерно-топливного цикла. Проведение радиомониторинга этих высокотоксичных элементов с учетом низкого уровня массовых концентраций и сложного солевого состава объектов окружающей среды требует знания форм нахождения актинидов и разработки методов предварительного избирательного концентрирования, а также использования уникальных методов высокочувствительного определения актинидов в объектах окружающей среды.

Известно, что многие радионуклиды способны накапливаться компонентами биогеоценозов и включаться в пищевые цепочки. Однако в настоящее время наиболее подробно изучено поведение только гамма-излучающих короткоживущих изотопов. Биоаккумуляция альфа-излучающих и наиболее токсичных изотопов актинидных элементов исследована меньше из-за методологических трудностей радиохимического анализа. Тем не менее лабораторные исследования показывают высокую степень сорбции актинидов, в первую очередь нептуния, микроорганизмами и растительностью.

Альфа-излучение, как правило, не представляет опасности до тех пор, пока вещество не попадет в организм человека. Если в организм человека проникают частицы, содержащие альфа - излучающие изотопы, они оседают в тканях легкого, в лимфатических узлах, где и выделяют свою энергию в достаточно локализованной области. Результатом может стать рак легких и другие онкологические заболевания после скрытого периода, зависящего от полученной дозы.

Активность облученного ядерного топлива (ОЯТ) через 10-100 лет выдержки определяется следующими радионуклидами $^{241,243}\text{Am} > ^{90}\text{Sr} > ^{137}\text{Cs} > ^{239,240}\text{Pu} > ^{237}\text{Np}$. В настоящее время подробный радиомониторинг проводится только для ^{137}Cs и частично, для ^{90}Sr и $^{239,240}\text{Pu}$. В то же время все указанные радионуклиды накапливаются в различных компонентах окружающей среды: ^{90}Sr – в водах, ^{137}Cs – в глинистых минералах донных отложений, $^{241,243}\text{Am}$ в органическом веществе вод и донных отложений, $^{239,240}\text{Pu}$ – в гидроксидах коллоидов и донных отложений, ^{237}Np в микроорганизмах, биоте и растительности. Поэтому каждый из перечисленных радионуклидов может являться индикатором техногенного загрязнения. Особенно это касается $^{241,243}\text{Am}$, содержание (активность) которого для ОЯТ максимальна, и ^{237}Np , коэффициенты накопления которого растительностью на 2-4 порядка превышают эти значения для других радионуклидов. Кроме того отношение активности америция и нептуния к активности плутония для ОЯТ существенно отличается от этого отношения в продуктах глобальных выпадений и других техногенных загрязнений, что позволяет выявлять источники загрязнения.

Экологический мониторинг должен включать не только наблюдения, но и прогноз развития ситуации, определение отклика подвергшейся радиоактивному заражению экосистемы и заранее продуманную программу реабилитации при различных внештатных ситуациях [1]. Без знания закономерностей распределения и динамики миграции радионуклидов в наземных и водных экосистемах невозможна корректная оценка радиационной обстановки, ее прогнозирование и разработка мероприятий по реабилитации уже загрязненных территорий. Несмотря на это, в научной и специализированной литературе крайне мало информации о физико-химических формах радионуклидов в природной среде. Однако именно они определяют подвижность и биодоступность радионуклидов, а соответственно и потенциальное воздействие на человека [2]. Особенно это относится к актинидам, существующим в различных состояниях окисления и подверженным процессам биотрансформации.

Понятие физико-химической формы включает:

- связывание с частицами разного размера;

- распределение по различным геохимическим фракциям - обменной, окисляемой, восстанавливаемой, сульфидной и т. д.;
- распределение по катионной, анионной или нейтральной формам;
- химическую форму радионуклида (в состав какого соединения он входит, ближайшее лигандное окружение, степень окисления и т. д.).

Методы определения физико-химических форм радионуклидов можно разделить на косвенные и прямые (спектральные). Косвенные методы включают предварительное выделение (экстракционное, сорбционное, фильтрационное и т. п.) тех или иных форм или фракций с дальнейшим определением в них радионуклидов доступными методами. Косвенные (или химические) методы широко используются для определения физико-химических форм радионуклидов в окружающей среде, поскольку обладают высокой чувствительностью. Однако результаты косвенных определений носят оценочный характер, так как воздействие на пробу в процессе выделения может привести к изменению равновесного распределения форм.

Прямые методы позволяют получить информацию о формах радионуклидов без химического воздействия на пробу. Они обладают существенно большей информативностью по сравнению с косвенными, однако в целом их чувствительность значительно ниже.

I. АНАЛИТИЧЕСКАЯ ЧАСТЬ

1.1. Реактивы и материалы

В работе использовали радиохимически чистые метки изотопов – ^{236}Pu , ^{243}Am , ^{244}Cm , ^{233}U , ^{239}Np . Состояние окисления актинидов в исходном растворе определяли спектрофотометрически (Unicam UV-340).

Для радиохимического анализа использовали органические реагенты: дифенил-(N,N-дибутил)карбамоилметилфосфин оксид (Ph_2Bu_2), полиарсеназо-н и дицеклогексил-18краун-6 (ДЦГ18К6) были синтезированы и очищены в ИНЭОС. При приготовлении экстракционно-хроматографических колонок применяли аналитические весы Sartorius LA 230P и рН-метр Hanna Instruments рН 211 со стеклянным электродом Hanna Instruments. Калибровка рН-метра проводилась при помощи буферных растворов Mettler Toledo. Остальные химические реактивы были квалификации «ХЧ».

Для сопоставления результатов исследования эксперименты проводили не только с реальной загрязненной грунтовой водой, отобранной в местах хранения отходов, но и с

модельной грунтовой водой. Модельную грунтовую воду (МГВ) готовили в соответствии с японским стандартом PNC TN 141298-013(1998) (Табл. 1). Величину Eh раствора поддерживали электрохимически [3].

Таблица 1. Состав модельной грунтовой воды.

Компонент	Содержание, М
Na ⁺	$3.6 \cdot 10^{-3}$
K ⁺	$6.2 \cdot 10^{-5}$
Mg ²⁺	$5.0 \cdot 10^{-5}$
Ca ²⁺	$1.1 \cdot 10^{-4}$
Al ³⁺	$3.4 \cdot 10^{-7}$
Fe ²⁺	$9.8 \cdot 10^{-10}$
Si	$3.4 \cdot 10^{-4}$
Cl ⁻	$4.0 \cdot 10^{-5}$
SO ₄ ²⁻	$1.2 \cdot 10^{-4}$
CO ₃ ²⁻ (total)	$3.6 \cdot 10^{-3}$
Br ⁻	$6.3 \cdot 10^{-6}$
F ⁻	$7.7 \cdot 10^{-5}$
P	$2.9 \cdot 10^{-5}$
N	$6.5 \cdot 10^{-5}$
B	$2.1 \cdot 10^{-4}$
pH	8.4
Eh	-281 mVB

1.2. Объекты исследования

Для отбора образцов почв во всех случаях выбирали наиболее типичные для изучаемых регионов биogeоценозы. Образцы почв на территории Восточно-Уральского радиоактивного следа (ВУРС) отбирали с площади 0,02-0,36 м² непрерывно по

почвенному профилю с учетом генетического строения почв путем закладывания почвенных разрезов глубиной до 40 см от поверхности либо разборным почвенным буром. Мощность отбираемых слоев почвы составляла от 2 до 5 см. Отдельно собирали с определенной площади полуперегивший растительный опад.

Образцы воды из промышленных водоемов ФГУП ПО «Маяк» отбирали батометром из поверхностного слоя; донных отложений - стратометром трубчатого типа со льда. Керны донных отложений замораживали на месте и затем делили на слои для последующего анализа. Для определения концентрации радионуклидов в донных отложениях анализировали два слоя: поверхностный мощностью 0-2,5(3) и с глубины в 20-23 см.

Отбор образцов на промплощадке Кирово-Чепецкого химического комбината проводили сотрудники Гидроспецгеологии (ООО «Геосервис»). Отбор образцов в этом случае производился буром до глубины 8-10 м.

Образцы пойменных почв и донных отложений реки Енисей (вблизи Красноярского ГХК) были представлены сотрудниками ФГУП НПО «Радиевый институт им. В.Г. Хлопина» и Института биофизики СО РАН. Пойменные почвы были отобраны на разных глубинах почвенных профилей. В качестве образцов донных отложений отбирали верхние слои (0-5 см).

В качестве полигона для проведения радиомониторинга в рамках НИР выбрана также зона хранилищ приповерхностного типа, расположенных в Московской области (полигон МосНПО «Радон»). Площадка исследований представляет собой полигон долговременного хранения РАО, на территории которого хранятся отходы низкого и среднего уровня активности. Вмещающими породами являются покровные суглинки и суглинки московской морены - грунты с низкими фильтрационными свойствами. Возможность выноса радионуклидов из хранилищ с грунтовыми водами в горизонтальном направлении контролируется дренажной системой предприятия, включающей в себя дренажные колодцы, траншеи, каналы и отстойники. В вертикальном направлении основным естественным барьером, помимо инженерных, являются суглинки московской морены, мощностью в 35-40 метров, препятствующие миграции загрязнения в первый водоносный горизонт.

Образцы биоты и их описание были представлены сотрудниками лаборатории морской геоэкологии ГЕОХИ РАН, Института биофизики СО РАН (г. Красноярск) и ФГУП ФИБ (г. Озерск). В месте отбора почвенных образцов срезали наземную часть травянистых растений с площади 0,25-5,25 м² в зависимости от плотности растительного покрова. После отбора живой травянистой растительности, с этой же площади отбирали

прошлогодний полуперегнивший растительный опад и ветошь, который скапливается непосредственно над верхним гумусовым горизонтом почвы. Растительные образцы высушивали на воздухе, измельчали ножницами, помещали в фарфоровые чашки и осторожно озоляли в муфельной печи при 550 градусах С постепенно повышая температуру в течении 5-6 часов до получения однородного зольного остатка. Растительные образцы взвешивали до и после озоления.

1.3. Методики анализа

1.3.1. Методы радиохимического анализа объектов окружающей среды

Для определения содержания и форм радионуклидов в разных объектах природной среды в настоящей работе была применена схема радиохимического и элементного анализа объектов окружающей среды, разработанная в ГЕОХИ РАН [4]. Эта методика позволяет определять содержание всех радионуклидов в одной пробе, что в несколько раз сокращает время, требуемое на пробоподготовку и перевод радионуклидов в раствор. Так, при анализе биоты, почв, донных отложений, пород и других твердых образцов пробоподготовка включала в себя высушивание образца до воздушно-сухого состояния, измельчение, просеивание через сито с диаметром отверстий в 1 мм и озоление при температуре около 550⁰С для разрушения органического вещества. При анализе водных образцов радионуклиды предварительно концентрировали путем выпаривания, соосаждения с труднорастворимыми соединениями щелочноземельных и редкоземельных элементов, гидроксидами железа и алюминия, сорбции на ионитах, экстракции и экстракционной хроматографии, ультрафильтрации и т.д.

Для перевода радионуклидов в раствор из зольного остатка или концентратов из природных вод достаточна либо непосредственная обработка их 7-8 М HNO₃ в присутствии бромата калия либо той же кислотой после предварительной обработки смесью фтористоводородной и серной кислотами. Для последующего концентрирования и радиохимической очистки плутония использовали отечественный анионит ВП-1Ап; америция и кюрия - комплексообразующий сорбент полиарсеназо-н или Ph₂Bu₂; ⁹⁰Sr - пористый сополимер стирола с дивинилбензолом (ТВЭКС), импрегнированный 10% дициклогексил-18-краун-6 (ДЦГ18К6) в тетрахлорэтаноле (**Рис. 1**). Последний этап методики был специально усовершенствован для анализа образцов, отобранных в зоне воздействия ПО "Маяк", так как в этом случае требуется дополнительная очистка ⁹⁰Sr от ²¹⁰Pb. Последний выделяли путем дополнительного элюирования 0.5М щавелевой кислотой [5]. Конечное выделение актинидов для последующего измерения альфа-

активности осуществлялось путем соосаждения его с LaF_3 (70-100 мкг). Образовавшийся осадок наносили на ядерный фильтр с размером пор 0,1 мкм, помещенный в разборную воронку из фторпласта, подсоединенную к водоструйному насосу. Диаметр активной части образца -21 мм [6, 7]. Радиостронций осаждали при $\text{pH}=9$ со стабильным стронцием и измеряли общую бета-активность до накопления дочернего ^{90}Yt .

Измерение активности актинидов проводили на альфа-спектрометрической установке, (Canberra) с полупроводниковыми PIPS детекторами (8 камер). Фон установки в области пиков $^{236, 239,240}\text{Pu}$ - $1 \cdot 10^{-3}$ имп/мин, эффективность счета - около 30%, разрешение по эталону $^{239,240}\text{Pu}$ - 35-40 кэВ. В отдельных случаях использовали коллиматор из полиэтилена толщиной 0,8 мм с отверстием диаметром 1 мм для α -спектрометрического анализа отдельных частиц; гамма-спектрометр с полупроводниковым детектором из сверхчистого Ge (Canberra) и жидкостно-сцинтилляционный спектрометр Tri-Carb 2700TR (Canberra Packard Inc.).

Выделение и определение нептуния является еще более сложным, чем плутония и америция вследствие его меньшей удельной активности. Разработанный экспрессный мембранно-люминесцентный метод основан на выделении этого радионуклида с фосфорвольфраматом калия и последующей сорбции на пористой тефлоновой мембране, импрегнированной 0.5 М раствором триоктиламмоний нитрата (ТОМАН) в толуоле [8]. Затем мембрану с выделенными на ней нептунием и кристаллофосфором прокачивали при 900°C и измеряли сигнал его люминесценции на разработанном в ГЕОХИ РАН анализаторе ЛЛФ-5. В качестве кристаллофосфоров применяли CaF_2 , PbMoO_4 и $\text{NaBi}(\text{WO}_3)_2$ при определении пар: уран - нептуний, плутоний - нептуний и нептуний - америций, соответственно.

Коэффициенты очистки пар $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$, $^{239,240}\text{Pu}/^{228}\text{Th}$, $^{238}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$, $^{241}\text{Am}/^{238}\text{Pu}$ и $^{239}\text{Np}/\text{Fe}$ по описанной выше методике составляли - 10^3 , 10^4 , 10^4 , 10^3 и 10^3 , соответственно.

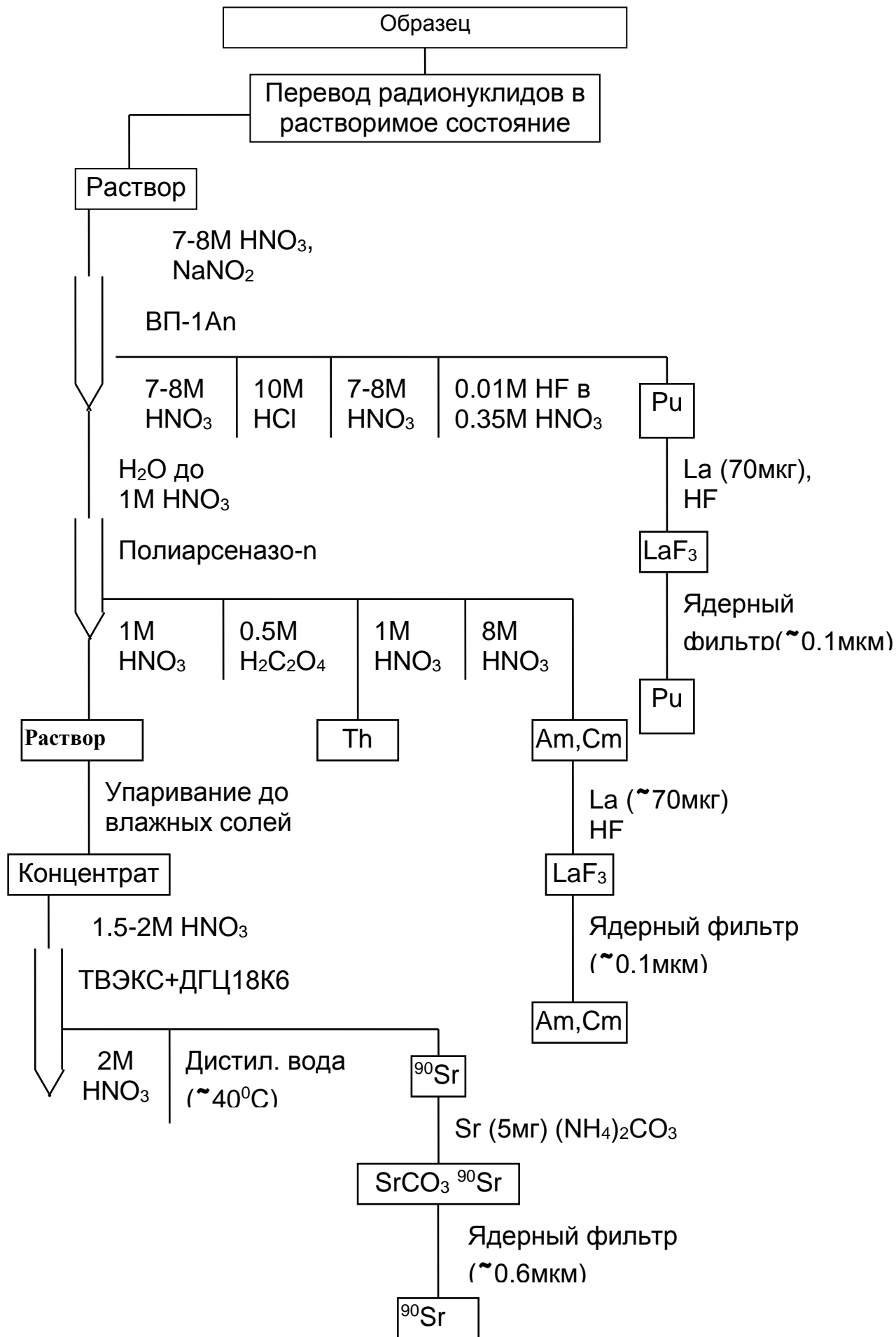


Рис. 1. Схема радиохимического анализа образцов

1.3.2. Методы химического анализа объектов окружающей среды

В почвах определяли также органический углерод ($C_{\text{орг}}$) и некоторые химические элементы. Для определения $C_{\text{орг}}$ применяли метод мокрого сжигания по Тюрину (Л.А.Воробьева Химический анализ почв. Издательство Московского Университета, 1998). Вариант титрометрического метода, применяемый в России, был предложен И.В.Тюриным в 1931 г. Анализ сводится к следующему: к навеске тонкоизмельченной почвы (массой 0,1-1,0 г в зависимости от содержания гумуса) приливают строго определенный объем сернокислого раствора дихромата калия ($K_2Cr_2O_7$), смесь кипятят, в результате происходит окисление органического вещества и восстановление $Cr_2O_7^{2-}$ до Cr^{3+} ; затем непрореагировавший избыток дихромат-ионов определяют титрованием с раствором соли Мора $(NH_4)_2SO_4 + FeSO_4 \cdot 6H_2O$ в присутствии индикатора 0,2% -ного раствора фенилантраниловой кислоты до перехода окраски в зеленую. По разности количества дихромата до и после окисления находят содержание органического углерода в почве. Для быстрой оценки (при необходимости) $C_{\text{орг}}$ в растворе применяли метод определения перманганатной окисляемости (метод Кубеля). Данный метод получил широкое распространение в силу своей относительной простоты и надежности. Метод Кубеля регламентирован международным стандартом ИСО 8467. Для определения $C_{\text{орг}}$ из прошедших и отфильтрованных водных фракций отбирали аликвоты 0,5-1,0 мл в стеклянные конические колбы разбавляли их 50 мл бидисциллированной воды, добавляли 2,5 мл серной кислоты, разбавленную водой 1:3, 10 мл 0,01М раствора перманганата калия и помещали на плитку, кипячение проводили в течение 10 мин. Затем приливали 10 мл щавелевой кислоты и титровали 0,01М раствором перманганата калия до розовой окраски. По разности количеств перманганата калия, пошедшего на титрование пробы и холостого определения рассчитывается содержание органического углерода в пробах воды.

При определении содержания химических элементов применяли химические и физико-химические методы (нейтронно-активационный, атомно-абсорбционный (АА-6200), спектрометрию с индуктивно-связанной плазмой – ICP-MS Agilent 7700, ионную хроматографию "Цвет-3006").

Концентрацию коллоидных частиц в природных водах и почвенных растворах определяли методом фотонной корреляционной спектрометрии (The photon correlation spectrometry (PCS). Чувствительность спектрометра составляла от 1 нм до 5 мкм.

Для определения состава коллоидных и минеральных частиц использовали сканирующий электронный микроскоп с рентгеновским энергодисперсионным спектрометром (JSM-5610LV+IED-230D, JSM-5300+LinkISIS). Для структурного анализа

частиц использовали рентгеновский дифрактометр D/MAX-2200. Состав поверхности минералов исследовали методом рентгеновской фотоэлектронной микроскопии.

1.3.3. Методы определения форм нахождения радионуклидов.

Для определения форм нахождения методами фракционирования применяли схемы селективного последовательного выщелачивания селективными реагентами и фракционирование по группам органического вещества [9, 10]. Первый метод позволяет оценить геохимические формы подвижности радионуклидов (водорастворимую, обменную, подвижную, кислоторастворимую и труднорастворимую). Второй метод позволяет определить содержание радионуклидов в различных группах органического вещества почв, донных отложений, взвешенного и коллоидного вещества природных вод.

1.3.3.1. Определение растворимых и нерастворимых форм радионуклидов в твердой фазе

Определение водорастворимой формы

Навеску твердой фазы при соотношении твердая фаза : дистиллированная вода = 1:5 перемешивают на магнитной мешалке в течение 3-5 минут. Суспензию центрифугируют при 3000-6000 об/мин или фильтруют через фильтр "синяя лента" на воронке Бюхнера.

Определение обменной и легкорастворимой формы

Остаток после водной вытяжки при соотношении твердая : жидкая фазы = 1:10 обрабатывают ацетатно-аммонийным буфером с pH=4,8 (для его приготовления 108 мл 98% раствора CH_3COOH разбавляют дистиллированной водой до 600-700 мл и прибавляют 75 мл 25% раствора NH_4OH , перемешивают и доводят объем до 1 л, pH полученного раствора проверяют). Перемешивают на магнитной мешалке в течение 1 часа. Суспензию центрифугируют при 3000-6000 об/мин. или фильтруют через фильтр "синяя лента" на воронке Бюхнера.

1.3.3.2. Определение подвижной формы

Остаток после ацетатной вытяжки обрабатывают 1М HCl при соотношении фаз 1:10 и перемешивании на магнитной мешалке в течение 1 часа, затем центрифугируют при 3000-6000 об/мин или фильтруют через фильтр "синяя лента" на воронке Бюхнера.

Определение кислоторастворимой формы

Остаток после 1М солянокислой вытяжки обрабатывают дважды 6М HCl при соотношении фаз 1:2 при перемешивании на магнитной мешалке каждый раз в течение 30 мин., центрифугируют при 3000-6000 об/мин или фильтруют через фильтр "синяя лента" на воронке Бюхнера. Фильтраты объединяют.

Определение труднорастворимой формы

Остаток подсушивают, озоляют в муфельном шкафу при $t=500-550^{\circ}\text{C}$, переводят в раствор и определяют в нем содержание плутония и америция.

1.3.3.3. Определение радионуклидов в аморфной форме

Аморфная форма химических элементов и радионуклидов представлена в основном соединениями, порывающими в виде пленок минеральную частицу и переходящими в раствор при обработке образца раствором Тамма. В свою очередь они состоят в основном из органических кислот и их соединений с железом, алюминием, кальцием и другими элементами (самая верхняя пленка) и гидроксидов железа и алюминия (следующая пленка). Эти группы соединений относятся к потенциально растворимым и оказывают влияние на дальнейшее поведение содержащихся в них химических элементов и радионуклидов. По нашим данным в почвах в них содержатся до 90% плутония. Для выделения аморфной формы радионуклидов отдельную навеску почвы или донных отложений при соотношении фаз 1:20 дважды обрабатывают раствором Тамма {28,4 г $(\text{NH}_4)_2\text{C}_2\text{O}_4$ и 12,6 г $\text{H}_2\text{C}_2\text{O}_4$ в 1 литре} при перемешивании на магнитной мешалке по 1 часу, центрифугируют при 3000-6000 об/мин.

1.3.3.4. Определение радионуклидов в органических и неорганических компонентах твердой фазы почв и донных отложений.

Наиболее часто для понимания процессов, происходящих в экосистемах и роли отдельных групп соединений в миграции радионуклидов необходимо знать распределение их между органическими и неорганическими соединениями. С этой целью используют более сложную методику.

Выделение органических компонентов осуществляют многократной обработкой растворами 0,1М NaOH и 0,5М $\text{Na}_2\text{C}_2\text{O}_4$ (соотношение реагентов 1:4), соотношение твердой и жидкой фаз 1:10, при перемешивании на магнитной мешалке в течение 30 мин. Затем суспензию центрифугируют при 3000-6000 об/мин. или фильтруют через фильтр "синяя лента" на воронке Бюхнера. Обработку проводят до получения почти бесцветного раствора. Остаток реагента удаляют промыванием твердой фазы дистиллированной водой при тех же условиях. Затем выделение неорганических компонентов осуществляют путем обработки остатка раствором Тамма при соотношении твердой и жидкой фаз 1:10 в течение 30 мин на магнитной мешалке. Обработку повторяют до отрицательной реакции на железо с роданидом калия (или роданидом аммония).

1.3.3.5. Методы определения окислительно-восстановительных форм актинидов.

Для химического разделения форм актинидов применяли следующую методику: Исходные растворы разбавляли 0,01 М NH_4ClO_4 и доводили до pH 6. Общий объем конечного раствора 7 мл. В каждый раствор добавляли 20 мкл $^{239}\text{Pu}(\text{V})$. После этого отбирали 200 мкл полученного раствора, прибавляли 100 мкл 4М HCl до pH=0 (для разрушения гуматных комплексов), отбирали 20 мкл на мишень для последующего определения исходной общей концентрации плутония. К оставшемуся раствору (280 мкл) добавляли 150 мкл Д2ЭГФК в декане (для разделения форм плутония), экстрагировали 5 минут и отбирали 20 мкл водной фазы на мишень.

1.3.3.6. Схема метода фракционирования органического вещества почвы

Выделение фракции 1 проводят из отдельной навески почвы (масса пробы зависит от количества изучаемых радионуклидов в анализируемом образце). Навеску пробы заливают 20-ти кратным объемом 0,1 М NaOH , перемешивают и оставляют на ночь. Суспензию центрифугируют при 3000 об/мин и фильтруют через фильтр “синяя лента”. Для разделения гуминовых и фульвокислот к щелочному раствору по каплям прибавляют 6М HCl при перемешивании до pH=1-2. После помутнения раствор нагревают при 70-80° С в течение 30 мин и дают осадку отстояться. Надосадочную жидкость центрифугируют при 3000 об/мин и фильтруют через фильтр “синяя лента”. Осадок гуминовых кислот в центрифужной пробирке переводят в растворимое состояние путем обработки горячим раствором 0,1 М NaOH . Обработку повторяют до полного растворения осадка.

В фракцию 1 переходят гуминовые и фульвокислоты, свободные и связанные преимущественно с подвижными гидроксидами железа, марганца, алюминия и другими элементами.

Выделение фракции 1a (декальцинат). Декальцинирование и последующее выделение фракций органических веществ проводят из одной навески. Для декальцинирования навеску пробы помещают в стакан, заливают 0,1 М HCl при соотношении твердой и жидкой фаз 1:10. Настаивают 12-16 часов при периодическом перемешивании. После отстаивания раствор центрифугируют при 3000 об/мин и фильтруют через рыхлый фильтр. Обработку твердой фазы кислотой повторяют до отрицательной реакции на кальций в фильтрате (в качестве индикатора используют мурексид).

В декальцинат переходят фульво- и низкомолекулярные кислоты, свободные и связанные с подвижными $\text{R}_2\text{O}_3 \cdot n\text{H}_2\text{O}$.

Выделение фракции 1+2 Остаток после декальцинирования заливают 10-ти кратным количеством 0,1М NaOH и перемешивают. После настаивания в течение 12-18 часов добавляют Na₂SO₄ · 10H₂O (способствует коагуляции и полному осаждению минеральных коллоидов и получению чистых прозрачных вытяжек) и перемешивают до полного растворения сульфата. После отстаивания темно-окрашенный щелочной раствор центрифугируют при 3000 об/мин и фильтруют. Фильтрат должен быть прозрачным. Экстракцию гумусовых веществ продолжают до получения слабоокрашенного фильтрата. Для разделения гуминовых и фульвокислот в щелочной экстракт добавляют 6М HCl до pH=1, как описано выше при выделении фракции 1. Раствор фульвокислот собирают в отдельную емкость. Осадок гуминовых кислот в центрифужной пробирке растворяют в горячем растворе 0,1М KOH, добавляют KCl, щелочной раствор отстаивается, образовавшийся осадок коллоидных минералов отделяется центрифугированием и присоединяют его к остатку пробы, вновь осаждают гуминовые кислоты 6М HCl при pH=1, суспензию выдерживают 12-16 ч. Осадок гуминовых кислот центрифугируют и промывают в центрифужных пробирках с 0,1М HCl дважды, а затем дистиллированной водой, промывание гуминовых кислот водой немедленно прекращают при первых признаках побурения промывной жидкости. Промывные воды и раствор после переосаждения гуминовых кислот собирают в отдельную емкость.

Во фракцию 1+2 переходят свободные и связанные с подвижными R₂O₃ · nH₂O и кальцием гуминовые и фульвокислоты.

Выделение фракции 3 Остаток после выделения фракции 1+2 обрабатывают 0,02 М NaOH (соотношение твердой и жидкой фаз 1:10) при 6-ти часовом нагревании на водяной бане. После отстаивания суспензию центрифугируют и фильтруют. В фильтрате разделяют гуминовые и фульвокислоты как описано выше.

Во фракцию 3 переходят гуминовые и фульвокислоты прочно связанные с гидроксидами и минеральными частицами образца.

Остаток подсушивают, озоняют в муфельном шкафу при t=500°, обрабатывают при кипячении в течение 30-40 мин дважды с 7,5М HNO₃, отфильтровывают и определяют в фильтрате содержание плутония.

В остатке находятся гумусовые кислоты, прочно связанные с гидроксидами химических элементов и минеральными частицами почв, гумины, разнообразные минеральные соединения.

1.3.3.7. Ультрафильтрация

В работе использовали стандартные фильтрационные модули (**Рис. 2**) при постоянном давлении (N₂) около 300 кПа и мембраны Amicon PM-10 (10 кДа). Для

определения прочности удерживания коллоидным веществом радионуклидов процесс проводили в удобном для определения степеней удерживания элементов режиме промывки (**Рис. 3**) [11]. Степень удерживания (R) определяли как: $R^z = C^z/C^0$, где C^0 и C^z – концентрация ТУЭ в ячейке до фильтрации и при степени относительного концентрирования - Z .

Установка для последовательной ультрафильтрации природной воды через мембраны с различным диаметром пор представлена на **Рис. 4**. Установка разработана в ГЕОХИ РАН и используется для выделения коллоидных частиц различного размера.

Для разделения гумусовых кислот по молекулярной массе использовали метод центробежной ультрафильтрации при 8000 оборотах в минуту через фильтрующие насадки фирмы MILLIPORE марки Amicon от 100 до 3 кДа. Для фильтрования через фильтр определенного размера брали каждый раз отдельную пробу гумусовых кислот объемом 0,5 мл. В полученных фильтратах определяли РН радиохимическим методом.

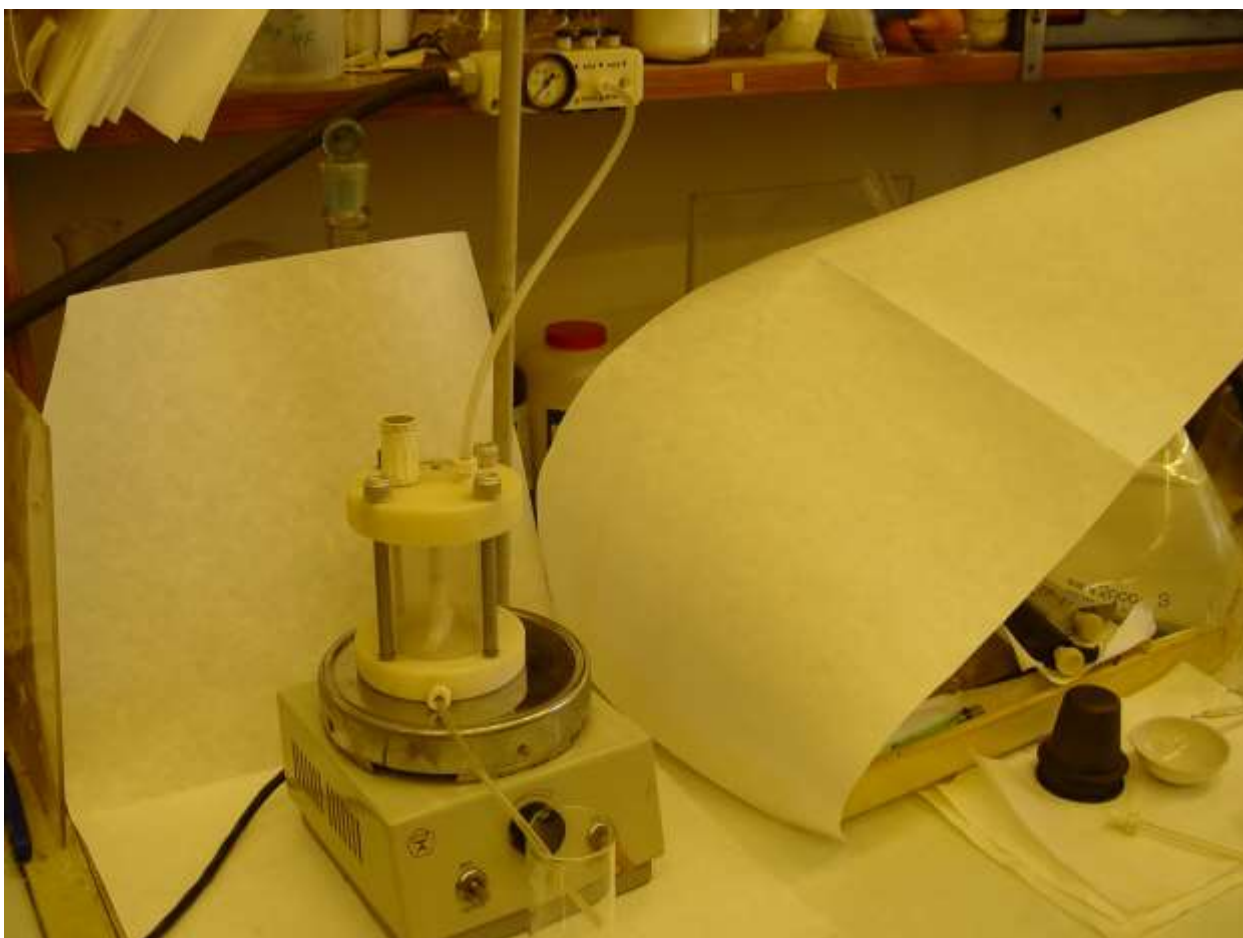


Рис. 2. Внешний вид фильтрационной ячейки

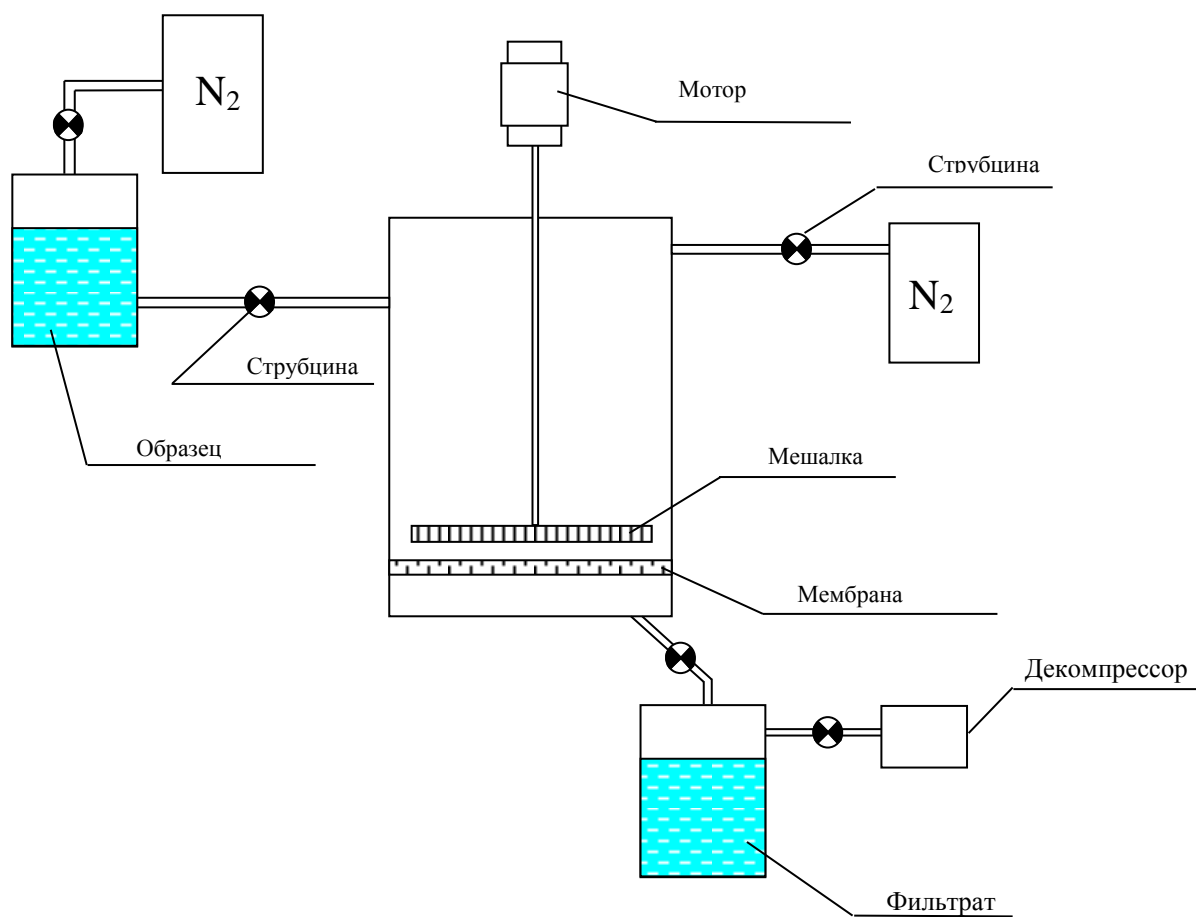


Рис. 3. Схема ультрафильтрационной установки



Рис. 4. Установка для последовательной ультрафильтрации.

1.3.3.8. Изучение распределения рН между специфическими и неспецифическими компонентами кислого раствора Фк с использованием активированного угля БАУ.

Активированный уголь БАУ измельчали и просеивали через сито с размером пор 1 и 0,5 мм. Для анализа отбирали уголь с размером частиц 0,5-1 мм. Для понижения зольности угля его дважды обрабатывали в тefлоновой чашке при нагревании на водяной бане концентрированной HF, выпаривая после каждой обработки кислоту досуха, затем дважды обрабатывали концентрированной HCl, выпаривая остаток кислоты до влажного остатка. Уголь переносили в коническую колбу и промывали дистиллированной водой до отрицательной реакции на ионы Cl⁻.

В стеклянную хроматографическую колонку высотой 15 см, диаметром= 0,8 см помещали 1,2 г отмытого угля БАУ. Высота слоя сорбента в колонке~ 10 см. Уголь в колонке промывали 20-25 мл 0,1 н HCl. Скорость пропускания растворов составляла 0,2-0,3 мл/мин.

Схема разделения Фк приведена на **Рис. 5**. Исследуемые растворы ФК и декальцината, имеющие рН = 1-1,5, пропускали через колонку, заполненную углем БАУ со скоростью 0,2-0,3 мл/мин. Десорбцию фракций последовательно проводили в следующем порядке:

- промывание 15 мл 0,1 н HCl, затем 30 мл дистиллированной H₂O до отсутствия хлорид-ионов. Фильтрат и промывные воды объединяли. Полученная бесцветная фракция – **фракция А** представлена в основном карбоновыми и оксикарбоновыми кислотами, аминокислотами, углеводами и др.

-промывание 25 мл 10% раствора H₂O в ацетоне, затем 25 мл H₂O. Фильтраты объединяли. Полученная фракция – **фракция В** (фенолы и полифенолы) и **фракция С** (сахара, полисахариды и др.) объединялись. Объединенный фильтрат выпаривали до влажных солей, растворяли в дистиллированной H₂O и довели рН до 4,2.

-промывание 20 мл 0,1н NaOH со скоростью 0,2 мл/мин до обесцвечивания десорбата, затем заливают новой порцией щелочи (15-20 мл) и оставляют на 12-18 часов (ввиду замедленной кинетики десорбции), затем промывают водой. Фильтраты объединяют. Это **Фракция D-** собственно фульвокислоты, очищенные от примеси низкомолекулярных органических веществ.

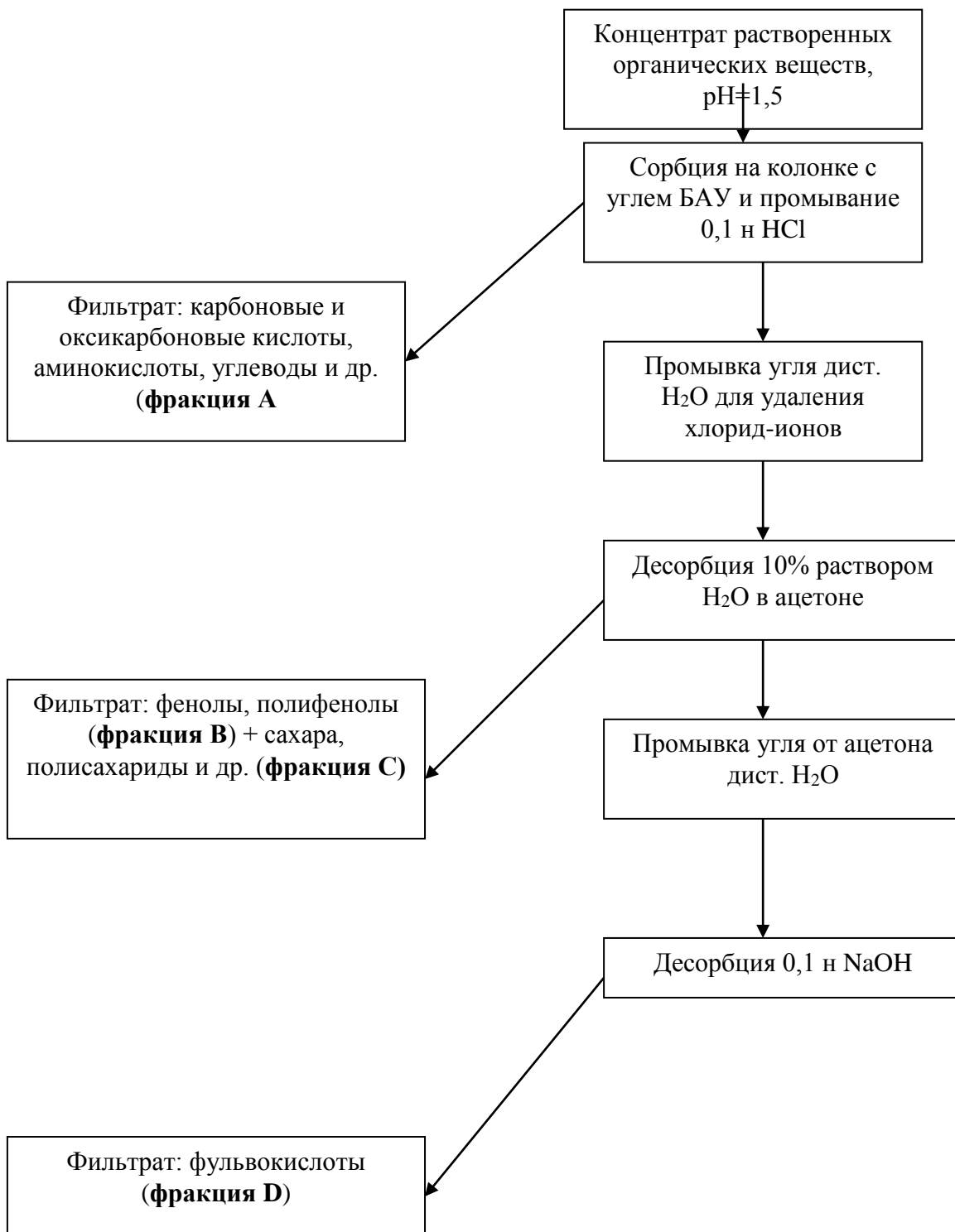


Рис. 5. Схема фракционирования растворенных органических веществ методом адсорбционной хроматографии на угле БАУ

II. ОСНОВНАЯ ЧАСТЬ.

Этап 1. Выбор направления исследований, отбор и классификация образцов.

2.1. Обзор литературы

2.1.1 Источники и формы поступления техногенных радионуклидов в окружающую среду

Имеющееся в настоящее время значительное количество данных по содержанию и распределению в различных экосистемах радионуклидов, поступивших в биосферу с глобальными радиоактивными выпадениями и продуктами выбросов при аварии на ЧАЭС, а также более ограниченные сведения для зон воздействия других предприятий ЯТЦ показали, что радионуклиды включаются в биогеохимические циклы миграции. Последние процессы сопровождаются перераспределением радионуклидов в наземных и водных экосистемах с образованием зон их выноса и вторичного накопления в геохимических барьерах [12, 13]. Направленность, интенсивность и механизмы миграции радионуклидов определяются главным образом физико-химическими формами их поступления и, соответственно, нахождения в экосистемах, а также теми природными условиями, в которые они попадают: ландшафтно-геохимическими для наземных экосистем (типами почв и растительности, геоморфологической и гидрометеорологической обстановкой и т.д.) и физико-химическими свойствами воды, донных отложений и взвесей, а также гидрохимическим режимом и гидрологической обстановкой в водных экосистемах.

Изучение поведения радионуклидов в зоне гипергенеза имеет самостоятельное важное значение и с точки зрения геохимии радионуклидов - новых компонентов биосферы. Они отличаются от своих стабильных изотопов и элементов-аналогов источниками поступления, временем нахождения в экосистемах и крайне низкими концентрациями, а у трансурановых элементов стабильные изотопы в природной среде вообще отсутствуют. Между тем ранее было установлено, что радионуклиды характеризуются большей миграционной способностью, чем их стабильные изотопы и элементы-аналоги [14, 15].

Поэтому прежде, чем обсудить и известные из литературы данные по физико-химическим формам нахождения радионуклидов в окружающей среде, а также по динамике их миграции в конкретных зонах воздействия различных предприятий ЯТЦ, необходимо проанализировать имеющиеся данные по формам нахождения радионуклидов в выбросах различных источников радиоактивного загрязнения. Это объясняется тем, что одна и та же исследуемая зона может подвергаться загрязнению из различных источников.

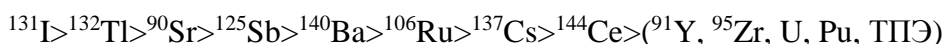
2.1.1.1. Формы нахождения радионуклидов в выбросах различных источников радиоактивного загрязнения окружающей среды.

Химическая форма радионуклидов в выбросах может меняться от слабо растворимых частиц окислов металлов до относительно легко растворимых неорганических солей и органических комплексов. В зависимости от этого процесс растворения химических соединений радионуклидов либо является скоростью-определяющей стадией миграции, либо в противоположном случае миграция полностью определяется физико-химическими и гидродинамическими свойствами среды и химическими свойствами самого радионуклида. Естественно, что первоначальная форма радионуклидов с течением времени становится все менее важным фактором. Под влиянием целого ряда процессов (химическое выветривание, эрозия, механическое воздействие, биологические процессы, радиолитические эффекты и др.) формы нахождения радионуклидов меняются, и меняется их поведение в окружающей среде. Например, установлено [16], что на месте ядерной аварии на атомной подводной лодке, произошедшей в 1985 г в бухте Чажма Японского моря, для миграции ^{60}Co первостепенное значение имеет его форма поступления в морскую среду. Первоначально это был трансформированный в момент ядерного взрыва конструкционный материал – сталь, предотвращающий быструю миграцию радионуклида. За 20 с лишним лет, подвергаясь гидролизу и всевозможным биогеохимическим преобразованиям, многократно меняя форму носителя, ^{60}Co мигрирует от источника (донные отложения) в другие места бухты как в растворённом (быстро), так и во взвешенном состоянии (медленно, в составе лёгкой тонкой взвеси поверхностного слоя донных осадков, которая подвержена многократному циклу оседания и взмучивания).

Глобальные выпадения – последствия проведенных ядерных испытаний

В начале 60-ых годов впервые возникла проблема «горячих» частиц, которые были обнаружены в атмосфере после проведения серий мощных экспериментальных ядерных взрывов. При взрывах в атмосфере радиоактивные частицы образуются в результате конденсации паров делящегося материала, продуктов деления и конструкционных материалов. Вещество таких частиц представляет собой смесь окислов железа, алюминия и ядерного горючего. Когда взрыв проводится непосредственно на поверхности земли, основой частиц являются силикатные минералы. При подземных взрывах с выбросом грунта образуются наиболее неустойчивые и растворимые частицы нескольких типов. При глобальных выпадениях, обусловленных воздушными взрывами, ^{90}Sr и ^{137}Cs поступают на земную поверхность преимущественно в подвижных и водорастворимых

формах. Тугоплавкие радионуклиды осаждаются, как правило, в нерастворимой форме. По способности переходить в раствор из частиц выпадений после подземного ядерного взрыва радионуклиды были расположены в следующий ряд [17]:



Предполагается, что плутоний в глобальных выпадениях находится в виде трудно-растворимых смешанных оксидов типа: $\text{PuO}_x \text{MO}_x$, $\text{PuO}_x \text{U}_3\text{O}_8$ (М –примеси металлов, пыли и продуктов конденсации парогазовой фазы) [18].

Радионуклиды – продукты радиационных аварий на Южном Урале в 1957 г. (ВУРС) и 1967 г.

В зоне воздействия ПО “Маяк” произошли две крупные аварии, различающиеся причинами их возникновения, масштабами и степенью загрязнения территории, радионуклидным и химическим составом продуктов выброса.

Причиной первой аварии, происшедшей 29 сентября 1957г явился химический взрыв емкости-хранилища радиоактивных отходов радиохимического производства [19]. Емкость в которой хранилось 70-80 тонн высокорadioактивных отходов преимущественно в виде нитратно-ацетатных соединений, была выполнена из нержавеющей стали с толщиной стенок около 15 мм и располагалась в отдельном железобетонном каньоне с толщиной стенок 0.8-1.3 м на глубине 7.4 м. Сверху каньон был прикрыт железобетонно плитой толщиной около 0.8 м. Поверх плиты была земляная насыпь толщиной 1-1.5 м. В результате нарушения температурного режима, вследствие выхода из строя системы охлаждения, произошел разогрев емкости, выпаривание воды и тепловой взрыв “остатка”. Масса конденсированных продуктов взрыва оценивается в 681.5 г на кг продуктов взрыва [20].

Радиоактивные вещества в виде жидкой пульпы в объеме 250-300 м³ были подняты на высоту 1-2 км. Поднятые в воздух продукты взрыва были представлены фрагментами сооружений, почвой, пылью, крупнодисперсными аэрозолями и радиоактивными веществами. В состав продуктов выброса помимо больших количеств солей натрия (326 г Na_2CO_3 , 154.3 г NaNO_3 , 96.5 г NaNO_2 на кг остатка) входили соли железа, хрома, кальция (3.7 г Fe_2O_3 , 11.7 г Cr_2O_3 и 1.0 г CaO на кг остатка) и других элементов.

Всего было выброшено 20 МКи радионуклидов, из них примерно 90% выпало на промплощадке, а 10% в виде радиоактивного облака рассеялось в окружающей среде. Осаждение радионуклидов из облака, перемещавшегося в северном направлении от

источника, обусловило образование Восточно-Уральского радиоактивного следа (ВУРС), захватившего Челябинскую, Свердловскую и Тюменскую области. Через 6-8 часов облако находилось на расстоянии 345 км, а формирование следа закончилось через 11 часов. Помимо короткоживущих радионуклидов циркония, церия, рутения, родия и др. основной вклад в продукты выброса вносили $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$ и ^{137}Cs . Поскольку основным радионуклидом в продуктах выброса был ^{90}Sr , то он был принят в качестве репера при оценке масштабов и плотности загрязнения почвы на ВУРСе. Так, общая площадь загрязнения, достоверно отличающаяся от фоновой, составляла примерно 15-23 тыс.км². Максимальная длина следа оценивается в 300 км при ширине 40-50 км; в границах плотности загрязнения - 2 Ки/км².

Вторая авария, носившая локальный характер, произошла в 1967г в результате ветрового разноса обнажившихся береговых отложений озера Карачай, расположенного в санитарно-защитной зоне [21]. В атмосферу было вовлечено $6 \cdot 10^5$ Ки радиоактивных веществ. След по сравнению с ВУРСом имел другой характер, захватил меньшую территорию и основная радиоактивность была обусловлена ^{137}Cs . Общая площадь следа в виде широкого пятна составила около 27000км² с плотностью загрязнения 0.3 Ки/км² по ^{137}Cs и 0.1 Ки/км² по ^{90}Sr .

В отличие от радионуклидов «глобальных» выпадений, на территорию ВУРС радионуклиды были выброшены преимущественно в виде растворимых нитратно-ацетатных соединений, которые осели на кронах деревьев, растительном покрове, почвах и открытых водоемах. Зонами накопления долгоживущих изотопов плутония, ^{90}Sr и ^{137}Cs в первые 2 года после аварии стали донные отложения водоемов и верхние горизонты почв (2 см) [22].

Сотрудниками ГЕОХИ РАН было установлено [23], что плотность загрязнения почв лесного и лугового биоценозов плутонием в 1980-1982 гг. вблизи места аварии на расстоянии около 4 км от эпицентра и 0.5-1 км от оси следа составляла 10.6-12.8 кБк/м² (1 Ки/км² = 37 кБк/м²). По мере удаления от оси следа на расстояние до 5-6 км и эпицентра до 3 км она снижается до 1.3 кБк/м², а на расстоянии около 9 км от оси и 2-4 км от места аварии до 520-670 Бк/м². Отношение $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ показывает, что загрязнение вблизи источника и на расстоянии (9 км) от него превышает глобальный фон на 2-3 порядка и в 4-9 раз соответственно. В почвах на расстоянии 0.5 км в юго-западном направлении от озера Бердемин площадь загрязнения изотопами плутония-239,240 и америция-241 составляла 17 и 11 кБк/м², на расстоянии в 5 км в северо-западном направлении – 12 и 5.9 кБк/м², что на 3 порядка ниже плотности загрязнения стронцием-90 и на 2 порядка ниже плотности загрязнения цезием-137. На расстоянии 15-20 км северо-восточнее от места аварии

плотность загрязнения плутонием составляет 10-20 кБк/м²; отношение $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu} - 0.011 \pm 0.002$.

Содержание плутония в луговых растениях составляло 9.7 Бк/кг воздушно-сухой массы; в растениях по пологом леса – 0.2 Бк/кг; в прошлогоднем опаде – 2.1 – 4.8 Бк/кг или 1.9-2.0 Бк/м². Отношение концентраций плутония в луговых растениях и почве составляло $4.5 \cdot 10^{-3}$, под пологом леса – $1.9 \cdot 10^{-4}$; в опаде и почве в двух разрезах чернозема выщелоченного под лесом – $3.6 \cdot 10^{-3}$ и $3.1 \cdot 10^{-3}$ (разрезы были расположены на расстоянии нескольких метров).

Поступая на земную поверхность плутоний аналогично другим искусственным радионуклидам мигрирует по почвенному профилю. Тем не менее, как показали результаты радиоэкологического мониторинга зоны ВУРС основная часть плутония продолжает оставаться в 0-10 см слое в дернине, подстилке и верхней части гумусового горизонта, если первые две маломощные. При этом его количество максимально в выщелоченном горизонте под разнотравной растительностью, минимально – в гидроморфной лугово-черноземной почве. При этом можно отметить близкое относительное распределение всех радионуклидов по горизонтам 0-10 см почвенного профиля. Различия между ними проявляются лишь в самом верхнем 0-2 см слое, который обеднен по цезию-137 и стронцию-90.

Поступление радионуклидов, в том числе и трансурановых элементов, в подвижных формах способствовало развитию научных исследований, проводимых на территории ВУРСа, по влиянию типа почв и их генетического строения на распределение плутония в отдельных почвенных профилях. Так, в выщелоченном горизонте лесного и лугового биоценозов плутоний задерживается в подстилке и дернине, и концентрация его вниз по профилю изменяется более плавно, чем в лугово-черноземной и, особенно, серой лесной почве под березовым лесом паркового типа. В последней четко проявляются вынос из элювиального горизонта и накопление в гумусовом и иллювиальном горизонтах. В лугово-черноземной почве наряду с более «размытым» характером распределения плутония в профиле также наблюдается увеличение содержания в нижней части перегнойного горизонта, обусловленное неровной границей перехода в нижележащий иллювиальный горизонт В (подтеками). В этой же почве плутоний обнаружен на глубине 45 см (0.3 Бк/кг), что объясняется ее гидроморфностью и повышенным содержанием карбонатов.

Газо-аэрозольные выбросы предприятий ЯТЦ

Основная опасность газо-аэрозольных радиоактивных выбросов предприятий ЯТЦ состоит в высокой растворимости их радиоактивных компонентов (летучие соединения радиостронция и радиоцезия, ^{131}I , изотопы инертных газов). Основными источниками загрязнения атмосферного воздуха плутонием являются регламентные технологические выбросы, аварийные ситуации и ветровой подъем пыли с подстилающей поверхности на промышленных площадках санитарно-защитных зон. С радиологической и радиобиологической точек зрения важно не суммарное содержание этого элемента в приземном воздухе, а распределение его по аэрозолям разного размера. Известно, что основным путем поступления плутония в организм человека является ингаляционный, но при этом аэрозоли разного размера неодинаково задерживаются легкими. Кроме того частицы разного размера различаются по своей растворимости. Например, растворимость плутония в дистиллированной воде из частиц размером меньше 10 мкм составляет 8%, а из частиц размером больше 10 мкм – только около 1% [24]. Растворимость плутония в воде зависит от состава частиц и возрастает от 0.1 % для PuO_2 до 28.7 % при увеличении содержания в частицах натрия и урана (соотношение в частице $\text{Na}(\text{PuU})\text{O}_2$ составляет 13:5:1) [25]. В биологические жидкости желудочно-кишечного тракта из частиц 0.7, 1.7 и 2.7 мкм переходит 22, 6 и 3 % плутония, заметной разницы между моно- и полидисперсными частицами не выявлено. Установлено, что растворение в биологических жидкостях (растворах, имитирующих сыворотку крови и 0.1 моль/л соляной кислоте) вначале протекает с высокой скоростью, а затем замедляется, что указывает на разные формы нахождения и состав соединений в аэрозольных частицах [26].

Авария на Чернобыльской АЭС

Катастрофическая авария на ЧАЭС 26 апреля 1986 года привела к выбросу в окружающую среду радионуклидов в наиболее сложных и разнообразных по составу формах [27]. Это объясняется тем, что эти радиоактивные выбросы представляли растянутый во времени процесс, состоящий из нескольких стадий и сопровождавшийся сложными физико-химическими превращениями, в которых участвовали реакторные топливо и графит, конструкционные материалы, материалы засыпки и пр. Начиная с момента аварии, образовался вертикальный аэрозольно-газовый транспортный канал (Табл. 2) [28]. По мере удаления от реактора в этом транспортном канале изменялись температура, газовый состав, плотность потока и фазовое распределение радионуклидов. Радиоактивные выпадения на землю были представлены двумя компонентами –

топливной и конденсационной. Загрязнения конденсационной компонентой характерно для территорий дальних следов выброса. Эти выпадения по физико-химическим свойствам, прежде всего по растворимости, имеют сходство с «глобальными» выпадениями радионуклидов. Территория ближних следов выброса характеризуется наличием обоих компонент. Широко используемый термин «топливная компонента» включает в себя как сами топливные частицы, состоящие, в основном из оксидов урана, так и техногенные новообразования широкого спектра, в которых облученное топливо является лишь примесью к цирконевой, графитовой или силикатной матрице. Именно наличие плотных (8-10 г/см²), малорастворимых частиц с высокой удельной радиоактивностью является характерной чертой радиоактивных выпадений в результате аварии на ЧАЭС. Они существенно осложняют проведение радиохимического анализа объектов окружающей среды на формы нахождения радионуклидов, так как значительно отличаются по вкладу в общую радиоактивность исследуемого объекта и по растворимости, по сравнению, с конденсационной компонентой загрязнений.

Таблица 2. Доля радионуклидов, выброшенных в окружающую среду при аварии 4-го блока ЧАЭС.

Радионуклид	Выброс, %	Активность, ПБк
РБГ (Ar, Ru, Xe)	90	24 000
¹³¹ I	80	2 600
⁹⁰ Sr	10	38
¹⁰⁶ Ru	3	84
¹³⁴ Cs	15	120
¹³⁷ Cs	15	83
¹⁴⁴ Ce	0.3	14
²⁴¹ Pu	0.3	1.7
⁹⁵ Zr + ⁹⁵ Nb	0.3	30

Источники поступления радионуклидов в морскую среду.

Распространение радионуклидов (в частности, плутония) в окружающей среде на большие расстояния происходит главным образом водным путем – со стоками рек, протекающих по загрязненным территориям, с морскими течениями и грунтовыми водами, находящимися в контакте с загрязненными почвами. В сравнении с этим роль воздушного переноса с аэрозолями и золовой взвесью относительно невелика. Радиоактивное загрязнение арктических вод представляет особый интерес ввиду бывшего активного использования этих территорий для испытаний ядерного оружия, деятельности

предприятий ядерного топливного цикла (ЯТЦ), включая утилизацию радиоактивных отходов, а также доступности этих вод для европейских морских течений.

Основными причинами поступления искусственных радионуклидов в российские арктические моря являются ядерные испытания на архипелаге Новая Земля, дампинг твердых и жидких радиоактивных отходов в Карском и Баренцевом морях, деятельность Северного военно-морского флота и обслуживающих предприятий, деятельность российских и европейских радиохимических заводов, а также импульсные выбросы радионуклидов вследствие аварий на АЭС (такие, как Чернобыльская АЭС).

Северный полигон для испытаний ядерного оружия на архипелаге Новая Земля функционировал с 1954 по 1963 г.г. На **Рис. 6** показана карта полигона Новая Земля с тремя выделенными зонами ядерных испытаний [29]: 1 – зона проведения подводных, надводных (1955 – 1962 гг.), наземных (1957 г.) и подземных (1972 – 1975 гг.) ядерных взрывов, 2 – зона проведения подземных испытаний (1964 – 1990 гг.), 3 – зона проведения воздушных ядерных испытаний (1957 – 1962 гг.) [30]. В сумме на полигоне Новая земля было произведено 87 взрывов в атмосфере, 3 – под водой и 42 взрыва под землей [31]. После прекращения испытаний ядерного оружия в атмосфере, на суше и под водой интенсивность поступления радионуклидов на поверхность земли снизилась и обуславливалась поступлением из стратосферных запасов, накопленных в период 1954 – 1963 гг. (или глобальными выпадениями).

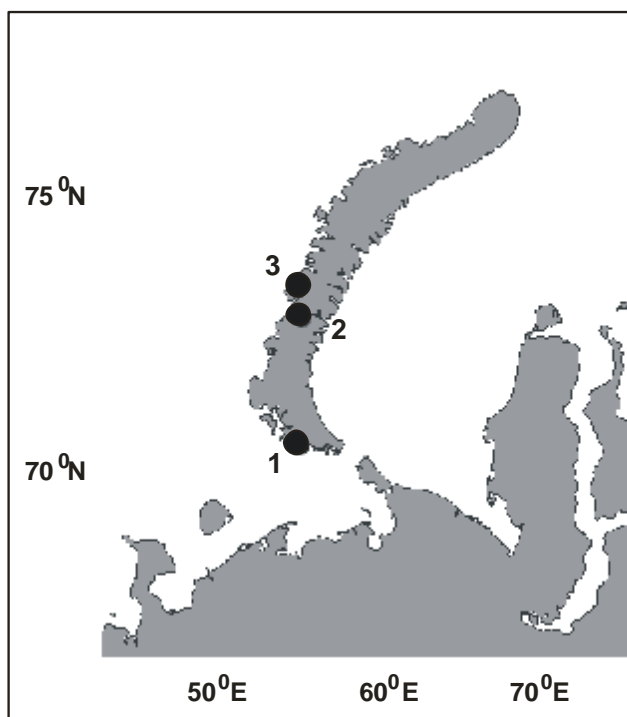


Рис. 6. Места проведения ядерных взрывов на Новоземельском полигоне: 1 – губа Черная, 2 – пролив Маточкин шар, 3 – губа Митошиха.

Глобальные выпадения вызвали меньшее локальное загрязнение, нежели наземные или подводные ядерные взрывы, так воздушные взрывы осуществлялись на достаточно большой высоте (3 – 4 км). В результате же подводных ядерных взрывов в губе Черная локальное заражение местности оказалось очень высоким. По данным Смита и др. концентрации радионуклидов в донных осадках в губе Черная составляли: 15000 Бк/кг $^{239,240}\text{Pu}$, 250 Бк/кг ^{137}Cs , 100 Бк/кг ^{60}Co , а общий запас $^{239,240}\text{Pu}$ в донных осадках составил 11 ТБк [32].

Ввиду особенностей строения морского дна в районе проведения подводных испытаний (вдоль архипелага протягивается желоб), вынос радионуклидов за пределы загрязненной зоны относительно органичен. Напротив, продукты воздушных взрывов выносятся в стратосферу и переносятся на большие расстояния, являясь причиной глобального радиоактивного загрязнения во всем Северном полушарии. Поскольку стратосферные накопления перераспределяются в течение длительного времени, их радионуклидный состав определяется в основном долгоживущими радиоактивными изотопами, главным образом, ^{137}Cs , ^{90}Sr , $^{239,240}\text{Pu}$, ^{238}Pu . Максимум глобальных выпадений, основанный на данных по ^{90}Sr приходился на 1963 г. [33].

Прибрежная часть континентальной Арктики, на которую выпадали радионуклиды от воздушных и подземных взрывов на Новой Земле, также являются источником радиоактивного загрязнения. Через речную сеть Западной и Восточной Сибири (Обь, Енисей, Лена) они транспортируются в моря Арктики и депонируются в донные отложения. Области радиоактивного загрязнения также были найдены на Кольском полуострове, островах Печорского моря, на земле Франца-Иосифа и полуострове Ямал [34]. Таким образом, Новая земля является действующим по сей день источником техногенных радионуклидов.

Опасность представляют захороненные в период с конца 50-х годов до 1992 г. в Карском и Баренцевом морях жидкие (суммарной активностью 0.75 ПБк) и твердые (суммарной активностью 83.6 ПБк) радиоактивные отходы. В Карском море захоронено семнадцать ядерных реакторов – семь из них содержат отработавшее ядерное топливо (ОЯТ), включая экранную сборку атомного ледокола «Ленин» с частично выгруженным топливом (**Рис. 7**). Жидкие РАО захоранивались в Баренцевом море с координатами от 74° до 78° с.ш. и от 48° до 52° в.д.

По данным Российско-Норвежской экспедиции в Фиорды Абросимова и Степового с помощью подводной видеосъемки было обнаружено, что стенки контейнеров с РАО корродировали и имеют дыры [35]. Повышенные концентрации ^{137}Cs в донных осадках

вблизи затопленных объектов (до 2000 Бк/кг), а также наличие в некоторых пробах ^{60}Co (продукта активации материала контейнеров), свидетельствует о выщелачивании радионуклидов через поврежденные стенки контейнеров.

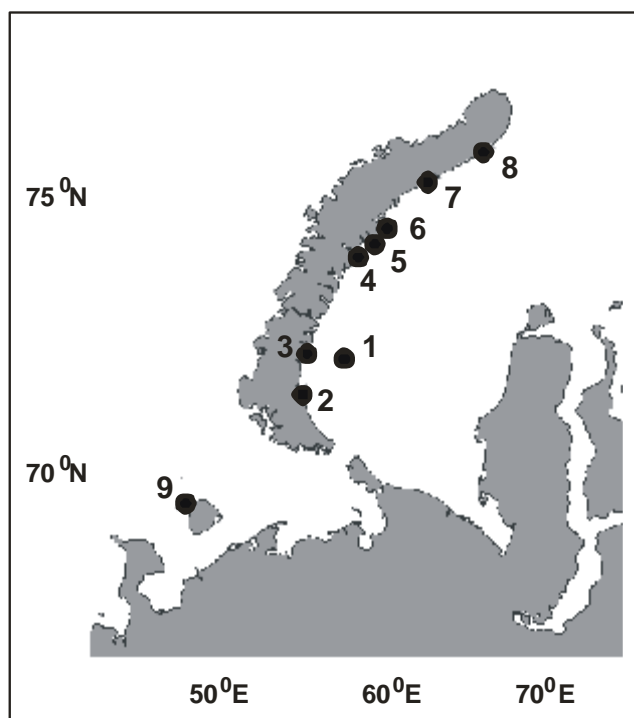


Рис. 7. Карта расположения мест захоронения РАО в Карском и Баренцевом морях: 1 – Новоземельская впадина, 2 – залив Абросимова, 3 – залив Степового, 4 – залив Цивольки, 5 – залив Ога, 6 – залив Седова, 7 – залив Благополучия, 8 – залив Течений, 9 – о. Колгуев.

Кроме того в Японском море в 1971 и 1979 годах были затоплены 4 ядерных реактора без ОЯТ, демонтируемые с атомных подводных лодок, суммарной активностью $4 \cdot 10^{14}$ Бк. Вследствие процессов радиоактивного распада активность РАО, затопленных в Карском море уменьшилась к настоящему времени до $4 \cdot 10^{15}$ Бк, а в Японском море – до $7 \cdot 10^{13}$ Бк.

Подробно источники радиоактивного загрязнения Карского моря рассмотрены в работе [1, 29, 36].

Карачаевский ореол загрязнения подземных вод

Основным источником радиоактивного загрязнения природной среды на территории Российской Федерации в настоящее время является ФГУП ПО Маяк [37]. Комплекс основных производств ПО Маяк, его площадь, площади санитарно-защитной зоны и зоны наблюдения, обращение с радиоактивными отходами, а также история

развития первого советского производства оружейного плутония изложены в работах [38, 39].

Сброс жидких радиоактивных отходов на производстве в 1949-1951 гг производился в реку Теча, являющейся частью речной системы Исеть-Тобол-Иртыш-Обь. Радиоактивные отходы поступали сначала в естественный Кошкарровский пруд (В-3), из которого они поступали в следующий по течению естественный Метлинский пруд (В-4) [40]. Время нахождения в этих прудах-отстойниках составляло несколько суток, в течении которых значительная часть короткоживущих радионуклидов распадалась, а долгоживущие сорбировались на взвешях и донных отложениях. По сделанным оценкам на дно водоемов, донные отложения которых представляют собой смесь глинистых минералов, ила и песка разного гранулометрического состава, может осесть до 80-90 % от всей сброшенной радиоактивности. В ноябре 1951 г основную часть радиоактивных отходов начали сбрасывать в оз. Карачай. Для уменьшения степени загрязнения р. Теча и локализации загрязненных территорий в верхнем ее течении в 1950-1960 гг была создана сложная система гидротехнических сооружений, состоящих из каскада промышленных водоемов-хранилищ низкоактивных отходов и обводненных каналов. Сооружение водоема В-10 ниже плотины водоема В-4 было закончено в 1956 г. Заполнение водоема В-11-в 1966 г. позволило на 1-2 порядка снизить запас радионуклидов в пойменных почвах на среднем и нижнем участках р. Теча по сравнению с ее верхним участком. После окончания создания каскада водоемов началом р. Теча стало не озеро Иртыш, а ее часть ниже плотины водоема В-11.

За все время эксплуатации В-9 (с 1951 г.) в него сброшено около 550 млн. Ки коротко- и долгоживущих радионуклидов. Сбросы продолжаются по настоящее время [41].

Отходы, сбрасываемые в водоем В-9 (оз. Карачай, ФГУП ПО Маяк) с радиохимических предприятий, состоят из слегка щелочного (рН 7.9-9.3) рассола NaNO_3 . Содержание солей в рассоле колеблется в пределах 16-145 г/л, плотность рассола 1.006-1.095 г/см³. Основные компоненты растворенных солей в мг/л: нитраты (NO_3^-), 11-78; ацетаты (CH_3COO^-), 0.6-20; оксалаты ($\text{C}_2\text{O}_4^{2-}$), 0.9-14; сульфаты (SO_4^{2-}), 0.12-1.3; и Na, 6-32. Концентрации вторичных компонентов в мг/л: Cl, 20-350; U, 13-196; Ca, 8-80; и Mg, 8-69 [42].

Химический и радионуклидный состав воды в различных частях водоема несколько неоднороден из-за мероприятий по его ликвидации. Кроме того уровень воды в водоеме колеблется в зависимости от количества осадков. Плутоний и трансплутониевые элементы в воде на 80-90% связаны со взвешенным веществом (**Рис. 8**). Однако основное

количество плутония и трансплутониевых элементов (99%) находится в донных отложениях и является потенциальным источником загрязнения грунтовых вод (Табл. 3). Так, по данным работы [43], 65-80% радиостронция, 15-30% радиоцезия, 25% изотопов урана и до 15% трансурановых элементов (без нептуния) находится в илах в подвижной и растворимой формах.

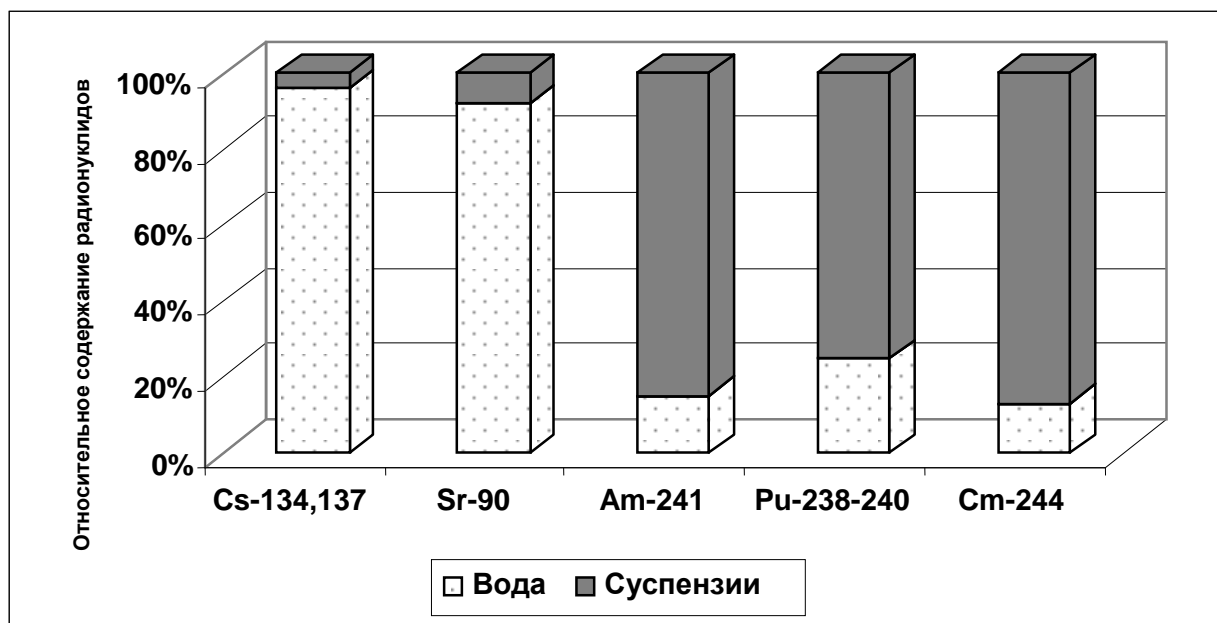


Рис. 8. Распределение радионуклидов между водой и взвешенным веществом в оз. Карачай

Таблица 4. Содержание радионуклидов в воде и донных отложениях оз. Карачай

Компоненты	Sr-90, Ки (%)	Cs-137, Ки (%)	U, кг (%)	Pu+Am+Cm, Ки (%)
Вода и взвешенное вещество	$1.1 \cdot 10^6$ (9)	$1.6 \cdot 10^6$ (13)	7 000 (44)	$7.0 \cdot 10^3$ (1)
Донные отложения	$10.8 \cdot 10^6$ (91)	$8.5 \cdot 10^6$ (87)	8 900 (56)	$8.0 \cdot 10^5$ (99)
Всего, Ки	$1.2 \cdot 10^6$	$1.2 \cdot 10^7$	~16000	$8.0 \cdot 10^5$

Формы радионуклидов в РАО, закачиваемых в глубинные подземные формации

Источником радиоактивного загрязнения природной среды Томской области в течении последних сорока лет является крупнейший среди предприятий ЯТЦ Сибирский химический комбинат (ФГУП СХК). СХК включает в себя целый ряд заводов и институтов. Описание отдельных производств, потенциально опасных для населения и

окружающей среды, представлено в работе [44]. На территории СХК расположено 50 хранилищ ЖРО, в том числе два полигона подземного захоронения, являющиеся потенциально опасными.

В период деятельности СХК на нем произошло более 30 аварийных инцидентов, включая аварию 6 апреля 1993 года, которая относится к третьему уровню по международной шкале событий на атомных станциях и квалифицируются как серьезные происшествия [45].

Захоронение ЖРО в глубокозалегающие пласты-коллекторы было впервые осуществлено на СХК в 1963 году. Отходы, направляемые на захоронение в глубинное хранилище, существенно отличаются по составу от природных вод. Среди них по химическим и радиохимическим характеристикам можно выделить [46]:

- кислые технологические отходы, которые содержат уксусную кислоту (10-20 г/л), нитрат натрия (90-140 г/л), растворенные продукты коррозии: Cr, Fe, Ni, Al (суммарное содержание 2 г/л), незначительные количества фосфорсодержащих соединений и кремния, в виде ортокремневой кислоты; растворы имеют pH около 2-3; в них присутствуют продукты деления: ^{90}Sr , $^{134+137}\text{Cs}$, ^{106}Ru , ^{95}Zr , ^{95}Nb , ^{144}Ce , уран и трансурановые элементы: ^{239}Pu , ^{241}Am и ^{237}Np ;
- щелочные технологические отходы, которые содержат 5-15 г/л NaOH и представляют собой нитратно-натриевые растворы со средней минерализацией 150 г/л, в них присутствуют: карбонаты, сульфаты, а также алюминаты натрия; радионуклидный состав отходов представлен продуктами деления: ^{90}Sr , $^{134+137}\text{Cs}$, ^{106}Ru , ^{95}Zr , ^{95}Nb ; плутоний находится в следовых количествах;
- слабощелочные (pH 8,0-10,5) нетехнологические отходы, с суммарным солесодержанием до 30 г/л; катионный состав определяется натрием, аммонием и щелочноземельными металлами, анионный - нитратом, сульфатом, хлоридом и бикарбонатом;
- нейтральные нетехнологические отходы, с суммарным содержанием солей менее 1 г/л (нитрат, сульфат, хлорид, бикарбонат натрия).

Значительные отличия составов удаляемых растворов и природных подземных вод приводят к различным процессам взаимодействия в системе: жидкие РАО - природная вода - порода. Кроме того, интенсивность техногенных геохимических процессов в этой системе неравномерная.

Отходы, удаляемые в глубокие хранилища, представляют собой многокомпонентные системы, содержащие кислоты или щелочи, соли, а также комплексообразующие реагенты. В таких сложных системах радионуклиды могут присутствовать в виде простых и комплексных ионов, находиться в гидролизованных, коллоидных или псевдоколлоидных формах.

Горячие частицы 1-го и 2-го рода в донных отложениях и пойменных почвах реки Енисей

Одним из слабо изученных, но, возможно, одним из значимых путей миграции радионуклидов, включая ТУЭ, является миграция радионуклидов в составе "горячих" частиц 1-го и 2-го рода. Подобная классификация введена специалистами ФГУП НПО «Радиевый институт» для отличия очень высокоактивных (до 10^7 Бк/частицу), но мало распространенных "горячих" частиц 1-го рода от существенно менее активных, но зато гораздо более распространенных "горячих" частиц 2-го рода [47].

Первые сведения об обнаружении в пойме реки Енисей "горячих" частиц, удельная активность которых составляла миллионы беккерелей на частицу («горячие» частицы 1-го рода по указанной классификации) датированы 1994 г. Эти частицы были найдены сотрудниками ГЕОХИ РАН в пойменных почвах острова Городской (340 км вниз по реке от местоположения ГХК). Линейные размеры частиц составляют 100 - 700 мкм [48].

Хотя основная активность "горячих" частиц 1-го рода обусловлена цезием-137, в их составе обнаружены также америций и изотопы плутония. Авторы работы [49] высказали предположение о реакторном происхождении "горячих" частиц 1-го рода.

Впервые «горячие» частицы 2-го рода были обнаружены в конце 1999 г. в пойменных почвах острова Атамановский [50]. Эти частицы были обнаружены при специальном гамма-спектрометрическом изучении в стационарных условиях радионуклидного состава аномально загрязненных образцов пойменных почв, отобранных в фронтальной (приверх) и тыльной (ухвостье) частях острова Атамановский. Изучались образцы, отобранные в поверхностном слое и вертикальных разрезах (вплоть до 0,5 м) этих почв.

Для отделения «горячих» частиц 2-го рода от основной массы исследуемых проб почвы применялся метод последовательного квартования.

Выполненные исследования показали, что "горячие" частицы 2-го рода отличаются от «горячих» частиц 1-го рода по следующим основным параметрам:

❖ Распространенность. «Горячие» частицы 2-го рода распространены в пойме реки Енисей несравненно более широко, чем "горячие" частицы 1-го рода. Так, по оценкам сотрудников ФГУП РИ распространенность «горячих» частиц 2-го рода составляет порядка 10^9 - 10^{10} частиц/км², в то время как распространенность "горячих" частиц 1-го рода - порядка 100 частиц/км².

❖ Радионуклидный состав. В отличие от «горячих» частиц 1-го рода, в радионуклидном составе которых доминирующим радионуклидом является ¹³⁷Cs, «горячие» частицы 2-го рода, как правило, характеризуются более широким радионуклидным составом. Так, например, в составе «горячих» частиц 2-го рода можно выделить группу «мононуклидных» частиц, исходя из обогащенности их одним каким-либо радионуклидом (например, ¹³⁷Cs или ²⁴¹Am, ⁶⁰Co или ¹⁵²Eu и т.п.), а также группу «полинуклидных» частиц, обогащенных сочетанием нескольких радионуклидов (например, ¹³⁷Cs + ²⁴¹Am, или ²⁴¹Am + ¹⁵²Eu, или ⁶⁰Co + ¹⁵²Eu, и т.п.).

❖ Удельная активность. Хотя удельная активность «горячих» частиц 2-го рода на 4-6 порядков величины превышает среднюю удельную активность частиц вмещающей их почвы, она на 2-3 порядка величины ниже удельной активности «горячих» частиц 1-го рода.

❖ Вклад в общую удельную активность пойменных почв. Установлено, что вклад радионуклидов, входящих в состав «горячих» частиц 2-го рода, в величину общей активности исследованных пойменных почв составляет свыше 50% от общей активности пробы, а для некоторых радионуклидов (например, ²⁴¹Am) приближается даже к 100%.

❖ Распределение в вертикальном разрезе пойменных почв. Если «горячие» частицы 1-го рода находили, в основном, в поверхностных горизонтах пойменных почв, то «горячие» частицы 2-го рода обнаружены практически во всех горизонтах исследованных разрезов пойменных почв. Этот факт можно расценивать как аргумент в пользу предположения о поступлении частиц 2-го рода со сбросными и дренажными водами ГХК в течение периода его эксплуатации.

❖ Размеры. Если для «горячих» частиц 1-го рода характерны линейные размеры порядка 100-700 микрометров [51], то линейные размеры «горячих» частиц 2-го рода существенно меньше. По предварительным оценкам линейные размеры этих частиц укладываются, в основном, в область 10 - 100 микрометров.

❖ Генезис. Судя по радионуклидному составу, «горячие» частицы 2-го рода, как и «горячие» частицы 1-го рода, поставляются в реку Енисей в составе сбросных

вод ГХК. Не исключена возможность их поступления с водосборной площади реки Енисей из зоны радиологического воздействия ГХК.

Таким образом представляется, что миграция радионуклидов в реке Енисей в составе "горячих" частиц 1-го и 2-го рода может явиться одним из весьма значимых, своеобразных и еще не исследованных путей переноса актинидов в водных экосистемах.

2.1.1.2. Влияние свойств среды, подвергшейся радиоактивному загрязнению, на изменение форм нахождения радионуклидов и их миграцию

Поверхностные и подземные природные воды

При попадании радионуклидов в гидросферу первоначальные формы их нахождения изменяются наиболее быстро. Наиболее эффективное перераспределение форм происходит в морской среде за счет высокого солевого воздействия.

В поверхностных водоемах большую роль в перераспределении форм играет также наличие органических веществ. Причем последние могут образовывать как растворимые, так и нерастворимые формы.

Существенную роль в процессах миграции радионуклидов в поверхностных водных экосистемах играет гидродинамический режим водоемов и, особенно, рек. Так нами установлено [52], что содержание радионуклидов в донных отложениях водоема В-10 Теченского каскада промышленных водоемов (ФГУП ПО Маяк) снижается от русла к периферии (**Рис. 9**). Выявленный характер пространственного распределения радионуклидов в донных отложениях по акватории водоемов, можно объяснить тем, что в первые годы (1949-1956) при сбросе жидких отходов разной активности непосредственно в реку Теча происходило сильное загрязнение ее русла и поймы в результате сорбции радионуклидов донными отложениями. При образовании водоемов они заполнялись водой, также содержащей радионуклиды, но в меньших количествах. В дальнейшем происходило перераспределение радионуклидов между водой и донными отложениями с последующим переносом последних под действием придонных течений, образование озерных осадков, миграция радионуклидов по глубине и другие процессы, протекающие и по настоящий период.

Еще более внушительное влияние гидродинамического режима было установлено для реки Енисей, где слабо растворимые и малоподвижные горячие частицы размером в несколько сот микрометров были обнаружены на значительном расстоянии (60-350 км) от ФГУП ГХК [53].

В системы грунтовых вод радионуклиды попадают в результате инфильтрации через донные отложения водоемов в уже растворенных формах, а при глубинной закачке

радиоактивных отходов в пласты-коллекторы перераспределение форм может сопровождаться образованием новых твердых фаз, включающих радионуклиды или даже являющихся их соединениями. Причем, образование последних существенно зависит от свойств среды (рН, Eh, концентрация CO₂ и др.). Для описания миграции радионуклидов, имеющих несколько устойчивых состояний окисления, в подземной среде необходимо учитывать ее восстановительные свойства и роль микробиологических процессов.

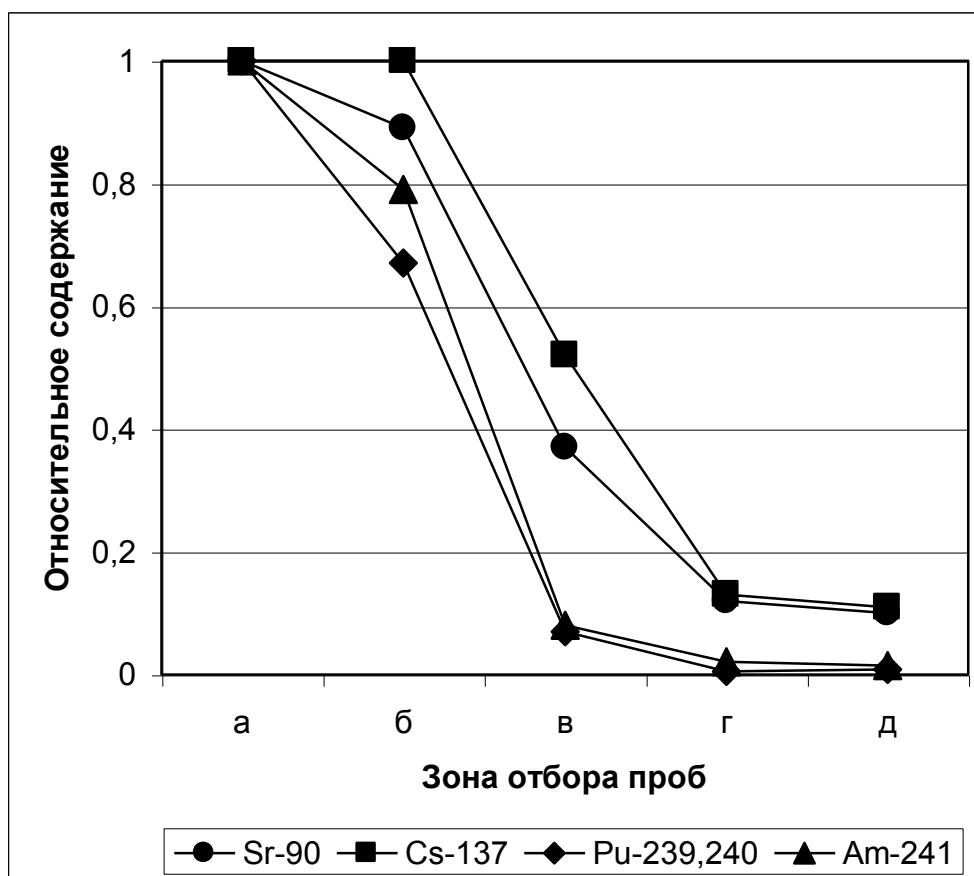


Рис. 9. Относительное содержание радионуклидов в 0-3 см слое донных отложений на ключевых участках в водоеме В-10 (за единицу принята их концентрация в этом же слое в русле): а -русло, б - бывшая пойма, в-д - затопленные территории в направлении от русла к периферии.

Почвенные воды

Независимо от источника поступления основным депо радионуклидов в наземных экосистемах является почва. Содержание радионуклидов в растительности и подстилке обычно составляет менее 10% от суммарной активности. Однако бывают исключения, например, плутоний иногда накапливается лишайниками (до 30% от суммарной

активности в биогеоценозе), нептуний хорошо накапливается всеми видами водной и наземной растительности. Динамика изменения форм зависит от генетического строения почв, их среднегодовой увлажненности и интенсивности возможного включения в севооборот. В растворимые формы радионуклиды в природных условиях переходят под воздействием продуктов метаболизма и разложения остатков растений и микроорганизмов. Известно, что в продуктах разложения корней травянистых растений низкомолекулярные кислоты на 80-90% представлены солями щавелевой кислоты и на 10-20% - лимонной и фумаровой. Перераспределение форм плутония в почвах происходит достаточно быстро (менее 5 суток [54]). Для некоторых радионуклидов (нептуний, технеций) характерно более длительное изменение форм нахождения в окружающей среде.

2.1.1.3. Влияние химического воздействия техногенных веществ, содержащихся в нерадиоактивных сбросных водах и радиоактивных отходах, на изменение форм нахождения радионуклидов:

На изменение форм нахождения радионуклидов после попадания в окружающую среду влияют также сбросы нерадиоактивных отходов. В первую очередь это касается водоемов-накопителей РАО и пластовых вод, в которые закачивают РАО.

Влияние химических элементов, образующих вторичные твердые фазы и коллоиды (Fe, Al, Mn, Ti)

Многие химические элементы, находящиеся в ЖРО или сбрасываемые отдельно от ЖРО в водоемы-накопители или подземные воды, оказывают существенное влияние на изменение форм нахождения радионуклидов. Происходит это потому, что при разбавлении ЖРО природной водой формы нахождения этих элементов претерпевают значительные изменения по сравнению с исходным раствором ЖРО. В первую очередь к таким элементам относится железо, содержание солей которого в ЖРО может быть очень велико (до нескольких десятков мг/л). По мере разбавления природной водой железо образует аморфные гидроксиды и оксиды (гетит, гематит, магнетит), являющиеся эффективными коллекторами актинидов в состоянии окисления +3 и +4. Кроме того двухвалентное железо, находящиеся в природной воде в значительных количествах может окисляться техногенными нитратами и образовывать аморфные соединения типа ферригидрита, также являющегося эффективным коллектором радионуклидов.

Влияние комплексообразующих веществ и ПАВ

В водоемы-накопители РАО попадают также отходы спецрабочих, содержащие значительные количества комплексообразующих веществ и ПАВ. Кроме того в самих

отходах находятся соли ЭДТА и органических веществ (ТБФ, ТОФО, Д2ЭГФК, амины и т.д.). Все эти вещества могут значительно повышать содержание растворимых форм радионуклидов.

Влияние реагентов, влияющих на кислотность и окислительно-восстановительные свойства среды

В подземные хранилища удаляют разные типы отходов. Кислые радиоактивные отходы удаляют в периодическом режиме. Время одного этапа нагнетания составляет 100-150 часов. В течение года проводят 2-3 этапа. Между этими этапами отходы в скважину не поступают. Этап захоронения кислых растворов осуществляется в три стадии: в начале удаляются азотнокислые растворы (корректирующие), затем уксуснокислые отходы (технологические) и, в заключении, снова азотнокислые растворы (оттесняющие). Такая динамика удаления отходов предопределяет возможность образования в пласте-коллекторе участков, насыщенных как собственно азотнокислыми и уксуснокислыми растворами, так и их смесью.

Кислые растворы (оттесняющие и корректирующие) содержат азотную кислоту (6-7 г/л), нитрат натрия, продукты деления ^{90}Sr , ^{137}Cs . Технологические отходы содержат уксусную кислоту (10-20 г/л), нитрат натрия (90-140 г/л), растворенные продукты коррозии: хром, железо, никель и алюминий (суммарное содержание ~ 2 г/л), незначительные количества фосфорсодержащих соединений и кремния; растворы имеют рН 2-3. Таким образом отходы содержат значительные количества нитрит-ионов, что может изменять окислительно-восстановительные условия среды, в которую они попадают. Это особенно важно для актинидных элементов, состояние окисления которых определяет динамику и формы их миграции.

2.1.1.4. Заключение

Изложенные выше данные по формам поступления радионуклидов в окружающую среду и возможных процессах перераспределения этих форм показывают, что при моделировании процессов радиационного загрязнения необходимо знать не только подробный радионуклидный состав всех имеющихся выбросов, но и их химический состав, а также состав возможных нерадиоактивных выбросов в исследуемой зоне. Формы нахождения радионуклидов в выбросах могут изменяться от трудно-растворимых (продукты глобальных выпадений, горячие частицы) до легкорастворимых (ВУРС, Карачаевский ореол загрязнения). В первом случае свойства загрязненной среды могут играть относительно меньшую роль в процессах перераспределения, миграции и накопления радионуклидов в различных компонентах экосистем (за исключением

экстремально высокого гидрохимического и химического воздействия среды - морские и речные экосистемы). Во втором случае геохимические свойства среды, в которую попадают радионуклиды, играют важнейшую роль.

2.1.2. Закономерности миграции и концентрирования радионуклидов в природных и антропогенных ландшафтах, поверхностных и подземных водах

Процессы перераспределения и изменения форм нахождения радионуклидов (а следовательно и динамика их миграции) происходят не только сразу после попадания радиоактивных выбросов в окружающую среду, но и в процессе миграции. Последнее может быть связано с изменением условий среды миграции (например, по мере разбавления сильнозагрязненных сбросных вод природными), со снижением концентрации радионуклидов (по мере их сорбции и соосаждения микроминералах почв или вмещающих пород) или с изменением форм нахождения носителей (растворением матриц топливных частиц). Так как эти процессы многофакторные и сложные, рассмотрим данные по формам нахождения и динамики миграции радионуклидов в конкретных экосистемах, подвергшихся радиоактивному загрязнению.

2.1.2.1. Миграция радионуклидов «глобальных» выпадений в поверхностных ландшафтах

Изучение форм нахождения радионуклидов, попавших в атмосферу после проведения ядерных взрывов, является достаточно сложной задачей из-за низкого весового содержания радионуклидов, находящихся в состоянии значительного рассеяния (за исключением полигонов испытания ядерного оружия). Поэтому обычно определяют соотношение между растворимыми и слаборастворимыми формами по упрощенной схеме анализа. Так нами было установлено, что по содержанию в нерастворимом состоянии в выпадениях радионуклиды располагаются в ряд: $^{137}\text{Cs} > ^{239}\text{Pu} > ^{144}\text{Ce} > ^{90}\text{Sr}$. Содержание водорастворимых форм радиостронция в дерново-подзолистой почве достигает 40%, плутония – менее 1 %. В целинных почвах с ненарушенной структурой большая часть плутония сосредоточена в верхних горизонтах [0-5(15)см]. В перегнойном горизонте (0-5 см) с высоким содержанием гумуса было сосредоточено до 96% Pu, а в подзолистом - 72%. Глубина и скорость миграции плутония зависят от типа почв и возрастают в почвах более легкого механического состава и содержащих меньшее количество органических веществ: чернозем выщелоченный < серая лесная < опесчаненный суглинок < песчаная. Основное количество плутония связано практически со всеми группами органического вещества

почвы. Плутоний находится в составе гумусовых и низкомолекулярных кислот, их соединений с кальцием, железом и алюминием, а также в гидроксидах указанных элементов. Распределение плутония по группам органических веществ почвы определяется физико-химическими свойствами почв и, в первую очередь, количественным и качественным составом гумусовых кислот (**Рис. 10 и 11**).

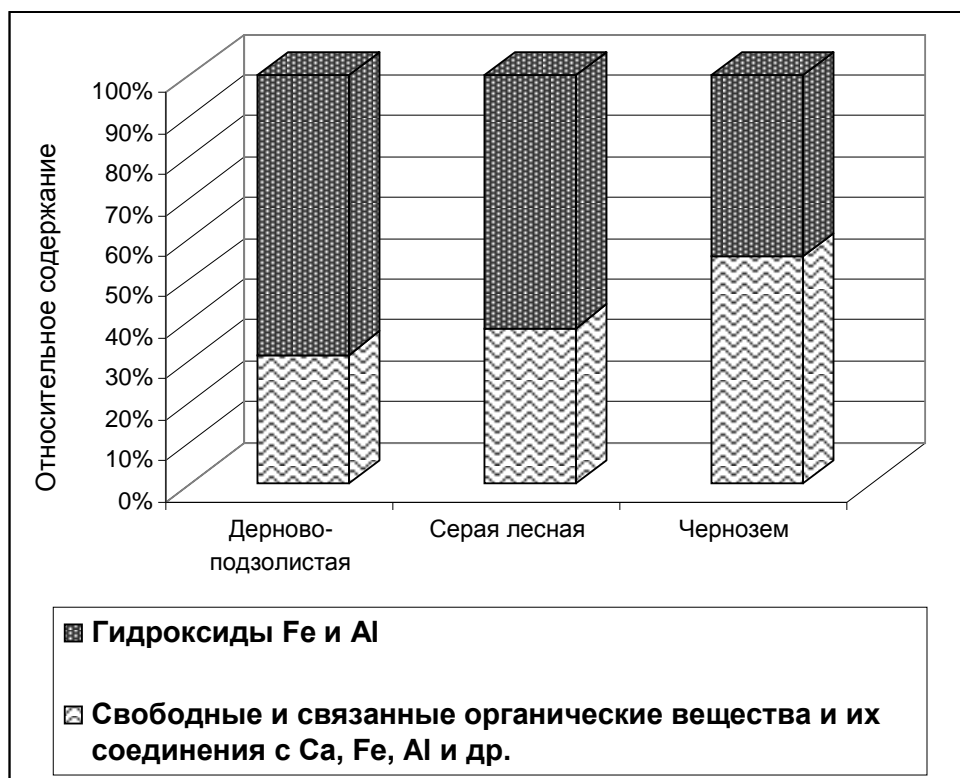


Рис. 10. Распределение плутония между органическими и неорганическими компонентами почв, %.

Из данных, представленных **Рис. 10**, видно содержание плутония в составе органического вещества почв уменьшается в ряду: чернозем > серая лесная почва > дерновоподзолистая почва, что коррелирует с количеством гумуса и обменного кальция. В то же время плутоний в черноземе в большей степени связан с малоподвижными гуминовыми кислотами, а в дерново-подзолистой и серой лесной почвах с подвижными низкомолекулярными соединениями и фульвокислотами (**Рис. 11**).

Результаты изучения связи плутония с компонентами органических веществ позволили объяснить наблюдаемые механизмы миграции «глобального» плутония в почвах. В преобладающем медленном переносе, доля которого составляет более 87%, плутоний мигрирует совместно с тонкодисперсными частицами в составе гуминовых кислот, гуматов и гидроксидов железа и алюминия, в быстром переносе - в виде растворимых комплексных соединений железа и алюминия с низкомолекулярными и фульвокислотами.

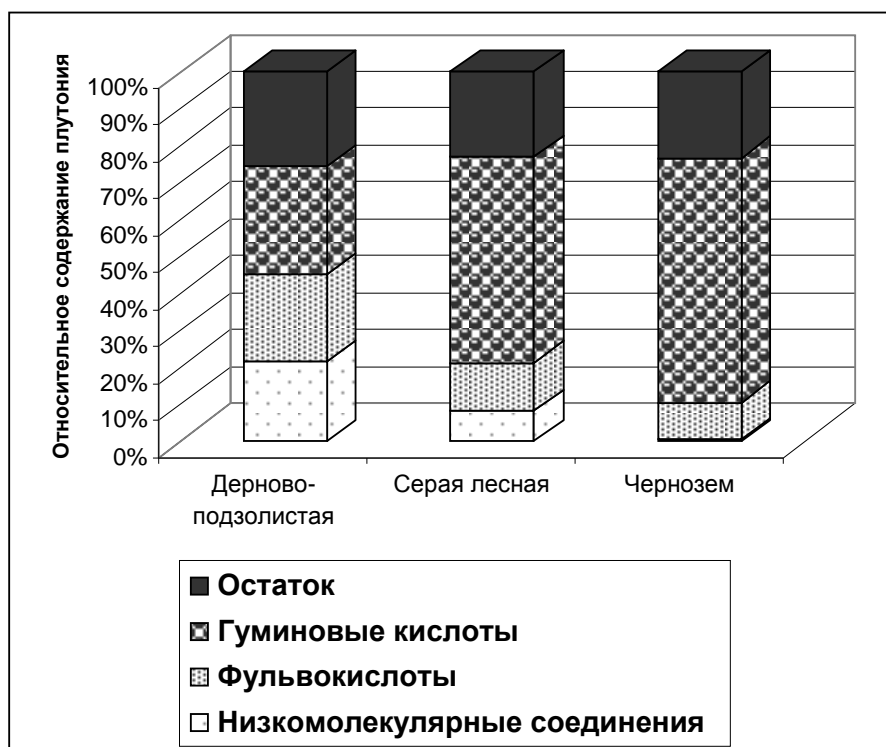


Рис. 11. Содержание плутония в отдельных группах органического вещества почв, %

В почвенных горизонтах с высоким содержанием органических веществ (гумусовый горизонт) и гидроксидов (аллювиальный горизонт) наблюдается концентрирование плутония, в почвах с процессами подзолообразования наблюдается вынос плутония из элювиальных горизонтов.

Почвы, растительность и биота Восточно-Уральского радиоактивного следа (ВУРС)

Основное отличие миграции радионуклидов в почвах ВУРС от миграции продуктов глобальных выпадений состоит в том, что в первом случае радионуклиды первоначально находились в виде растворимых нитратно-ацетатных соединений. Это привело к тому, что за 50 лет в ненарушенном слое почв радионуклиды проникли на глубины до 50 см (проникновение радионуклидов глобальных выпадений, как правило, не превышает 10 см). Естественно, что глубина и мощность проникновения зависит от типа биогенного ландшафта и природы радионуклида (**Рис. 12**).

В черноземных и черноземно-луговой почвах радионуклиды в наибольшей степени задерживаются в верхних горизонтах почв. В торфяно-болотных, как наиболее увлажненных типах почв, миграция наиболее интенсивна. Наиболее глубоко по профилям всех типов почв проник радиостронций, в наименьшей степени - плутоний.

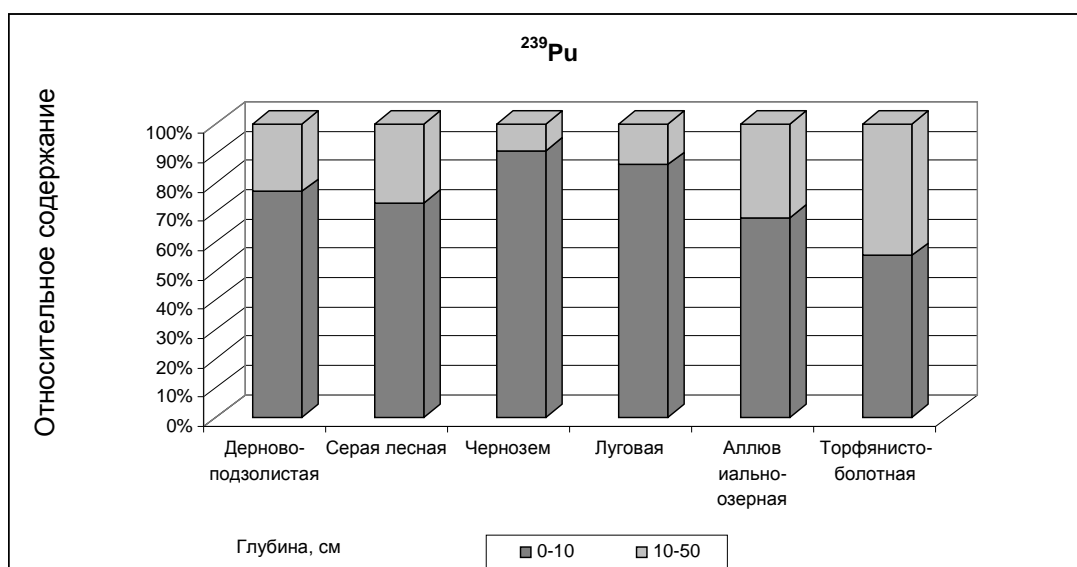
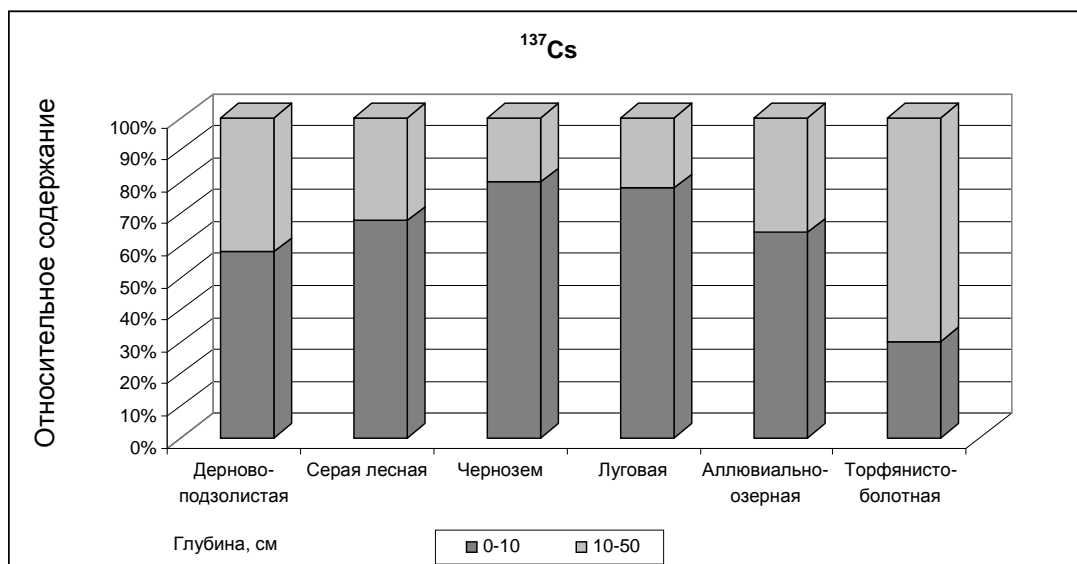
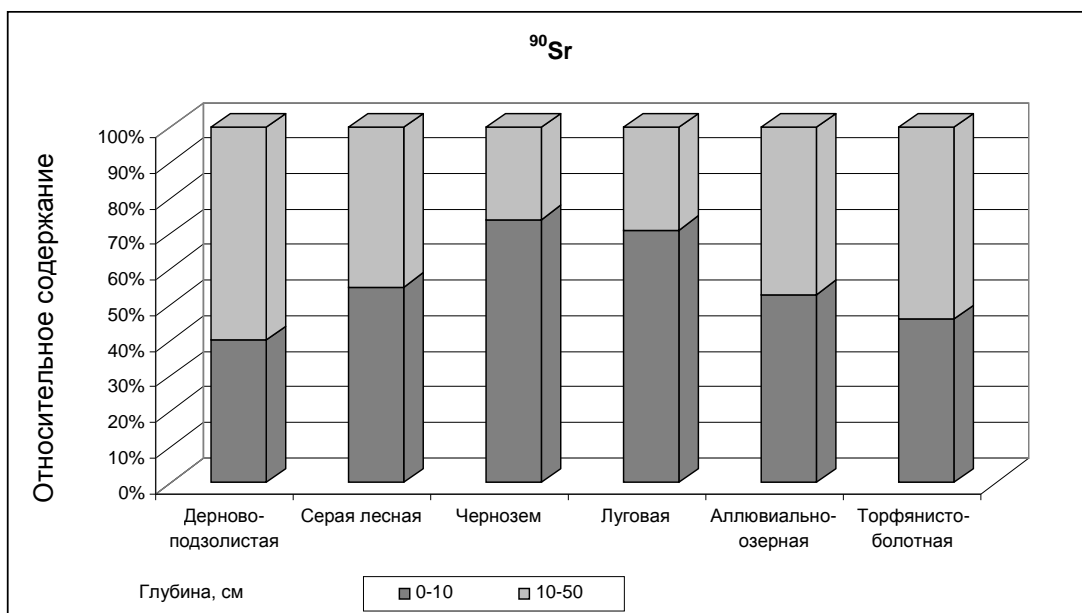


Рис. 12. Распределение радиостронция, радиоцезия и плутония по горизонтам почв различного генетического строения.

Независимо от источника поступления (как для глобальных выпадений, так и почв зоны ВУРС) миграция плутония протекает по двум механизмам: преобладающему медленному и быстрому. Причем, если в первые годы после аварии, приведшей к образованию ВУРС, вклад второго был достаточно заметен и составлял до 20%, то в настоящее время он не превышает нескольких процентов. Это связано с тем, что включаясь в биохимические процессы плутоний переходит в малоподвижные гуматные комплексы (Рис. 13).

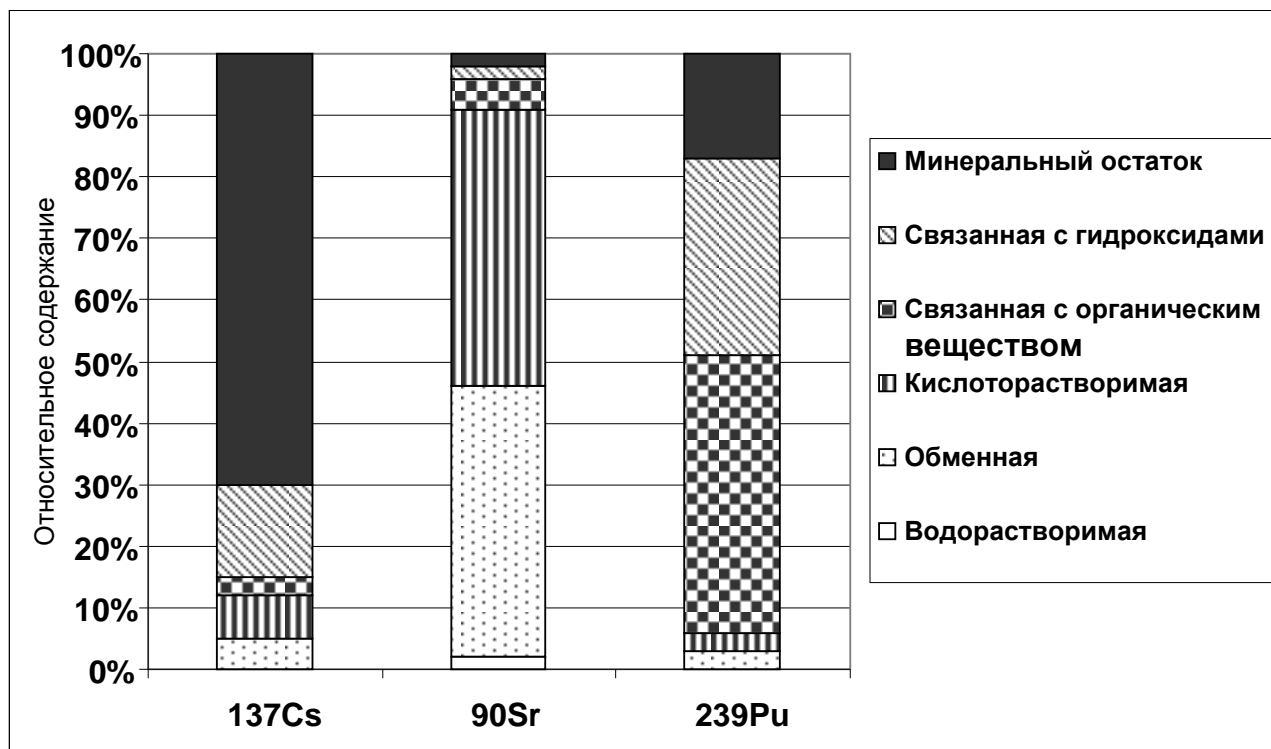


Рис. 13. Формы нахождения радионуклидов в черноземе выщелоченном.

Как видно из представленных данных, как и для глобальных выпадений, так и в почвах ВУРС радиоцезий связан преимущественно с минеральными компонентами почв, плутоний с органоминеральной частью, а радиостронций в значительной мере находится в подвижных формах.

Принятые в литературе [55] полуэмпирические математические модели для оценки вертикальной миграционной способности радионуклидов в почвах достаточно хорошо описывают изменение вертикальных профилей содержания радионуклидов во времени. По оценкам Ф.И. Павлоцкой расхождение между рассчитанными и фактическими профилями, например, для цезия-137 более, чем для половины всех полученных значений не превышали 20 %, что является вполне приемлемым для прогноза величиной [56].

Ранее в работе [56] было показано, что вертикальный транспорт радионуклидов это квазидиффузионный перенос, имеющий недиффузионную природу, но удовлетворительно описываемый уравнениями диффузии. Действительно, определяемый коэффициент является эмпирически установленным и отражающим скорости одновременно протекающих процессов: направленного переноса при просачивании атмосферных осадков (конвективном переносе), переноса на мигрирующих коллоидных частицах, диффузионного массо-переноса вследствие градиента концентраций dq/dx от поверхности в глубь почвы. Поэтому корректнее называть его коэффициентом миграции.

В среднем коэффициенты миграции глобального плутония в разных природно-климатических зонах и ландшафтно-геохимических условиях составили $(12 \pm 10) 10^{-8} \text{ см}^2/\text{с}$ (за t_0 принят 1963 г.) В почвах лесостепной зоны Зауралья при глобальном загрязнении коэффициенты миграции ($n 10^{-8} \text{ см}^2/\text{с}$) оценены для $M_1=2,34 \pm 1,0$ и $M_2=3,4 \pm 1,4$ (при t_0 – 1954 и 1963 гг соответственно); на территории ВУРСа в черноземе выщелоченном под луговой растительностью $M_1=1,9$ (90,9 %) и $M_2=10,7$ (9,1 %), черноземе выщелоченном в березовом лесу – $M_1=1,1$ (76,3 %) и $M_2=10,3$ (23,7 %), в серой лесной почве $M_1=1,0$ (96,3 %) и $M_2=1,5$ (3,7 %). Вниз по профилю коэффициенты миграции возрастают с одновременным увеличением пределов колебаний. В почвах США при локальном загрязнении через 7 лет M_1 и M_2 составили ($n 10^{-8} \text{ см}^2/\text{с}$) – 8 ± 1 и 15 ± 4 соответственно [57]. Для всех исследованных нами почв из разных зон основным типом миграции плутония в поверхностных горизонтах является медленный перенос, на его долю приходится в среднем 87 (65-100) %, в то время как на быстрый – в среднем 13 %.

Наблюдаемые различия в величинах коэффициентов миграции плутония как в почвах в целом, так и отдельных генетических горизонтах, а также соотношения между медленным и быстрым компонентами переноса обусловлены влиянием типа почв, видом растений, погодными условиями, формами нахождения плутония, механизмами взаимодействия его с почвами и т.д. Почвенный раствор является одной из категорий почвенных вод, включающих в себя разнообразные виды влаги (пленочная, адсорбированная, поровая, капиллярная, гравитационная). К собственно почвенному раствору условно относятся поровые и капиллярные воды [58]. В почвенном растворе наряду с истинно растворимой фракцией присутствуют коллоиды и взвесь. К истинным растворам условно относят частицы, размер которых $<0,001 \text{ мкм}$, к коллоидам $0,1-0,001 \text{ мкм}$, взвесь – это частицы размером $>0,45 \text{ мкм}$ [59]. Установлено, что в поверхностных, грунтовых и почвенных водах основная часть химических элементов сосредоточена в составе крупных взвесей и истинных растворах, в коллоидной форме в основном находятся соединения легко гидролизующихся элементов (Fe, Cu, Zn, Ni, Co, V, Cr, Mn)

[58]. В результате гидромеханического воздействия происходит вынос водой без разрушения тонких фракций мелкозема и коллоидных частиц из поверхностных элювиальных горизонтов и их аккумуляция в иллювиальных слоях почвенного профиля (процесс лессиважа) [60]. При увеличении содержания влаги в почвах коллоидный перенос ускоряется. Размер коллоидных частиц играет важную роль в скорости их тангенциального переноса вниз по почвенному профилю. Так в некоторых случаях крупные коллоиды, неспособные к диффузии в пористом материале мигрируют быстрее, чем коллоидные частицы меньшего размера, более склонные к сорбции на поверхности почвенных частиц [61]. Именно этим могут наблюдаться два типа переноса плутония в почвах (быстрый и медленный), что обусловлено связью его с разными по размеру частицами в почвенном растворе.

Для оценки связи трансураниевых элементов с различными фракциями почвенных частиц нами был применен метод ультрафильтрации [62].

Исследованные почвы различаются по значению рН водных вытяжек, которые составляют 7,2, 5,1, 4,7 и 4,4 для чернозема, дерново-подзолистой и подзолистой почв (0-3 и 16-21 см) соответственно. Содержание $C_{орг}$ в подзолистой почве, отобранной с глубины 0-3 и 16-21 см, найдено равным 19 и 8 мг/г соответственно.

Было установлено, что в черноземе содержится больше органического вещества, однако в водную вытяжку оно переходит в меньшем количестве, чем из дерново-подзолистой почвы. Это связано с более высоким содержанием в дерново-подзолистой почве по сравнению с черноземом низкомолекулярных кислот в основном фульватной природы, относительно легко переходящих в водную вытяжку. Содержание химических элементов в водных вытяжках из почв различно и возрастает в ряду: Fe (0,03%) < K, Na (0,1%) < Mn (0,3%) < Ca, Mg (0,4-0,6%). Ca и Mg по сравнению с другими химическими элементами в большей степени находятся в обменных формах на поверхности почвенных частиц.

Ультрафильтрация может быть одним из альтернативных методов гель-хроматографии, которая чаще всего применяется для определения молекулярных масс (ММ) гумусовых кислот, а также оценки связи химических элементов, в том числе и радионуклидов, с гумусовыми кислотами, различающимися по ММ.

При исследовании динамики прохождения радионуклидов через мембрану во времени от 2 часов от начала диализа до нескольких суток найдено, что основное количество плутония и америция проходит через мембрану в первые двое суток после начала диализа, со временем интенсивность прохождения радионуклидов через мембрану резко снижается. В гуминовых кислотах через мембрану проходит незначительное

количество Pu и Am (0,1-0,2 и 3,0-4,3% соответственно), в отличие от органического углерода (44,0-63,8%). Америций интенсивнее диффундирует через мембрану, чем плутоний, что связано с большим содержанием Am в составе относительно подвижных соединений (фракция 1 Гк). При диализе фульвокислот 20,4-25,1% плутония и 66,3-68,3% америция найдено в диализной воде, что обусловлено нахождением их составе низкомолекулярных фракций фульвокислот, а также неспецифических органических и неорганических соединений (фракция 1а). Очищенная методом переосаждения с HCl и диализа фракция (1+2) гумусовых кислот чернозема, была использована для изучения связи радионуклидов с молекулярно-массовыми группами Гк и Фк.

Метод ультрафильтрации позволил оценить количественные связи радионуклидов с различными по ММ группами гумусовых кислот. Полученные данные показали, что в гуминовых кислотах основная доля трансурановых элементов находится в составе группы с ММ более 100 KDa (67,5 и 74,6% Pu и Am соответственно). С низкомолекулярными соединениями гуминовых кислот с ММ менее 3 KDa связано не более 4,4% Pu и 1,7% Am. В гуминовых кислотах с ММ 50, 30 и 10 KDa на фильтрах задерживается близкое количество радионуклидов (84,2-86,0% плутония и 92,4-93,2% америция), тогда суммарное количество радионуклидов, связанное с гуминовыми кислотами с ММ 10-50 KDa мы оцениваем в 16,7 и 18,6% плутония и америция, соответственно. В составе гуминовых кислот с ММ от 3 до 10 KDa найдено 11,4 и 5,0% плутония и америция соответственно. В фульвокислотах 44,1-48,8 % радионуклидов находятся в составе группы с ММ > 100 KDa, и 42,4-51,0% - менее 3 KDa.

Использование мембранных фильтров с известными размерами пор дает возможность изучать связи радионуклидов с частицами сложных веществ разнообразной природы, выделенных из объектов окружающей среды. Так, при последовательном фильтровании через серию мембранных фильтров и целлофановую мембрану одной пробы раствора гуминовой кислоты (фракция 1+2), выделенной из чернозема, найдено, что 66% Pu связано с частицами крупнее 0,2 мкм, 26% Pu остается в растворе в составе группы гуминовых кислот с размером частиц менее 0,001 мкм. В вытяжках Тамма, полученных из подзолистых почв, основное количество Pu (87-89%) найдено в фильтрате, что указывает на связь Pu с оксалатными комплексами соединений железа и алюминия.

Таким образом на примере почв ВУРС - чернозема и дерново-подзолистой почв показано, что основная доля Pu и Am связана с малоподвижными гуматами и фульватами Ca, Fe, Al (фракции 1, 2, 3) и труднорастворимыми гуминами (остаток), при этом Pu в большей степени связан с гуматами, чем Am, в составе подвижной части фульвокислот

(фракция 1a) найдено более высокое количество Am, чем Pu, что указывает более высокую миграционную способность Am по сравнению с Pu.

В гуминовых кислотах чернозема до 70-75% плутония и америция найдено в составе высомолекулярной группы с ММ более 100 KDa. В фульвокислотах 40-50% Pu и Am связано с относительно подвижными низкомолекулярными и фульво-кислотами с ММ менее 3 KDa. Результаты, полученные в результате диализа гумусовых кислот и ультрафильтрации гуминовых кислот чернозема, указывают на сложный и неоднозначный состав Гк и Фк, включающий в себя как низко- так и высокомолекулярные компоненты.

Полученные данные позволяют предположительно объяснить механизмы переноса плутония и америция в почвах. Так, преобладающий перенос радионуклидов в медленной форме представляет собой миграцию их в составе тонкодисперсных и коллоидных частиц при промывании почв атмосферными осадками. В взвесах и коллоидах, различающихся по размерам, радионуклиды могут находиться в составе малоподвижных органических веществ гуматной природы, гуматов кальция, полимерных комплексов Гк и Фк, связанных с устойчивыми гидроксидами Fe и Al, и гидроксидов двух последних элементов. Быстрый перенос Pu и Am в почвах обусловлен во-первых, миграцией в составе мелких взвесей и крупных коллоидов, не склонных к сорбции на почвенных микроминералах; во-вторых, в виде растворимых комплексных соединений с низкомолекулярными и фульвокислотами (фракция 1a и 1).

Формы нахождения радионуклидов определяют не только направленность и интенсивность миграции последних, но и в значительной степени влияют на процессы биоаккумуляции радионуклидов и их включение в пищевые цепочки.

В результате радиоактивного загрязнения территории ВУРС в 1957 году в видовом составе растительных сообществ произошли следующие изменения: гибель сосны наблюдалась на плотностях загрязнения выше 700 Ки/км² по стронцию-90, при дозовой нагрузке в 1,5 крад на уровне почвы в воздухе за вегетационный период. Поражение крон березы отмечалось на плотностях загрязнения выше 3000 Ки/км² по стронцию-90, при дозовой нагрузке выше 12,5 крад на уровне почвы за летний сезон. При таких же плотностях загрязнения наблюдалась гибель кустарников и части травянистых растений. В травянистой растительности на этих участках погибло до 70% видов с расположением почек возобновления над поверхностью почвы или на ее поверхности. Уцелели виды, у которых почки возобновления погружены в почву, однако снижения продуктивности травяного покрова не произошло. Сразу после гибели части видов, сохранившиеся растения разрослись на освободившихся местах. Следует отметить, что максимальный эффект поражения травянистой растительности наблюдался на третий сезон после

воздействия ионизирующего излучения, в 1960 году. В последующие годы наблюдалось восстановление растительности. Кроны берез восстановились в 1961 году, а исходный видовой состав травяного покрова - в 1967 году.

С 1958 года Опытная научно-исследовательская станция (г. Озерск) начала комплекс научно-исследовательских и научно-практических работ на территории ВУРСа по вопросам практической деятельности, разработке, крупномасштабной проверке и внедрению специальных приемов и методов ведения агропромышленного, лесохозяйственного, рыбохозяйственного, охотхозяйственного производств и отработке современных приемов дезактивации природных объектов. Все эти работы проводились и проводятся в общей сложности на 250 научных площадках на территории ВУРСа, а затем заповедника, на которых изучаются:

- поведение и миграция радионуклидов в почве;
- биологическая доступность радионуклидов в различных ландшафтах;
- миграция радионуклидов в системе почва-травянистая и древесная растительность;
- способы закрепления радионуклидов в почве;
- действие радиоактивных выпадений на лес, травянистую растительность и животных;

Установлено [63, 64, 65, 66], что климатические факторы слабо влияют на поступление радионуклидов в растения. Только сильная засуха снижает их поступление максимально в 3 раза в древесные и кустарниковые растения и до 10 раз в травянистые. Факторами, определяющими содержание радионуклидов в растениях, являются температура и влажность почвы ранней весной в самом начале вегетации (до 3 раз).

Накопление Sr-90 естественными травами показало, что максимум содержания Sr-90 в растениях наступает на 4-5 год после выпадения радионуклида на поверхность почвы. В последующие годы наблюдается устойчивое снижение концентрации Sr-90 в биомассе фитоценозов в среднем на 3-4% в год от содержания в биомассе растений.

У Cs-137 в первый год после попадания в почву очень велика доступность для растений. Но уже на следующий год доступность радионуклида уменьшается в 4-5 раз, а в последующие годы продолжает уменьшаться на 2-3% в год. В целом же накопление Cs-137 в растениях в 5-10 раз меньше, чем Sr-90. К настоящему времени содержание радионуклидов в биомассе растений снизилось в 2-2,5 раза у Sr-90 и в 8-10 раз у Cs-137, по сравнению с 1959 годом. По результатам исследований было установлено, что периоды полуснижения концентрации Sr-90 в биомассе травянистых растений фитоценозов меньше периода полураспада радионуклида и составляют 12-28 лет в зависимости от фитоценоза

(залежь - 12 лет, ячменный луг -28 лет, осоковое болото - 18 лет, ковыльная степь - 27 лет, сосновый лес - 26 лет, березовый лес - 24 года).

В биологический круговорот в водных биогеоценозах вовлекается до 0,4 % стронция-90 и до 0,4 % цезия-137 от содержания в водоеме. Основная масса радионуклидов в озерах содержится в илах, в воде содержится от 0,01 до 0,3% стронция-90 и от 0,001 до 0,1% цезия-137. В фитопланктоне содержится 0,4%, в зоопланктоне - 0,1%, в высшей водной растительности - 0,01, в бентосе - 0,1 и в рыбе 0,09% стронция-90. Подобное соотношение наблюдается в озерах заповедника на протяжении последнего десятилетия после аварии.

Попавшие в окружающую среду радионуклиды неизбежно включаются в биологические процессы и попадают различными путями в организм животных. В первые годы после аварии имело место поверхностное загрязнение наружных покровов животных. В 1959 г. в перьях птиц содержалось 38-56% от суммарной активности в организме, в тушке - 39-57%, в желудочно-кишечном тракте - 3-8%. Через несколько лет после аварии наружное загрязнение существенно снизилось, определяющим стало поступление радионуклидов с рационом, а также с частицами почвы (до 50-55%) при добывании пищи, роющей деятельности и т.п.

В продвижении Sr-90 по пищевым цепям диких животных можно отметить следующие закономерности. При переходе в растительность концентрация его снижается в 10 раз. Насекомые-фитофаги накапливают лишь 20% Sr-90 от содержания его в растениях. Хищные насекомые имеют концентрацию Sr-90 примерно такую же, как и их жертвы. Повышается концентрация Sr-90 при переходе к растительноядным позвоночным. Значение коэффициента накопления (K_n), рассчитанного как отношение концентрации в объекте к концентрации в предыдущем трофическом звене, для них равно в среднем 1,6. Если же производить расчет K_n по костной ткани, значения коэффициента будут значительно выше. Насекомоядные позвоночные различных классов также накапливают Sr-90 ($K_n = 2,1-4,2$). В звеньях трофических цепей, ведущих к насекомым-некрофагам и копрофагам, наблюдается снижение накопления Sr-90. У дождевых червей, питающихся гниющей подстилкой, где концентрация нуклида достигает концентрации в почве, K_n равен 0,4. Максимальные концентрации Sr-90 на территории заповедника отмечаются у позвоночных животных, обладающих кальцинированным скелетом. В первую очередь это мелкие млекопитающие, ведущие оседлый образ жизни и имеющие тесный контакт с загрязненной почвой. Птицы, особенно перелетные, а также крупные млекопитающие, совершающие значительные сезонные миграции, накапливают радионуклиды в меньших количествах.

Концентрирование Cs-137 происходит лишь в звеньях, ведущих к насекомоядным животным (бурозубки, лягушки, ящерицы). В остальных звеньях идет снижение накопления радионуклида относительно предыдущего уровня. Коэффициенты накопления относительно концентрации в почве для Cs-137 в 1,5 и более раз ниже, чем для Sr-90, что свидетельствует о меньшей его миграционной способности. Общее количество радионуклидов, вовлекаемых животными в биологический круговорот невелико и составляет для стронция-90 0,02% и для цезия-137 - 0,001% от общего запаса нуклида в экосистеме.

Со временем накопление радионуклидов снижается за счет распада их в почве и перехода в труднодоступные для усвоения формы. За последние 20-25 лет концентрация стронция-90 в организме мелких млекопитающих снизилась в 5,7-6,9 раз у бурозубок, в 2,4-5,2 раза у полевок и в 2,2-3,9 раза у мышей. Концентрация стронция-90 в скелете косули за этот же период снизилась в 4,6 раза, цезия-137 в мышцах в 2,5 раза. Концентрация Sr-90 в скелете за последние 20 лет снизилась у тетерева в 4,8 раза, у грачей - в 5 раз. Содержание Sr-90 в мышцах лосей, добытых на территории заповедника, превышает среднедопустимую концентрацию у 44% особей и у 33% косуль, а содержание Sr-90 в скелете практически у всех животных превышает СДК. Схожая картина наблюдается и у птиц. Среди уток, добытых на территории заповедника, даже в послегнездовой период, когда происходит "разбавление" местных популяций пролетными особями, отмечено более 20% птиц, у которых концентрация Sr-90 превышает СДК для человека.

Детальное обследование мышевидных грызунов на территории заповедника после 1991 года показало, что в настоящее время на участках, где суммарная поглощенная доза у животных составляет 300-400 рад/год, у 80% грызунов имеются отклонения в кроветворных органах и крови. При обследовании у 88% мышевидных грызунов имеются отклонения в составе лейкоцитарной формулы, в том числе у 40% - лейкопения. У 48% животных отмечено снижение числа эритроцитов, а у 24% - тромбоцитопения. Выявленные изменения почти во всех случаях подтверждены признаками недостаточности костно-мозгового кроветворения в виде замедления пролиферации созревания клеток, уменьшения количества функционирующих костномозговых элементов. В заповеднике в настоящее время обнаружены случаи миелоидного базофильного лейкоза и предлейкозного состояния у узкочерепных полевок.

Изучение способов рационального природопользования загрязненных радиоактивными веществами территорий показало, что экономически выгодно использовать их для производства семян и выращивания саженцев декоративных,

технических и лекарственных растений, разведения редких животных, а водоемы использовать для выращивания маточного поголовья рыб, то есть для получения продукции, не используемой в пищу человека и животных.

Исследования по дезактивации почв, проводимые в первые годы после аварии, показали, что наиболее эффективным приемом является глубокая вспашка почвы, при которой происходит захоронение поверхностно загрязненного слоя почвы на глубину 30-50 см. Это мероприятие позволило снизить дозовую нагрузку на природные объекты и ветровой перенос радионуклидов на загрязненной территории и их поступление в растения до 10 раз. Другим эффективным способом дезактивации почвы является удаление и захоронение в траншеях или курганах верхнего слоя почвы. Этот прием помогает снизить вышеупомянутые показатели до 20 раз. Разработка способов очистки от радионуклидов кормов, продуктов животноводства и растениеводства привело к созданию ряда приемов, снижающих содержание радионуклидов в них до 3 раз, а в молоке до 10 раз. Однако разработанные способы трудоемки и снижают качество продукции.

Почвы зон воздействия атомных станций, включая зону воздействия аварии на Чернобыльской АЭС

Основной особенностью выбросов атомных станций и, особенно, загрязнений после Чернобыльского инцидента является их сложный физико-химический состав. Изучению форм нахождения радионуклидов, выпавших на дневную поверхность в результате аварии на ЧАЭС, посвящена большая серия работ [67, 68, 69, 70, 71].

Исследования по изучению форм нахождения радионуклидов в почвах северного сектора за пределами 30-км зоны показали, что к началу октября 1986 г. суммарная доля водорастворимой и обменной форм изотопов Cs для исследуемых почв зависела от типа почв и колебалась от 16 до 36%. Содержание прочносвязанной формы лежало в пределах 37-74%. Однако в почвах западного сектора количество прочносвязанной формы ^{137}Cs было менее 5%, что, по-видимому, можно было объяснить преобладанием здесь песчаных почв с малым содержанием глинистой фракции.

Со временем, как и для почв ВУРС, наблюдалось снижение подвижных форм ^{137}Cs . За 8 лет пребывания радионуклида в пахотном слое дерново-подзолистой супесчаной почвы количество обменного ^{137}Cs снизилось в два раза. Значительное количество ^{137}Cs (~70%) перешло в прочносвязанное состояние.

Наиболее высокое содержание водорастворимых форм ^{90}Sr было характерно для песчаных и болотных почв. Для песчаных почв это было связано со слабой их сорбционной способностью, для болотных - с возможным образованием комплексных

соединений ^{90}Sr с фульво - и растворимыми гуминовыми кислотами. Содержание обменных форм для ^{90}Sr лежало в пределах 5-40%, для ^{137}Cs - 0,6-13%. Уже к лету 1987 г. основное количество радионуклидов в пробах находилось в необменной и прочносвязанной формах.

Полученные данные [72] по влиянию степени участия органического вещества почвы и аморфных оксидов алюминия и железа в поглощении и фиксации ^{137}Cs почвами в различные моменты времени после их загрязнения. Через 2 года после попадания ^{137}Cs в почву в результате аварии на ЧАЭС значительная его часть (от 20 до 30%) была прочно связана с гумусом и аморфными оксидами алюминия и железа.

Значительно меньшее количество данных, по сравнению с ^{137}Cs и ^{90}Sr , получено по формам нахождения плутония в радиоактивных выбросах аварии на ЧАЭС.

В ГЕОХИ РАН были проведены исследования по формам нахождения плутония в горячих частицах, отобранных из почв и растений в 30-км зоне в 1987-1988 гг. Частицы различались по внешнему виду, цвету, радионуклидному составу и коэффициентам фракционирования плутония, ^{106}Ru и ^{137}Cs относительно ^{144}Ce .

Как следует из приведенных в **Таблице 4** данных, содержание той или иной формы плутония в частицах зависит от типа частиц. Видно, что частицы могут содержать плутоний в потенциально подвижных формах. Содержание труднорастворимой формы лежит в пределах 17-99%. Максимальная растворимость плутония обнаружена для частиц, обогащенных этим элементом; в труднорастворимой форме в них остается всего 17-32% плутония.

Таблица 4. Формы нахождения плутония в горячих частицах

Тип частиц	Форма нахождения, %				
	Водо-растворимая	Обменная	Подвижная	Кислото-растворимая	Трудно-растворимая
Топливо неизменного состава	0.2-2.9	0.1-6.8	0.7-2.6	0.3-4.2	84-99
Обедненные плутонием	0.6-6.1	1.2-1.8	0.9-3.3	0.8-9.6	79-97
Обогащенные плутонием	<1.0	5.7-17	3.6-23	28-73	17-32

Нахождение плутония в подвижной форме дает основание полагать, что со временем в результате разрушения топливных частиц количество этих форм будет возрастать. В таком случае для плутония будут характерны те же закономерности распределения и миграции в наземных экосистемах, какие были установлены при загрязнении почв глобальными выпадениями, выбросами при аварии на Южном Урале в виде растворимых нитратов и ацетатов, летучими продуктами выбросов при аварии на ЧАЭС и т.д.

Исследование почв, не содержащих горячих частиц, показало, что плутоний в них практически отсутствует в растворимых и обменных формах. По-видимому, за время после аварии (более 20 лет) летучие продукты конденсационного типа образовали малоподвижные соединения с органоминеральными частицами почв (**Рис. 14**).

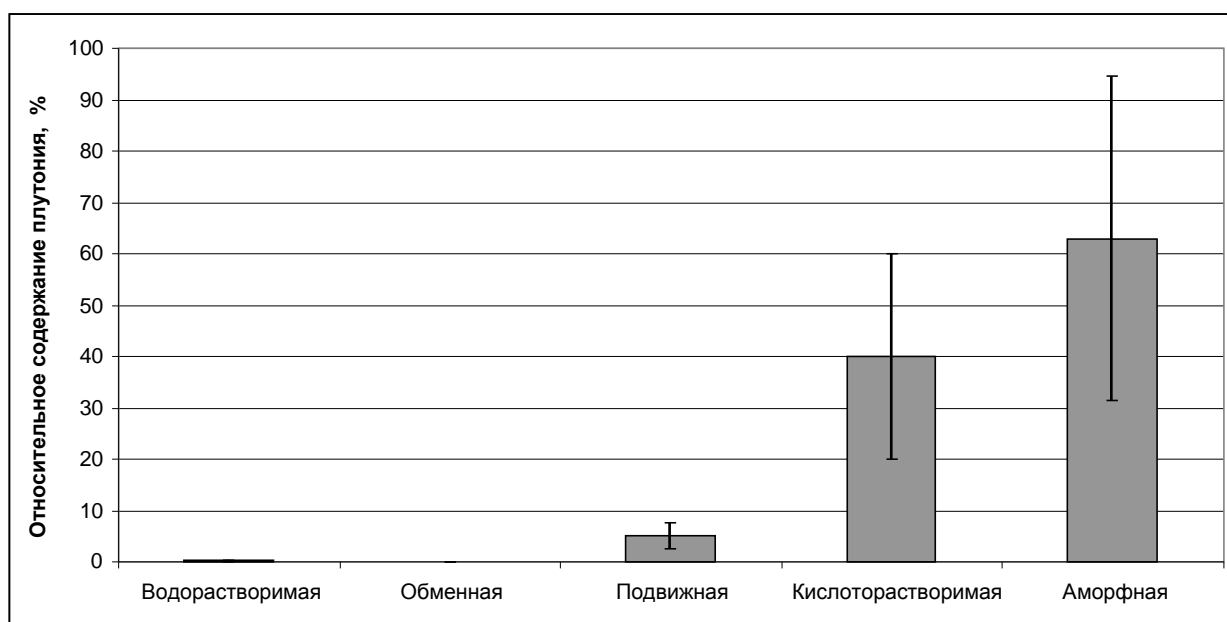


Рис. 14. Формы плутония в почвах после аварии на ЧАЭС.

Донные отложения и воды Теченского каскада промышленных водоемов (ФГУП ПО Маяк)

В качестве объектов исследования наиболее интересны водоемы В-10 и В-11, созданные в 1956 и 1964 гг. соответственно для хранения низкоактивных жидких отходов и естественной очистки воды за счет сорбции радионуклидов донными отложениями и радиоактивного распада короткоживущих радионуклидов.

Интерес к процессам распределения радионуклидов и их форм нахождения в экосистемах водоемов В-10 и В-11 обусловлен несколькими причинами: 1) эти два

водоема содержат максимальные объемы загрязненной воды по сравнению с другими водоемами (около 80 и 220 мегакубометров); 2) они являются открытыми гидрологическими и эколого-термодинамическими системами; 3) В-10 и В-11 замыкают каскад промышленных водоемов и вода из этих водоемов, фильтрующаяся через их ложе и ограничивающие их дамбы и плотины, создает опасность поступления радионуклидов в открытую гидросеть; 4) разработкой технологических приемов очистки вод.

Концентрация радионуклидов в воде водоема В-10 выше, чем в воде водоема В-11. В пределах одного водоема содержание в воде практически одинаково для ^{90}Sr и ^{60}Co и существенно изменяется для ^{137}Cs и ТУЭ. Последнее, по всей вероятности, можно объяснить главным образом различием в степени их поглощения разными типами донных отложений в точках отбора образцов. Известно, что эти радионуклиды характеризуются высокой сорбционной способностью глинистыми минералами и природными органическими образованиями (торфом, сапропелями и др.). В разных частях акваторий исследуемых водоемов отмечается тесная корреляционная связь между содержанием ^{137}Cs - $^{239,240}\text{Pu}$ - ^{241}Am ($r=0,996-0,999$).

Концентрация химических элементов и основных анионов в водной фазе в пределах одного водоема, за редким исключением, также практически одинакова [73].

Методом ультрафильтрации через мембранные ядерные фильтры нами установлено, что радионуклиды и химические элементы присутствуют в воде в виде взвесей с размером частиц в интервале 0,5-0,1 мкм, коллоидов (0,1-0,001 мкм) и истинном растворе (Рис. 15). Наблюдаемый порядок содержания радионуклидов во взвешях ($\text{Pu} \approx \text{Am} > ^{137}\text{Cs} > ^{90}\text{Sr}$) согласуется со снижением их сорбционной способности твердой фазой; в коллоидах ($\text{Pu} > \text{Am} > ^{137}\text{Cs} \approx ^{90}\text{Sr}$) - склонностью этих элементов к коллоидообразованию. Взвеси в водоемах состоят как из минеральных, так и органических веществ и микроорганизмов. В период вегетации планктона и водорослей количество последних в водоеме В-10 может достигать 80-100 мг/л по всей его акватории, что существенно увеличивает количество метаболитов-сильных комплексообразующих лигандов.

Полученные данные показали, что независимо от места отбора образцов воды ^{90}Sr , кальций и магний обнаружены практически только в катионной форме. В отличие от ^{90}Sr и своего аналога калия ^{137}Cs находится в воде как в катионной, так и в анионной и нейтральной формах, соотношения между которыми различны в разных частях водоема В-10. ТУЭ аналогично железу в значительных количествах присутствуют в воде в анионной форме.

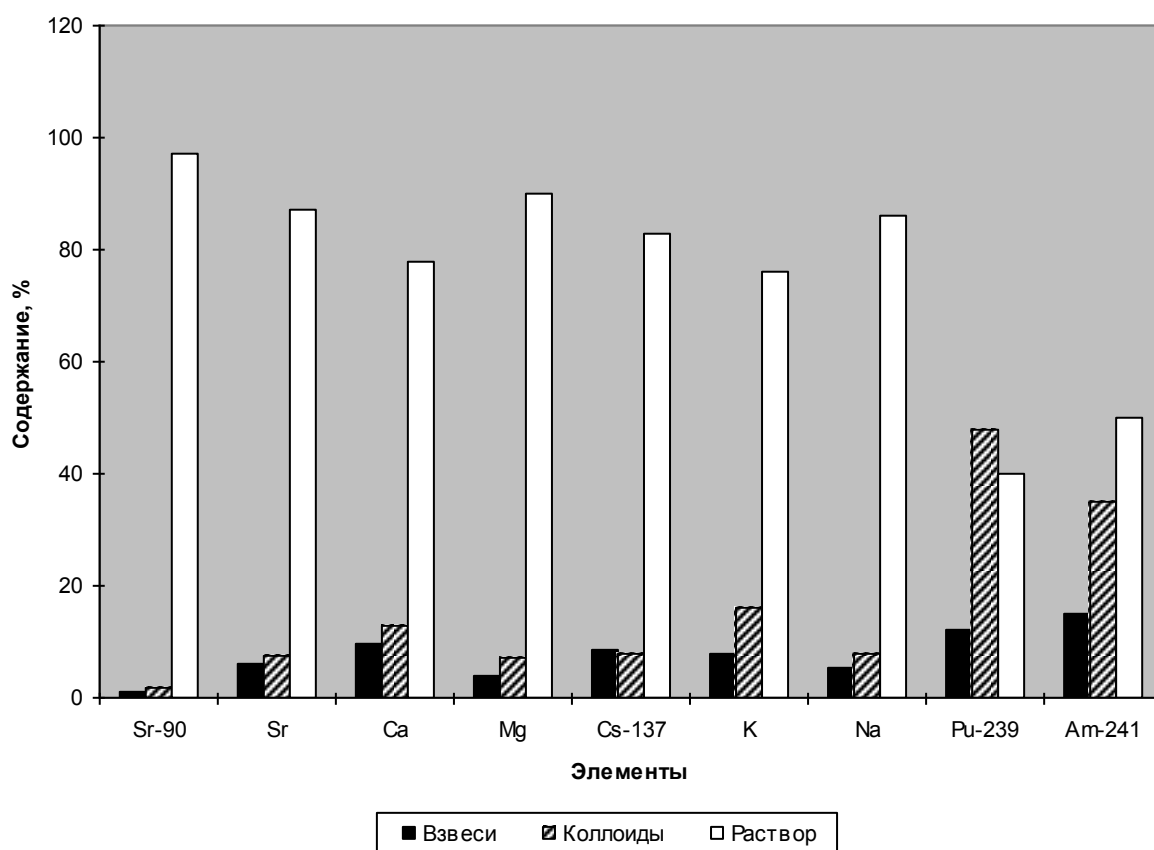


Рис. 15. Фазовое распределение радионуклидов, щелочных и щелочноземельных элементов в водной фазе, %

Донные отложения водоемов состоят из минеральных ассоциаций с различным содержанием органических веществ и техногенных образований. Минералогический, механический и химический состав донных отложений различен в разных частях водоемов. Так, в русле минеральная фракция донных отложений представлена глинами с преобладанием вермикулита, гидрослюд, смешанно-слоистых минералов, галечником, средне- и мелкозернистым песком бурого цвета и супесью с включением кварца; в пойме - глинами и алевритами, песками, мелкозернистой галькой при преобладании в них торфа разной степени разложения; на прибрежных участках - суглинками с примесью дресвы (обломками пород, в разной степени измененных выветриванием) и щебня.

Результаты выполненного исследования по определению содержания и распределения радионуклидов в донных отложениях в разных частях промышленных водоемов позволяет сделать заключение о роли их механического и химического состава, гидрохимического состава воды и других природных факторов, а также свойств самих радионуклидов в поведении в водных экосистемах. Например, снижение концентраций исследуемых радионуклидов от русла к прибрежным участкам водоемов, а также большая

миграционная способность ^{90}Sr по глубине донных отложений в пойме и затопленной территории в водоеме В-10 по сравнению с теми же участками в водоеме В-11 может быть объяснено не только их расположением относительно потока загрязненных вод, но и более легким механическим составом самих донных отложений, меньшей степенью поглощения ими радионуклидов и другими природными факторами. Минимальные значения коэффициентов распределения (K_d) радионуклидов отмечаются в более легких по механическому составу донных отложениях (легкий суглинок, супесь), в которых присутствуют галька и кварц; максимальные - в донных отложениях, состоящих преимущественно из глинистых минералов или торфа, характеризующихся повышенной сорбционной способностью (Табл. 5). Первые приурочены в основном к затопленным участкам почвенно-растительного покрова, вторые - к руслу. Содержание труднорастворимых и малоподвижных форм радионуклидов также выше для проб, отобранных в русле и пойме (40-90%) по сравнению с прибрежными участками (20-70%).

Таблица 5. Коэффициенты распределения радионуклидов в системе вода - донные отложения разного механического состава

Образец	Тип образца	K_d , л/кг			
		^{90}Sr	^{137}Cs	Pu	Am
1	Торф	91	151	38975	71748
2	Темноне опр.серый, суглинок	144	не опр.	не опр.	не опр.
3	Темноне опр.серый, средний суглинок	64	11320	не опр.	не опр.
4	То же	132	не опр.	625	2200
5	То же, кварцевая присыпка	8.0	4200	7667	4667
6	Темноне опр.серый, легкий суглинок	57	12450	не опр.	не опр.
7	Палеоне опр.серый, палевые включения, легкий суглинок	25	4656	22000	21430
8	Серый, опесчаненый суглинок	192	35000	не опр.	
9	Темноне опр.серый, опесчаненый суглинок, кварцевая присыпка	60	не опр.	не опр.	не опр.
10	Серый, супесь, галька, кварц	7.4	1655	1533	5000
11	Серый, супесь, кварцевая присыпка	11	4600	не опр.	не опр.

В донных отложениях радионуклиды стронция, цезия и ТУЭ также находятся в разных формах, количественные соотношения между которыми различны как у отдельных нуклидов, так и у одного нуклида в разных частях водоема. В отличие от ^{137}Cs и ТУЭ радиоактивный стронций в донных отложениях находится преимущественно в

наиболее мобильных (обменной, легкорастворимой и подвижной) формах (30-70%). Было найдено, что доля ТУЭ в мобильных формах составляет 10-40%, для радиоцезия только 1-10%. Для ТУЭ сильнее проявляется влияние места отбора образцов на формы их нахождения в донных отложениях, чем у радионуклидов стронция и цезия. Так, в образце, отобранном в русле р. Теча, доля плутония в мобильных формах составляла 16%, а на расстоянии 300 м от русла она достигала 33%. По мере удаления от водоема В-4 отмечается тенденция увеличения содержания ^{90}Sr в мобильных формах, а также содержание мобильных радионуклидов стронция и цезия в более глубоких слоях донных отложений по сравнению с поверхностными.

Обнаружение радионуклидов в обменной, легкорастворимой и подвижной формах позволяет сделать вывод о различной прочности связи их с донными отложениями и интенсивности перехода в водную фазу. В связи с этим в промышленных водоемах вряд ли возможна эффективная естественная дезактивация воды от радиоактивного стронция, америция и кюрия.

Выполненное фракционирование органического вещества донных отложений показало, что радионуклиды связаны практически со всеми его компонентами. Однако наблюдаемый характер распределения радионуклидов между ними позволяет подойти к объяснению различий в формах их нахождения. Например, большая подвижность радионуклидов стронция, америция и кюрия по сравнению с радиоцезием и плутонием в исследованных донных отложениях согласуются с высоким содержанием их в декальцинате (фракция 1а) - свободные фульвокислоты и органические вещества неспецифической природы (низкомолекулярные и аминокислоты, полисахариды и т.д.) и их соединения с подвижными гидроксидами железа и алюминия, кальцием и другими химическими элементами и фракции 1 фульвокислот. Фульво- и низкомолекулярные кислоты являются сильными комплексообразующими лигандами, и образуемые ими соединения с химическими элементами определяют прочность поглощения радионуклидов твердой фазой и интенсивность миграции в экосистемах [74, 75].

Меньшая подвижность плутония по сравнению с америцием и кюрием обусловлена более низким содержанием его в декальцинате и высоким в остатке, состоящим из гумусовых кислот, связанных с глинистыми минералами, малоподвижных гуматов и гидроксидов железа и алюминия, высокомолекулярных органических веществ (гуминов) и минеральной фракции.

Таким образом необходимо отметить, что формы нахождения радионуклидов в воде и донных отложениях промышленных водоемов ПО «Маяк» характеризуются большим разнообразием и аналогичны другим природным объектам. Обнаружение

подвижных форм радионуклидов в донных отложениях указывают на возможный переход их из твердой фазы в воду при изменении гидрохимического режима эксплуатации водоемов, что будет сопровождаться включением радионуклидов в биохимические циклы миграции и перераспределением по компонентам водных экосистем, в том числе и включением в пищевые цепочки.

Среди множества факторов, определяющих накопление радионуклидов пресноводными гидробионтами, основное значение имеют: концентрация в водной среде изотопных и неизотопных носителей; физико - химическое состояние радионуклидов в растворе и рН среды, температура воды. Попадая в водоемы радиоактивные вещества активно включаются в процессы биоаккумуляции и биотрансформации. Будучи захваченными в пищевые цепи изотопы избирательно накапливаются в водных организмах, причем коэффициенты концентрирования могут достигать значительных величин. Накапливаясь в живых компонентах экосистем, радиоактивные вещества формируют наряду с внешним, внутреннее облучение обитающих в водной среде организмов. Радиочувствительность гидробионтов, также как и других живых веществ, увеличивается от низших форм к более высокоорганизованным и уменьшается от ранних стадий развития к более поздним [76].

Как показано в серии работ Смагина А.И. [77, 78] в организмах рыб, обитающих в В-10, высока удельная активность основных дозообразующих радионуклидов (Табл. 6).

Таблица 6. Уровни удельной активности и коэффициенты накопления (КН) долгоживущих радионуклидов в В-10, кБк/кг сырой массы тушки рыб в разные годы.

Вид	^{90}Sr	КН	^{137}Cs	КН
Щука 80 -е гг.	80 ± 50	4	1300 ± 700	400
Окунь 90 -е гг.	160 ± 80	32	420 ± 200	1900
Щука 90 - е гг.	526 ± 300	100	152 ± 80	670
Плотва 2002 г.	200 ± 60	53	100 ± 30	2800
Окунь 2002 г.	150 ± 100	38	200 ± 20	5600
Окунь 2005 г.	417 ± 250	79	127 ± 35	4243

Различия удельной активности радионуклидов в организме рыб связаны с изменением удельной активности воды, а изменения КН, в первую очередь, с изменениями в гидрохимическом составе вод. Низкие коэффициенты концентрирования ^{90}Sr (ниже обычных, в 5 – 10 раз) обусловлены высоким содержанием Са в воде В-10.

Мощность поглощенной дозы на гидробионты от γ – излучателей в придонных слоях водохранилища В-10 составляет величину 0,1-0,3 Гр/год, которая близка к дозе от инкорпорированных радионуклидов. Максимальный вклад в формирование мощности поглощенных доз вносят инкорпорированные α - и β -излучающие радионуклиды.

Внешние осмотры и вскрытия рыб, обитающих в В-10, в период 1983 по 2005 гг., позволили заключить, что значимые морфологические отклонения у рыб из В-10 отсутствуют. Исключение составили крупные щуки (вес 3-10 кг), обитающие в районе сброса воды из В-4, у 30% которых наблюдалось изменение цвета печени. Здесь же в 2002 г. был обнаружен один экземпляр плотвы, у которой отсутствовал серебристый слой чешуйного покрова. Других изменений при обследовании нескольких тысяч рыб не выявлено. Более того в водохранилище В-10 обитают индикаторы чистоты природных вод беззубки (*Anodonta cygnea L.*).

Донные отложения и пойменные почвы реки Енисей вблизи ФГУП ГХК

Исследование миграционного поведения америция и плутония в пойменных почвах и донных отложениях р. Енисей необходимо для оценки и долгосрочного прогнозирования радиоэкологических последствий работы ФГУП ГХК в этом регионе. К настоящему времени опубликованы данные по мониторингу ТУЭ и других долгоживущих радионуклидов в ближней зоне ГХК и за ее пределами вплоть до Енисейского залива и Карского моря [79, 80, 81]. Изучено поверхностное и вертикальное распределение ТУЭ, выполнены первые оценки прочности их фиксации в пойменных почвах и донных отложениях [82]. Однако, данные по содержанию радионуклидов позволяют только оценить радиационные риски и их недостаточно для надежного анализа миграционного поведения радионуклидов в пойменных почвах и донных отложениях р. Енисей. Крайне ограничены данные по влиянию природных органических веществ на подвижность америция и плутония в речных экосистемах. Практически не исследовано влияние переувлажнения пойменных почв во время паводков на переход америция и плутония в растворимое состояние и их вынос из пойменных почв и донных отложений в воду.

Литературные данные показывают, что концентрация радионуклидов в почвах, отобранных слоями по 5 см до глубины 15-30 см, около хранилищ отходов неодинакова и колеблется в зависимости от типа последних. Максимальная концентрация $^{239,240}\text{Pu}$ отмечается в почвах, отобранных на юго-восточном направлении от границы ограждения хранилища-накопителя жидких отходов (до 20 Бк/кг воздушно-сухой массы); минимальная - в пределах глобального фона на полигоне "Северный", где жидкие радиоактивные отходы закачиваются в водоносно-глинистые горизонты на глубинах 130-220 и 400-500 м [81]. Максимальная концентрация ^{137}Cs также наблюдается в почвах около хранилища-накопителя жидких отходов. Концентрация ^{238}Pu и ^{241}Am в почвах вокруг хранилищ разного типа отходов существенно ниже и изменяется в значительно меньшей степени.

Распределение радионуклидов плутония и америция по глубине почв различно. Так, для $^{239,240}\text{Pu}$ наблюдается в некоторых случаях повышение его содержания на глубине 5-10 см. ^{238}Pu и ^{241}Am распределены более равномерно, но для этих изотопов наблюдается более интенсивная миграция по глубине, на что указывает рост величины отношений $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ и $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ (от 0,03 до 0,27 и от 0,03 до 0,43, соответственно).

Следует отметить, что наблюдаемые более высокие значения отношений $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ в почвах вокруг объекта 353г и полигона «Северный» по сравнению с глобальным фоном за счет радиоактивных выпадений от экспериментальных ядерных взрывов свидетельствует о вкладе деятельности ГХК в радиоактивное загрязнение территории. Так, для глобальных радиоактивных выпадений отношение изотопов $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ не превышает 0,02-0,05 [83].

Концентрация $^{239,240}\text{Pu}$ в почвах снижается с глубиной. Например, на глубине 5-10, 10-15 и 25-30 см она ниже в 1,1-2,8; 3,4 и 4,4-6,6 раза по сравнению с верхним 0-5 см слоем. ^{238}Pu и ^{241}Am распределены в почвах равномернее и у них отмечается более интенсивная миграция по глубине, о чем свидетельствует увеличение величин их отношения к $^{239,240}\text{Pu}$. Концентрация радиоактивного цезия с глубиной тоже снижается. Наблюдаемые содержания исследованных радионуклидов плутония и цезия в почвах и величины отношений $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ практически вокруг всех исследованных хранилищ превышает глобальный фон. Так, в почвах 50-60⁰ северной широты фоновые содержания $^{239,240}\text{Pu}$ и ^{137}Cs оценивается в 0,2-2,7 и 1,0-7,2 Бк/кг соответственно. Это указывает на "выход" ТУЭ и ^{137}Cs за границы хранилищ, особенно накопителей жидких отходов, и возможность их дальнейшей миграции.

Концентрация и распределение радионуклидов в пойменных почвах

Зона радиоактивного загрязнения поймы р. Енисей, включая острова, представляет береговую полосу шириной в 5-50 м, ограниченную максимальным уровнем паводковых вод. Так, содержание ^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$ и ^{241}Am в 0-5 см слое изменяется в интервале 0,1-0,8; 1,2-8,1 и 0,4-2,1 Бк/кг воздушно-сухой массы (лишь в одном образце содержание америция было найдено равным 7,9 Бк/кг). Отношение $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ в 0-5 см слое пойменных почв практически одинаково; однако на глубине 10-15 см отмечается существенное увеличение его значения (от 0,05-0,1 до 0,2-0,96). По данным других авторов плотность загрязнения пойменных почв двумя радионуклидами плутония в 5-10 км ниже сброса радиоактивных вод составляла 0,1-0,8 и 0,4-1,7 кБк/м², снижаясь по течению реки и повторяя картину загрязнения поймы ^{137}Cs [84].

Распределение всех ТУЭ по глубине пойменных почв неравномерно. Наблюдается как увеличение концентрации с глубиной, так и ее снижение. Характер распределения отдельных ТУЭ по почвенным профилям практически одинаков (наличие максимумов и минимумов в одних и тех же слоях). Однако между ними заметно проявляются количественные различия в концентрации в разных слоях. Похожий характер распределения ^{137}Cs , ^{60}Co , ^{152}Eu и ^{45}Mn с накоплением в верхнем слое и на глубине 20-35 см отмечается в почвенном профиле о. Белый. Более высокая концентрация ^{241}Am и величины отношений $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ в пойменных почвах о. Черемухов, расположенном на самом дальнем расстоянии от места сброса радиоактивных вод, связано, по всей вероятности с повышенной миграционной способностью америция. Выявленный характер распределения радионуклидов по профилю пойменных почв обусловлен, главным образом, свойствами самих радионуклидов, а также условиями формирования почв, гидрологическим режимом и другими природными факторами.

Сделанные ориентировочные оценки интенсивности миграции $^{239,249}\text{Pu}$ в пойменных почвах р. Енисей выявили два типа переноса: преобладающий медленный и быстрый с коэффициентами миграции $(1,4-5,3) \cdot 10^{-8}$ и $(24-132) \cdot 10^{-8}$ см²/с. В ранее исследованных нами негидроморфных почвах, отобранных в ближних зонах воздействия Белоярской и Ленинградской АЭС, на Восточно-Уральском следе, также были установлены два типа переноса с близкими к пойменным почвам р. Енисей значениями коэффициентов миграции. Отмечаемые в ряде случаев более высокие значения коэффициентов миграции плутония в пойменных почвах можно объяснить их гидроморфностью и повышенным содержанием природных водорастворимых органических - комплексообразующих лигандов.

Концентрация радионуклидов в донных отложениях р. Енисей

Дно реки Енисей покрыто в основном крупным песком, галькой, гравием, заилистыми песками разной крупности. Полученные данные по концентрации плутония в донных отложениях р. Енисей показали, что аналогично пойменным почвам она с удалением от источника сбросов загрязненных вод тоже снижается.

Исключением являются донные отложения проток Балчуковская и Хлоптуновская, в которых обнаружены самые высокие концентрации плутония, что связано, по всей вероятности, с застойными процессами в этих протоках. Имеются сведения, что гидрографические и гидрологические особенности р. Енисей приводят к накоплению донных отложений на таких участках, как протоки, ухвостья и др., где в наибольшей степени происходит разгрузка взвешенных наилок. Повышенные концентрации других

радионуклидов тоже отмечались в илистых донных отложениях. Можно предположить, что более высокое содержание плутония в донных отложениях у правого берега о. Атамановский связано со сбросом охлаждающих реакторную зону вод в 50-100 м от правого берега в 6 км выше от с. Атаманово.

В донных отложениях концентрация плутония выше, чем в верхних слоях пойменных почв. Сравнение концентрации $^{239,240}\text{Pu}$ в пойменных почвах и донных отложениях около островов Атамановский и Тарыгин также показали, что концентрация его в последних существенно выше.

Концентрация ^{241}Am практически одинакова на всем исследуемом участке реки. Отношение $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ возрастает с расстоянием, что может свидетельствовать о большей подвижности америция.

Полученные нами значения активности изотопов $^{239,240}\text{Pu}$ и ^{241}Am в донных отложениях Енисея на порядок превышают ранее опубликованные данные для пойменных почв [85]. Этот факт можно объяснить тем, что в нашем случае пробоотбор проводился в более стационарных зонах и это позволяет более корректно оценить запасы депонированных радионуклидов. Высокое значение ^{241}Pu в поверхностном слое донных отложений может свидетельствовать о существовании свежих сбросов трансурановых элементов с ГХК. На это указывает и отношение активностей изотопов плутония $^{241}\text{Pu} / ^{239,240}\text{Pu}$, которое изменяется от 2 до 6 для нижних слоев кернов района с.Б.Балчуг и для поверхностного слоя керна Е1599-2 это отношение равно 40.

Таким образом, проведенные исследования проб донных отложений реки Енисей выявили высокую удельную активность трансурановых элементов (^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$, ^{241}Am) - в 10 и более раз превышающие ранее опубликованные данные и в 100 и более раз - глобальный уровень. Впервые выполненные нами определения содержания трансурановых элементов ^{241}Pu и ^{237}Np в донных отложениях показали, что их активность остается высокой на расстоянии до 200 км по течению реки от ГХК [86]. Так, ^{237}Np обнаружен в одном из слоев донных отложений на расстоянии около 200 км по течению реки от ГХК и его активность равная 5.6 Бк/кг оказалась сопоставима с таковой для проб вблизи ГХК. Существование слоев донных отложений с аномально высокими значениями трансурановых элементов ($^{239,240}\text{Pu}$ - до 280 Бк/кг и ^{241}Pu - до 1429 Бк/кг) может свидетельствовать как о высокой миграционной способности актиноидов в экосистеме реки, так и о продолжающихся сбросах техногенных радионуклидов с ГХК.

Накопление техногенных радионуклидов водными организмами р. Енисей

Высокая аккумулирующая способность диатомовых водорослей и других гидробионтов по отношению к ряду радионуклидов в экосистеме реки Енисей была впервые показана в работах [87, 88]. Учитывая постоянное поступление в Енисей значительного числа как долгоживущих, так и короткоживущих радионуклидов, водная экосистема реки является уникальным объектом для изучения механизмов миграции различных радионуклидов в окружающей среде.

Сотрудниками Института биофизики СО РАН была изучена интенсивность накопления техногенных радионуклидов водными организмами как вблизи ГХК, так и на значительном расстоянии по течению р. Енисей. С 1997 по 2001 г. во время экспедиционных работ отбирались пробы воды и водных организмов р. Енисей как вблизи ГХК (села Атаманово, Бол. Балчуг, Усть-Кан), так и на значительном расстоянии по течению реки от ГХК (с. Захаровка - 194 км и с. Новоазимово - 510 км). Образцы водной растительности принадлежали к четырем видам: *Potamogeton lucens*, *Fontinalis antipyretica*, *Elodea canadensis*, *Ceratophyllum demersum*. В отдельных случаях пробу водного растения *Potamogeton lucens* при проведении измерений делили на части (листья, стебель, корень). Пробы водного животного были представлены видом *Phylolimnogammarus viridis* (гаммарус).

Радионуклидный состав водных растений, отобранных близ с. Атаманово, расположенного ориентировочно в 5 км от места сброса радиоактивных вод ГХК, приведен в **Табл. 7**. В водных растениях зарегистрированы многие радионуклиды, характерные для сбросных вод ФГУП «ГХК».

Из данных **Табл. 7** видно, что в водных растениях повышены концентрации радионуклидов ^{46}Sc , ^{51}Cr , ^{54}Mn , ^{58}Co , ^{60}Co , ^{65}Zn , а также присутствуют изотопы цезия и европия. Наиболее активно накапливает радионуклиды водное растение *Fontinalis antipyretica* (водный мох), в сухой биомассе которого максимальная удельная активность радионуклидов ^{60}Co и ^{137}Cs составляет 590 и 660 Бк/кг соответственно. Сравнительный анализ содержания радионуклидов в различных частях водного растения *Potamogeton lucens* (листья и стебель) показал, что удельная активность всех техногенных радионуклидов в листьях выше таковой в стеблях. Большая удельная активность только одного природного радионуклида ^{40}K наблюдается в стебле.

Таблица 7. Радионуклидный состав водных растений р. Енисей, отобранных в 2001 г. у с. Атаманово

Водное растение	<i>Potamogeton lucens</i> (листья)		<i>Potamogeton lucens</i> (стебель)		<i>Fontinalis antipyretica</i>		<i>Ceratophyllum demersum</i>	
	Бк/кг	±, %	Бк/кг	±, %	Бк/кг	±, %	Бк/кг	±, %
⁷ Be	100	10	50	11	310	10	100	7
²⁴ Na	2000	30	Не обн.	Не обн.	1850	48	1180	6
⁴⁰ K	810	6	1350	6	340	12	600	6
⁴⁶ Sc	33	5	13	6	174	4	50	4
⁵¹ Cr	690	6	400	6	540	7	400	6
⁵⁴ Mn	20	9	10	9	40	9	40	6
⁵⁸ Co	30	8	20	7	75	7	65	5
⁵⁹ Fe	20	13	5	20	55	7	20	6
⁶⁰ Co	180	4	120	4	460	4	440	4
⁶⁵ Zn	190	6	120	6	170	7	350	6
⁷⁶ As	440	32	Не обн.	Не обн.	Не обн.	Не обн.	100	11
⁹⁵ Zr	Не обн.	Не обн.	Не обн.	Не обн.	Не обн.	Не обн.	8	17
⁹⁵ Nb	7	18	4	17	16	16	8	10
⁹⁹ Mo	5	30	7	35	Не обн.	Не обн.	Не обн.	Не обн.
¹⁰³ Ru	5	20	2	30	11	20	6	10
¹⁰⁶ Ru	27	36	10	40	Не обн.	Не обн.	60	16
¹³¹ I	5	24	3	28	24	6	8	12
¹³⁷ Cs	23	8	20	7	90	9	20	7
¹⁴⁰ Ba	Не обн.	Не обн.	Не обн.	Не обн.	Не обн.	Не обн.	20	15
¹⁴⁰ La	25	7	17	6	40	8	23	5
¹⁴¹ Ce	16	11	8	9	40	12	25	6
¹⁴⁴ Ce	18	29	5	40	50	22	13	20
¹⁵² Eu	Не обн.	Не обн.	8	14	60	5	14	6
¹⁵⁴ Eu	Не обн.	Не обн.	Не обн.	Не обн.	17	23	Не обн.	Не обн.
²³⁹ Np	370	3	200	5	560	5	620	3

Примечание. Растения отобраны в сентябре 2001 г. Результаты приведены на дату отбора пробы.

Несмотря на то что в поверхностных слоях донных отложений и почвы поймы р. Енисей радионуклид ¹⁵²Eu по удельной активности доминировал среди других, он слабо накапливался водными растениями. В районе с. Захаровка радионуклиды активационного происхождения обнаружены только в листьях рдеста *Potamogeton lucens*. Сравнительный анализ удельной активности радионуклидов различных частей рдеста, отобранного в районе с. Захаровка, также показал, что листья более интенсивно накапливают радионуклиды, чем стебель (за исключением природного радионуклида ⁴⁰K). Однако по содержанию таких радионуклидов, как ⁶⁰Co, ¹³⁷Cs и ⁴¹K, листья и корни рдеста не отличаются.

Водное животное гаммарус (*Phylolimnogammarus viridis*), обитающее в зарослях водных растений, также содержит широкий спектр техногенных радионуклидов. Так,

удельная активность ^{51}Cr в биомассе гаммаруса достигает 2227 Бк/кг, что сопоставимо с содержанием этого радионуклида в водных растениях.

Радиохимический анализ сухой массы водных растений показал, что в них обнаружен ^{90}Sr и изотопы плутония. Максимальная удельная активность ^{90}Sr (до 12 Бк/кг) отмечена в стеблях рдеста, $^{239,240}\text{Pu}$ - в водном мхе (4,1 Бк/кг). Радиохимическими исследованиями установлено более высокое содержание изотопов $^{239,240}\text{Pu}$ для водного мха (3,4 Бк/кг) и выявлено наличие $^{239,240}\text{Pu}$ и ^{90}Sr в водных растениях, отобранных на разном расстоянии по течению реки от ГХК. В районе с. Захаровка на расстоянии около 200 км от места сброса в сухой массе водного растения также обнаружены $^{239,240}\text{Pu}$ и ^{90}Sr .

Полученные в работе [80] данные по содержанию радионуклидов в пробах водных растений и зоопланктона в дальнейшем были использованы авторами для расчета коэффициентов накопления (КН). Величину КН авторы [80] рассчитывали как отношение содержания радионуклида в сухой биомассе гидробионта (Бк/кг) к содержанию радионуклида в воде (Бк/л). Среди видов водных растений наибольшими КН основных радионуклидов характеризуется *Fontinalis antipyretica* (водный мох). Некоторые радионуклиды, в частности ^{65}Zn , более интенсивно накапливаются роголистником и листьями рдеста, чем водным мхом. Для водного животного гаммарус КН радионуклидов ^{46}Sc , ^{51}Cr и ^{65}Zn близки к 1000 и даже более, следовательно, гаммарус не уступает водным растениям по накоплению отмеченных радионуклидов.

Полученные в работе [80] данные по содержанию радионуклидов в водных растениях свидетельствуют о высокой аккумулирующей способности гидробионтов р. Енисей по отношению ко многим радионуклидам необходимо учитывать при миграции радионуклидов по пищевым цепям.

Формы нахождения радионуклидов в морской среде

Арктический бассейн является активным звеном глобального круговорота вещества и формирования климата Земли. Для России Арктический бассейн имеет особое значение. Его ресурсы, экологическое состояние, факторы, определяющие климат, оказывают прямое влияние на экономику и условия жизни на огромной территории страны, примыкающей к Арктическому бассейну [89].

Для радиоэкологических исследований особый интерес представляет Карское море. Карское море получает огромный речной сток. Суммарный сток Оби, Енисея и ряда других, средних и малых рек составляет около 1350 км³ в год, что соизмеримо с общим речным стоком во все остальные российские Арктические моря: Баренцево, Белое,

Лаптевых. Восточно-Сибирское и Чукотское (около 1420 км³ в год). Вместе со стоком речных вод в море поступают радионуклиды из различных источников, включая Маяк и ГХК. Кроме того Новая Земля в 60-е годы была полигоном для испытаний ядерного оружия. В заливах Кольского полуострова располагаются места базирования военных и гражданских судов с ядерными энергетическими установками, а также сопутствующая им инфраструктура - хранилища различных типов радиоактивных отходов и отработанного топлива, места стоянки списанных судов, требующих выгрузки ядерного топлива и дальнейшей утилизации. На восточном побережье Новой Земли захоронялись контейнеры с радиоактивными отходами и судовые атомные реакторы [90]. Подробно источники радиоактивного загрязнения Карского моря рассмотрены в главе 2.

На поведение радионуклидов в арктической морской воде влияют низкие температуры, преимущественно окислительный режим в водах и поверхностных осадках, специфическая биопродуктивность, ледовый покров.

В 1995 году в ГЕОХИ РАН были начаты исследования влияния стока Сибирских рек на биогеохимическое и радиоэкологическое состояние Карского моря, продолженные затем в рамках международного проекта SIRRO. В ходе этих исследований было предпринято 6 международных экспедиций на борту научно-исследовательского судна "Академик Борис Петров". Предварительные данные, опубликованные в 1996 году после завершения первой экспедиции [91], позволили получить представление о биогеохимических особенностях Карского моря, в том числе изотопном составе органического углерода, и уникальные сведения о поведении радионуклидов. В обзорной статье Э.М. Галимова с сотрудниками ГЕОХИ РАН [92], были подытожены основные результаты исследований, проводившихся в Институте геохимии и аналитической химии им. В.И. Вернадского по материалам экспедиций периода 1995-2003 гг. на борту НИС "Академик Борис Петров" в Карском море и низовьях рек Обь и Енисей.

Из литературных данных известно [93], что концентрация ^{239,240}Pu в воде и донных отложениях морей и океанов колеблется в широких пределах. Так, содержание ^{239,240}Pu в донных отложениях изменяется от 0.1 до 6.8 Бк/кг, в морской воде - от 0.7×10^{-6} до 240×10^{-6} Бк/л. Концентрация ²³⁸Pu и ^{239,240}Pu в водах Средиземного моря составляет $(11.1 \pm 0.4) \times 10^{-6}$ и $(33-44) \times 10^{-6}$ Бк/л, соответственно. На основании данных, полученных во время экспедиции 1993 г., установлено, что в донных отложениях, отобранных на 2 станциях в Баренцевом и 11 станциях в Карском морях, плотность загрязнения ^{239,240}Pu составляет 2.5-24.0 Бк/м², в западной части пролива Карские ворота - 135 Бк/м². Содержание плутония в воде этих море составляло 1.8-16 Бк/л. Основное количество плутония (>99%) сосредоточено в донных отложениях, так как установлено, что он быстро поглощается

взвешенным материалом и осаждается на морское дно. Коэффициент накопления его в морских осадках колеблется в пределах 2×10^2 - 2×10^5 . Отмечена миграция плутония в вертикальных профилях донных осадков с поверхности до глубины 10-12 см.

Содержание плутония в морской воде, отобранной с поверхности (поверхностная вода) и батометром вблизи дна (придонная вода) во время экспедиций 1995-2003 года для 21 станции отбора, составляло $(30-95) \times 10^{-6}$ Бк/л и $(35-567) \times 10^{-6}$ Бк/л, соответственно. Концентрация плутония в поверхностной воде Карского моря вблизи восточного побережья островов Новой Земли, незначительно превышает фоновое содержание плутония, обусловленное глобальными радиоактивными выпадениями. Содержание плутония в поверхностной воде Баренцева и Норвежского морей близко к пределу обнаружения этого изотопа, в Северном море оно колеблется в пределах $(20-85) \times 10^{-6}$ Бк/л. Содержание плутония в придонной морской воде Карского моря значительно выше и изменяется в широких пределах, что может быть обусловлено в некоторых случаях присутствием взвесей донных отложений в пробах воды.

Наблюдаются заметные колебания в содержании плутония в поверхностной воде Карского моря. Так, наибольшие концентрации найдены вблизи южной оконечности островов Новая Земля, в придонной морской воде - в устьях рек Енисей и Обь, а также в заливе вблизи юго-восточной части полуострова Ямал.

Содержание ^{238}Pu в поверхностной и придонной морской воде Карского и других морей Северного региона в большинстве отобранных образцов находилось ниже предела обнаружения. Отношение $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ достигало в некоторых образцах 0.4-0.6, что указывает на вклад радиоактивных отходов, поступающих в моря Северного региона из разных источников.

Для радионуклидов цезия и плутония характерно преимущественное накопление в донных отложениях. Было установлено, что суммарная концентрация ^{238}Pu и $^{239,240}\text{Pu}$ в верхнем 0-2-сантиметровом слое донных отложений Карского моря составляет 0.8-12.4 Бк/кг и в основном находится в пределах колебания глобального фона в донных отложениях морей и океанов Северного полушария. Наибольшее содержание плутония (12.4 и 12.2 Бк/кг) найдено в донных отложениях в западной части Карского моря, а также в устьях рек Енисей и Обь. Следует отметить, что похожая картина наблюдается и для пространственного распределения ^{137}Cs , что может свидетельствовать о влиянии одних и тех же источников радиоактивного загрязнения на распространение этих радионуклидов в донных отложениях Карского моря.

Отношение $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ в донных отложениях Карского моря изменяется в пределах от 0.2 до 1.0, при этом наиболее высокие значения обнаружены вблизи восточного побережья Новой Земли.

Содержание плутония в донных отложениях Баренцева моря не превышает глобального фона.

Формы нахождения радионуклидов определяли методом ультрафильтрации. При определении радиоцезия в филтрате после мембран не было зафиксировано разницы в содержании радиоцезия в исходной пробе и филтрате, что может свидетельствовать о незначительном образовании комплексов цезия с растворенным в воде органическим веществом (Табл. 8). Для плутония-239,240 установлено, что значительная часть этого радионуклида находится в связанном состоянии с растворенными фракциями органического вещества и в виде полимерных гидролизованных форм. Однако образование последних маловероятно, из-за низкой весовой концентрации плутония в воде. Удивительно, что стронций также в значительной степени находится в виде коллоидных форм. В поверхностных пресноводных экосистемах стронций слабо связан с коллоидными частицами (см. предыдущие разделы).

Таблица 8. Содержание радионуклидов в водной фазе после фильтрации и ультрафильтрации водных проб.

Станция №	Горизонт, м	Соленость, %	Активность Cs-137, Бк/м ³		
			Исходная вода	Вода после фильтрации (0.2 мкм)	Вода после ультрафильтрации (2000 Da)
01-70	3	1.5	2.2 ± 0.4	2.0 ± 0.2	2.0 ± 0.2
01-25	3	17.0	4.8 ± 0.9	4.6 ± 0.4	4.5 ± 0.4
01-11	3	<0.1	6.0 ± 0.5	5.1 ± 0.5	5.2 ± 0.5
01-46	3	24.5	4.9 ± 0.5	4.6 ± 0.5	4.6 ± 0.5
Станция №	Горизонт, м	Соленость, %	Активность Sr-90, Бк/м ³		
			Исходная вода	Вода после фильтрации (0.2 мкм)	Вода после ультрафильтрации (2000 Da)
01-72	3	<0.1	9.7 ± 1.9	8.0 ± 1.6	5.9 ± 1.2
00-40	3	9.3	6.0 ± 1.2	5.7 ± 1.1	2.6 ± 0.5
00-19	3	<0.1		4.2 ± 0.8	1.9 ± 0.4
00-05	3	33	0.9 ± 0.2	1.0 ± 0.2	0.6 ± 0.1
Станция №	Горизонт, м	Соленость, %	Активность Pu-239, 240 мБк/м ³		
			Исходная вода.	Вода после фильтрации (0.2 мкм)	Вода после ультрафильтрации (2000 Da)
01-08	28	<0.1	31.6 ± 6.3	24.2 ± 4.5	22.6 ± 4.5
01-72	3	<0.1	32.0 ± 6.4	29.2 ± 6.0	28.3 ± 5.6

Было также показано, что сорбционная активность осадков по отношению к цезию-137 зависит и от литологического состава образца. В акваториях захоронения твердых радиоактивных отходов в мелководных заливах архипелага Новая Земля, в местах максимального загрязнения донных осадков, в заливах Стенового и Абросимова, были отобраны поверхностные пробы осадков, с которыми проводились исследования по анализу сорбционной активности донных осадков к различным радионуклидам. Было показано, что значения коэффициентов распределения для кинетических профилей адсорбции радионуклида цезия-137 осадками из этих двух заливов значительно различаются. При этом, более высокие значения коэффициентов распределения были получены для проб осадков, отобранных из залива Абросимова, хотя в осадках из залива Стенового преобладают глинистые частицы более мелкой размерности.

Поскольку основная часть активности цезия, находится в средних, по размерности частиц, фракциях образцов, очевидно, что, в данном случае, более значимым фактором влияния на значение коэффициента равновесного распределения является различие в литологическом составе осадков из этих двух заливов. Цезий-137, в отличие от других радионуклидов, участвует не только в ионнообменных и сорбционных взаимодействиях с глинистыми частицами, но способен селективно проникать в межслоевые пространства слоистых глинистых минералов (иллит, смектит, монтмориллонит). Позиции цезия внутри кристалла оказываются наиболее прочными, осадки, содержащие слюдистые материалы, являются ловушками для цезия-137. В практическом плане, полученная разница в значениях коэффициентов равновесного распределения радиоцезия для осадков из заливов Абросимова и Степового может означать, что в местах захоронения, при прочих равных условиях часть цезия-137 может распространяться от источника радиоактивного загрязнения на более далекие расстояния в заливе Степового по сравнению с заливом Абросимова.

Во время другой экспедиции [94] были определены концентрации изотопов плутония в заливах Ога, Цивольки, Степового и Абросимова (Карское море) и процентное содержание плутония в коллоидной фракции (0,5 мкм – 15 кД). До 30 % плутония в поверхностной воде заливов Карского моря было связано с коллоидными частицами размером от 0,5 мкм до 15 кД. Была предпринята попытка разделить полученный материал по фракциям по размеру частиц с помощью лабораторной ультрафильтрационной установки. Для этого 250- 300 мл отфильтрованной пробы пропускали в тангенциальном режиме через систему фильтров с размером пор 500, 300, 100, 30, 10 кД. Однако оказалось, что часть плутония связанная с коллоидами была практически равномерно

распределена между фракциями. Это также существенно отличает поведение плутония в морской среде от поведения в пресноводных водоемах (см. предыдущие разделы).

Соотношение $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ в исходной пробе морской воды варьировалось в пределах 0,1 – 0,32, что гораздо выше значения, характерного для глобальных выпадений (~0,04) и более близко к значениям выбросов с предприятий ЯТЦ (0,2). Однако маловероятно влияние удаленных источников на небольшие и достаточно изолированные заливы Новой Земли. Поскольку в данных заливах проводилось затопление твердых радиоактивных отходов, было бы логичнее предположить наличие локального источника проникновения плутония в морскую среду, например, негерметичность затопленных контейнеров. Соотношение $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ в коллоидной фракции соответствовало значению для исходной пробы. Однако в фильтрате наблюдалось повышенное значение отношения $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ (2,4-2,6). Это может свидетельствовать о том, что изотопы плутония поступают в данную акваторию в различных физико-химических формах.

Несколько отличающиеся результаты были получены при последовательной ультрафильтрации проб воды из Белого моря. Как было установлено, только 18 – 20 % плутония связано с коллоидным материалом в открытой части моря и около 70% плутония найдено в коллоидной фракции в эстуарной зоне (Двинской залив). Тенденция к увеличению доли коллоидного плутония с приближением к зоне смешения река-море согласуется с данными, полученными ранее другими авторами для эстуарных зон [95] и объясняется увеличением общей концентрации взвешенного материала в воде и интенсивными процессами осаждения и коагуляции взвешенного и коллоидного материала в зоне смешения.

Другим важным направлением исследования поведения плутония в различных водных экосистемах является определение его состояния окисления. Согласно расчетным данным, в морской, океанической и грунтовых водах преобладающей формой растворенного плутония должен является Pu(IV), тогда как в ручьях и дождевой воде преобладает Pu(V). Однако ряд исследований показал, что наиболее стабильной растворенной формой плутония в морской воде является Pu(V) [96], в то время как Pu(IV) представляет доминирующую форму плутония, связанную со взвешенными минеральными частицами [97]. В **Таблице 9** приведены данные по соотношению окисленных и восстановленных форм плутония в природных водах [98]. В трасерных (нмоль/л) концентрациях в условиях, близких к нейтральным, Pu(V) является доминирующим состоянием окисления плутония во множестве природных водных систем.

Таблица 9. Состояние окисления плутония в природных водах, %.

Вода	Pu(III)+Pu(IV)	Pu(V)	Pu(VI)
Дождевая вода	34	66	
Средиземное море	42	58	
Ирландское море	23	77	0
Тихий океан	39	52	9
	40	46	14
Озеро Мичиган	13	87	0

Еще одним фактором, влияющем на состояния окисления актинидов, является воздействие микробиологического сообщества подземных вод на формы нахождения радионуклидов (биотрансформация). Так, в работе [99] установлено, что в составе пластовой микрофлоры обнаружены микроорганизмы, способные участвовать в преобразовании химических и радиоактивных компонентов отходов. Денитрифицирующие бактерии восстанавливали нитрат-ионы до N_2 . Бактерии рода *Shewanella* и сульфатредуцирующие бактерии восстанавливали $^{233}U(VI)$ и $^{237}Np(V)$ в присутствии разных органических субстратов, что свидетельствует о возможном участии их в осаждении и концентрировании радионуклидов в глубинном хранилище [100]. Обнаружены бактерии *Klebsiella oxytoca*, способные окислять сульфид железа за счет восстановления нитрат- до нитрит-иона, и таким образом способствовать растворению труднорастворимых соединений металлов и их дальнейшей миграции.

Аэробные бактерии сорбировали (аккумулировали) актиниды и другие трансурановые элементы, входящие в состав отходов - ^{238}Pu , ^{237}Np , ^{233}U , ^{241}Am и ^{90}Sr , и не сорбировали ^{137}Cs и ^{99}Tc . Максимум сорбции ^{237}Np наблюдается при pH 7-9; а ^{238}Pu , ^{241}Am и ^{233}U при pH 3-5. Показано, что в сорбции урана клетками грамотрицательных бактерий *P. fluorescens* и *P. grimontii* участвуют органические фосфаты. Выявлен конкурентный характер биосорбции ^{238}Pu , ^{241}Am и ^{237}Np из карбонатных растворов, близких по составу пластовой воде, что в целом позволяет считать незначительным вклад биосорбции в концентрирование радионуклидов в глубинном хранилище жидких радиоактивных отходов.

Исследованию биогенных наночастиц, образующихся в процессе жизнедеятельности микроорганизмов и бактерий, посвящены многие опубликованные работы. В настоящем обзоре внимание сфокусировано только на исследованиях, выполненных с привлечением метода EXAFS для исследования локальной структуры образующихся частиц. В работах [101] и [102] описаны восстановительные свойства бактерии *Shewanella* по отношению к раствору уранила. Авторы работы [101] структуру и

свойства образующихся наночастиц исследовали как после удаления органического вещества из системы, так и без его удаления. В работе задействован значительный арсенал методов: РФА, РФЭС, ПЭМ, EXAFS. Результаты электронной микроскопии позволили установить размер образующихся частиц, который составил 5-10 нм. Результаты РФЭС подтвердили протекание процесса восстановления $U(VI) \rightarrow U(IV)$ в системе. Судить о структуре частиц образующихся оксида урана(IV) стало возможным только на основании результатов, полученных методом EXAFS. Соответствующие спектры биогенных наночастиц в сравнении с полученными для макрокристаллического образца диоксида урана, приведены на **Рис. 16**. Представленные результаты являются свидетельством того, что наночастицы оксида урана(IV) образующиеся при биогенном восстановлении урана из раствора уранила имеет структуру диоксида урана.

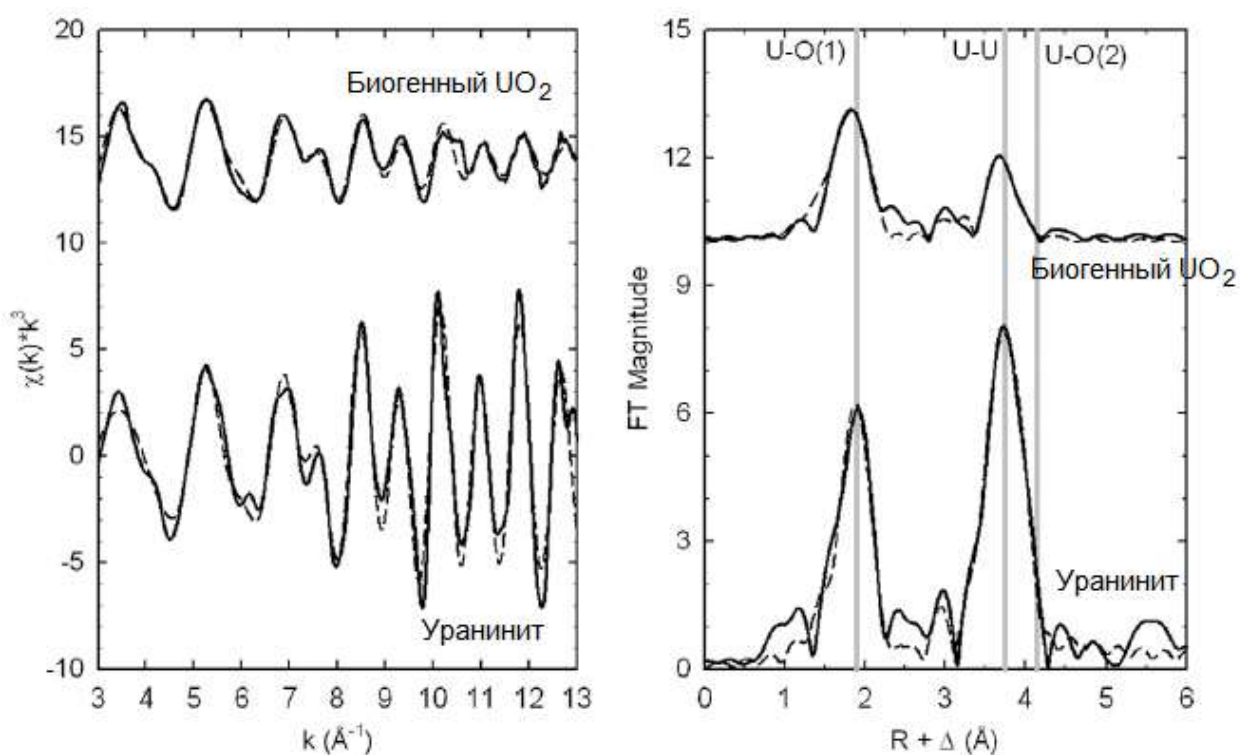


Рис. 16. Результаты EXAFS для биогенных наночастиц диоксида урана и макрокристаллического образца диоксида урана показаны непрерывной линией и результаты расчетов пунктирной линией. Слева результаты показаны в k -пространстве, справа – после преобразования Фурье.

Как видно из таблицы расстояния U-U и U-O, рассчитанные по результатам РСП, несколько ниже, чем аналогичные для макрокристаллического образца диоксида урана использованного в качестве стандарта при измерениях. Наличие органического вещества на поверхности наночастиц диоксида урана значительно увеличивает их стабильность во времени, удаление органических веществ способствует их агрегации в более крупные

кристаллиты. Кроме исследования структуры наночастиц диоксида урана, формирующихся в процессе биогенного восстановления авторы работы, [100] уделили значительное внимание его сорбционным свойствам и распределению сорбционных центров на поверхности. Авторы исследовали взаимодействие Zn(II) с макрокристаллически образцом и с наночастицами, результаты проведенного исследования доказали, что в обоих случаях механизм взаимодействия и структура образующихся на поверхности комплексов одинаковы. Такого достоверного доказательства авторам работы удалось добиться за счет использования метода EXAFS и измерения образцов как на L_{III} крае поглощения урана, так и на K крае поглощения Zn.

В статье Бургоса с соавторами [101] были проведены аналогичные исследования восстановительных свойств бактерии *Shewanella* по отношению к раствору уранила. Размер образующихся частиц, определенный методом ПЭМ, составил 3 нм. Изображение накопления урана бактериями, полученное методом ПЭМ, показано на **Рис. 17**.

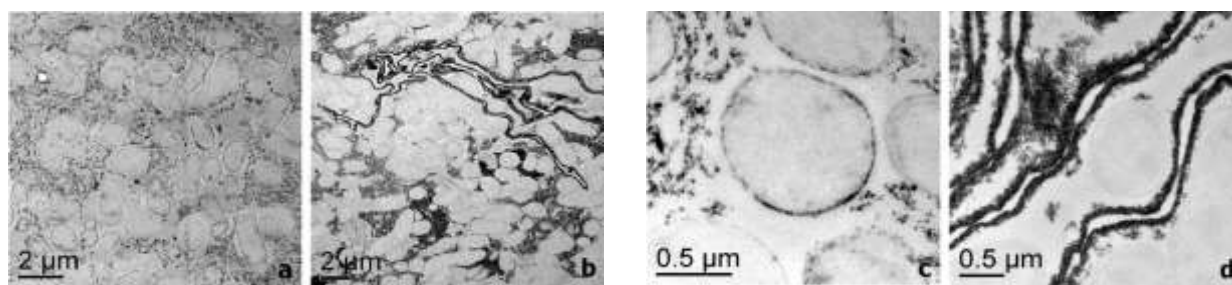


Рис. 17. Изображения бактерий *Shewanella* после контакта с раствором уранила, полученные методом ПЭМ.

Использование метода XANES позволило определить валентность урана в составе образующихся частиц. Форма и интенсивность максимума поглощения полученного для наноразмерных частиц и макрокристаллического образца диоксида урана совпадают. Лучшего согласования результатов моделирования формы максимума поглощения для образующихся наночастиц удалось добиться с использованием исходного размера кластеров диоксида урана, равного $2,2 \pm 1$ нм. Таким образом возможность существования истинных коллоидов урана в восстановительных средах в присутствие микробиологического сообщества подтверждается модельными экспериментами.

2.1.3. Выводы.

Как показывают полученные данные по формам нахождения радионуклидов в различных экосистемах, в целом первоначальные формы радионуклидов быстро изменяются под воздействием биогеохимических процессов. Основным депо

радионуклидов в поверхностных экосистемах являются почвы и донные отложения. Причем подвижность радионуклидов выпавших на почвы в растворимой форме достаточно быстро становится равной подвижности радионуклидов, выпавших в слаборастворимых формах. Этому способствует прочная связь радионуклидов с компонентами почв, например, радиоцезий сорбируется глинистыми минералами, плутоний и ТПЭ органическим веществом почв.

Динамика миграции радионуклидов в пресноводных экосистемах существенно зависит от гидрохимического режима водоемов. В реке Енисей наблюдается перенос нерастворимых горячих частиц микронного размера и загрязненных илов на десятки километров от источника загрязнения. Быстрое изменение форм нахождения радионуклидов и перенос со взвешенным веществом характерен также для морских экосистем.

В подземных средах при проникновении растворимых форм по гидросистеме наиболее эффективным геохимическим барьером является взвешенное вещество подземных вод и вмещающие породы. Мелкодисперсные коллоидные частицы и комплексообразующие вещества (низкомолекулярные органические и неорганические вещества, фульвокислоты), способствуют миграции за счет ускоренного (коллоидного) транспорта радионуклидов. На больших глубинах в анаэробных условиях подвижность урана и трансурановых элементов невелика за счет прочной связи с крупнодисперсными частицами.

2.2. Постановка направлений и задач исследования

Цель работы разработать модели миграции экотоксикантов и методы реабилитации окружающей среды на основе создания базы данных по коэффициентам накопления и формам нахождения наиболее токсичных альфа-излучающих радионуклидов различными компонентами биогеоценозов в зависимости от генезиса и абиотических факторов последних.

Основными задачами, решаемыми в ходе выполнения проекта, станут:

- Исследование миграции $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am , и ^{237}Np в системе почва-травянистая и древесная растительность в зависимости от следующих параметров: pH; Eh; содержание солей; содержание органических компонентов (гуминовых и фульвокислот); температура; содержание фосфора, азота и кремния.

- Создание банка данных по коэффициентам накопления актинидов различными объектами биогеоценозов.

- Разработка в соответствии с полученными данными способов повышения чувствительности мембранно-люминесцентного определения актинидов

- Изучение процессов биотрансформации (изменения физико-химических форм нахождения актинидов) под воздействием компонентов биогеоценозов.

Для проведения исследований планируется применять принципы ландшафтно-геохимический метода исследования обменных процессов. Этот метод позволяет прослеживать трансформацию компонентного состава ландшафта на уровне химических реакций, движения химических элементов, выявлять причинно-следственные связи в процессе функционирования и динамики природного комплекса.

Будут проводится исследования химического состава всех компонентов ландшафта (горных пород, коры выветривания, поверхностных и подземных вод, почв, растительности) с последующим сравнением полученных результатов между собой как в пределах одного элементарного ландшафта, так и смежных с ним.

Особое внимание будет уделено геохимическим барьерам –участкам ландшафта, где на малом расстоянии происходит резкое уменьшение интенсивности миграции химических элементов и, как следствие, их концентрация аномально высокая. Последние относятся и к экотоксикантам.

План работ включает обор образцов в соответствии с принципами ландшафтно-геохимических исследований, их классификацию специалистами (почвоведрами, биологами, геохимиками), химический, элементо-органический и радиохимический анализ. На последующих этапах планируется применение спектральных методов определения и химических методов фракционирования форм нахождения актинидов (см. Экспериментальную часть).

2.3. Отбор и классификация образцов для исследования.

Для проведения исследований были выбраны следующие загрязненные радионуклидами экосистемы:

1. Почвы и приповерхностные грунтовые воды Кирово-Чепецкого химического комбината.

2. Керны пород, взвешенное вещество и подземные грунтовые воды промплощадки ФГУП ПО Маяк.

3. Пластовые воды и взвешенное вещество, из глубинных наблюдательных скважин ФГУП СХК.

4. Вода, взвеси, донные отложения, пойменные почвы и водная растительность реки Енисей вблизи ФГУП ГХК.

5. Вода и биота реки Теча вблизи ФГУП ПО Маяк и почвы ВУРС.

6. Наземная растительность и почвы Брянской области, загрязненные в результате аварии на ЧАЭС.

7. Морская вода и взвешенное вещество Белого, Баренцева и Карского морей.

Ниже приведены описание и данные по составу образцов, отобранных к настоящему времени:

2.3.1. Почвы и приповерхностные грунтовые воды Кирово-Чепецкого химического комбината.

2.3.1.1. Содержание техногенных радионуклидов

Таблица 10. Содержание техногенных радионуклидов в исследуемых почвах и водах.

№п/п	Скважина, 3-934	Интервал, м	Тип почвы	²³⁹ Pu, Бк/кг	¹³⁷ Cs, Бк/кг	⁹⁰ Sr, Бк/кг
1		0,2	Растительность*	7,6±0,4	790±39	107,8±10,8
2		0,5	Песок	28,6±1,6	12,3±1,3	12,4±1,9
3		0,7	Глина	9,2±0,6	11,2±1,1	14,8±2,1
4		1,8	Песок	15,1±1,4	24,0±2,2	19,1±2,5
5		2,8	Песок	0,22±0,06	10,1±1,0	16,1±2,1
6		3,8	Песок	0,21±0,06	275±14	32,8±3,6
7		4,8	Песок	11,5±1,1	375±18	7,0±1,4
8		5,8	Песок	0,23±0,06	57,4±4,1	20,3±2,5
9		6,8	Песок	12,1±1,5	46,2±3,2	7,7±1,4**
10		8,2	Глина	3,9±0,4	7,4±0,7	2,0±0,4

№п/п	Скважина, 3-936	Интервал, м	Тип почвы	²³⁹ Pu, Бк/кг	¹³⁷ Cs, Бк/кг	⁹⁰ Sr, Бк/кг
11		1	Растительность*	5,3±0,4	8,5±0,8	7,8±1,4
12		2	Песок с глиной	8,2±0,9	4,4±0,4	5,6±0,8
13		3	Песок	4,7±0,5	4,3±0,4	2,9±0,4
14		4	Песок	2,0±0,2	3,5±0,4	2,5±0,4
15		5	Песок	6,9±0,8	16,0±1,1	12,0±1,9
16		6	Песок	2,2±0,3	3,4±0,3	6,9±**1,5
17		7,8	Глина	0,85±0,15	2,1±0,2	3,5±0,4

№п/п	Скважина, 3-939	Интервал, м	Тип почвы	²³⁹ Pu, Бк/кг	¹³⁷ Cs, Бк/кг	⁹⁰ Sr, Бк/кг
18		0-0,5	Песок	118±15	1710±51	3,3±0,5
19		0,5-1,0	Песок	18,4±1,5	356±18	7,9±1,4
20		1,0-1,5	Песок	3,6±0,5	76,3±5,3	6,9±1,5
21		1,5-2,0	Песок	3,5±0,5	88,4±6,2	8,7±1,2
22	Пр.5	2,0-2,5	Песок	1,44±0,24	20,8±1,7	9,6±1,1
23	Пр.6	2,5-3,0	Песок	10,1±0,4	9,2±0,7	7,4±1,3**
24	Пр.7	3,0-3,5	Песок	0,7±0,2	8,3±0,8	36,1±3,9
25		4,5-5,0	Песок	1,0±0,1	9,6±0,9	23,5±2,5
26		6-6,5	Песок	12,1±0,5	4,2±0,4	41,5±4,2
27		7,5-8,0	Песок	1,6±0,4	4,1±0,4	12,1±1,9

№п/п	Скважина, 3-940	Интервал, м	Тип почвы	²³⁹ Pu, Бк/кг	¹³⁷ Cs, Бк/кг	⁹⁰ Sr, Бк/кг
28	Пр.1	0-0,5	Песок	10,5±0,8	146±9	8,8±1,2**
29	Пр.2	0,5-1,0	Песок	0,48±0,09	8570±171	5,4±0,8
30	Пр.3	1,0-1,5	Песок	5,9±0,7	11,3±0,9	3,2±0,4**
31	Пр.4	1,5-2,0	Песок	7,0±0,6	3,4±0,3	2,1±0,4
32	Пр.6	2,0-2,5	Песок	0,21±0,07	3,0±0,3	1,2±0,2**
33	Пр.6	2,5-3,0	Песок	1,01±0,11	3,3±0,3	8,5±1,1
34	Пр.7	3,0-3,5	Песок	10,4±0,7	9,6±0,9	19,0±2,0
35	Пр.10	4,5-5,0	Песок	2,02±0,32	14,8±1,2	6,3±0,8**
36	Пр.11	5,0-5,5	Песок	0,23±0,06	7,0±0,6	3,7±0,4
37	Пр.13	6,0-6,5	Песок	0,72±0,15	1,02±0,02	2,6±0,5**

№п/п	Скважина, 3-941	Интервал, м	Тип почвы	²³⁹ Pu, Бк/кг	¹³⁷ Cs, Бк/кг	⁹⁰ Sr, Бк/кг
38		0,1	Суглинок	6,64±0,53	127±8	4,0±0,6
39		1,1	Песок	6,7±1,3	2,0±0,2	4,0±0,6
40		2,1	Песок	0,21±0,06	3,1±0,3	16,0±2,1
41		3,1	Песок	11,1±0,78	1,2±0,1	5,4±0,8
42		5,1	Песок	2,8±0,3	0,9±0,1	0,34±0,09
43		11,5	Глина	0,16±0,02	9,5±0,9	0,27±0,07

№п/п	Скважина, 3-942	Интервал, м	Тип почвы	²³⁹ Pu, Бк/кг	¹³⁷ Cs, Бк/кг	⁹⁰ Sr, Бк/кг
44	Пр.1	0,2	Суглинок	12,7±0,8	16,9±1,4	7,0±1,1
45	Пр.3	2,2	Песок	0,21±0,06	8,4±0,7	1,3±0,3
46	Пр.4	3,2	Песок	8,3±0,7	2,9±0,3	12,3±1,6
47		5,2	Песок	3,9±0,7	13,1±1,0	33,0±3,6
48		11,2	Глина	1,2±0,2	9,6±0,9	1,2±0,3

№п/п	Скважина, 955-3	Интервал, м	Тип почвы	²³⁹ Pu, Бк/кг	¹³⁷ Cs, Бк/кг	⁹⁰ Sr, Бк/кг
49		0,4	Растительность*	1,21±0,17	16,9±1,4	28,0±3,1
50		1,4	Песок	17,9±1,2	29,9±2,1	12,1±1,6
51		2,4	Песок	0,41±0,03	2,1±0,2	0,36±0,09
52		3,4	Песок	2,0±0,3	7,9±0,7	8,0±1,1
53		4,4	Песок	1,0±0,2	6,5±0,6	24,0±2,9
54		5,4	Песок	0,22±0,06	3,1±0,3	38,0±3,7
55		6,4	Песок	0,85±0,12	2,1±0,2	0,45±0,08
56		7,4	Песок	0,71±0,17	0,21±0,04	2,3±0,4
57		8,4	Песок	0,21±0,06	2,0±0,3	45,0±4,4
58		15,4	Глина	1,62±0,24	4,9±0,5	1,2±0,3

№п/п	Скважина, 956-3	Интервал, м	Тип почвы	²³⁹ Pu, Бк/кг	¹³⁷ Cs, Бк/кг	⁹⁰ Sr, Бк/кг
59		0,5	Песок	16,0±1,5	3,4±0,4	12,1±1,5
60		1,5	Песок	0,22±0,06	18,7±1,5	16,0±1,9
61		2,5	Песок	0,22±0,06	0,31±0,04	2,0±0,4**
62		3,5	Песок	16,2±1,1	3,8±0,4	0,6±0,2
63		4,5	Песок	16,7±1,1	20,7±1,7	24,0±3,1**
64		5,5	Песок	4,6±0,6	1,9±0,3	12,0±1,6
65		6,5	Песок	0,21±0,06	0,21±0,04	6,3±1,1**
66		7,5	Песок	1,0±0,2	3,3±0,4	0,78±0,16
67		8,5	Песок	0,21±0,06	4,4±0,5	22,0±2,9
68		15,5	Глина	0,81±0,14	9,2±0,9	14,5±1,5

№п/п	Скважина, 957-3	Интервал, м	Тип почвы	²³⁹ Pu, Бк/кг	¹³⁷ Cs, Бк/кг	⁹⁰ Sr, Бк/кг
69		0,7	Песок	1,05±0,26	8,6±0,9	7,0±1,1**
70		1,7	Песок	1,51±0,28	10,4±0,8	12,6±1,5
71		2,7	Песок	3,7±0,4	2,2±0,4	21,1±2,9
72		3,7	Песок	0,21±0,06	2,3±0,4	12,9±1,1
73		5,7	Песок	10,3±1,1	9,3±1,4	12,0±1,2
74		15,8	Глина	0,56±0,15	3,3±0,4	12,0±1,2

№п/п	Скважина, 958-3	Интервал, м	Тип почвы	²³⁹ Pu, Бк/кг	¹³⁷ Cs, Бк/кг	⁹⁰ Sr, Бк/кг
75		0,4	Песок	35,2±2,5	2,8±0,3	24,0±2,5
76		1,4	Песок	2,5±0,4	19,2±1,5	12,8±1,4
77		2,4	Песок	1,9±0,4	1,8±0,4	2,0±0,3
78		3,4	Песок	7,7±0,7	0,34±0,07	0,21±0,05
79		4,4	Песок	0,21±0,06	2,7±0,4	5,0±0,9
80		16,4	Глина	1,2±0,2	7,2±0,6	0,45±0,09

Примечание:

- * Образец скорее растительности, а не торфа. Высушена до воздушно-сухого состояния. Масса образца 14,3 г. Весь образец озолили при 560° С. Масса после озоления 4,3 г.
- Стронций определяли после отделения плутония, кроме образцов, помеченных **
- Суммарное содержание ²³⁸Pu и ²⁴¹Am не превышает 0,0025 Бк/л (предел обнаружения).

Таблица 11. Вода, соответствующая скважинам таблицы 10.

№п/п	Скважина	Взято на анализ, мл	²³⁹ Pu, Бк/л	¹³⁷ Cs, Бк/л	⁹⁰ Sr, Бк/л
1	934	200	(2,7±0,8) 10 ⁻²	5,2±0,4	0,32±0,06
2	936	200	<(3,0±0,2) 10 ⁻³	4,3±0,4	1,0±0,2
3	939	200	<(3,0±0,2) 10 ⁻³	3,3±0,3	1,7±0,3
4	940	400	0,45±0,02	4,1±0,4	0,21±0,05
5	941	400	(1,8±0,1) 10 ⁻²	3,8±0,3	0,31±0,06
6	942	200	<(3,0±0,2) 10 ⁻³	7,4±0,6	0,51±0,08
7	955	300	(7,2±0,5) 10 ⁻²	4,5±0,4	0,21±0,05
8	956	400	0,12±0,06	4,3±0,4	0,22±0,06
9	957	200	0,63±0,09	4,1±0,4	5,5±0,8
10	958	200	0,69±0,15	4,1±0,4	9,1±1,1

2.3.1.2. Содержание изотопов урана и тория

Таблица 12. Содержание природных радионуклидов в исследуемых почвах и водах.

№п/п	Скв. 3-934	Интервал, м	Тип почвы	²³⁸ U, Бк/кг	²³⁴ U, Бк/кг	²³² Th, Бк/кг	²³⁴ Th, Бк/кг
1		0,2	Растит.*				
2		0,5	Песок				
3		0,7	Глина	15,5±3,7	15,9±3,7	11,4±1,9	13,6±4,9
4		1,8	Песок	2,4±0,4	2,6±0,5	1,1±0,3	2,0±3,9
5		2,8	Песок	3,9±1,0	4,0±1,1	4,5±1,0	3,6±1,5
6		3,8	Песок	12,1±3,3	13,5±3,3	9,4±1,3	10,5±4,3
7		4,8	Песок	14,5±3,8	15,0±3,8	15,4±3,2	13,8±5,3
8		5,8	Песок	18,3±4,0	18,6±4,3	17,4±3,3	16,2±4,7
9		6,8	Песок	15,4±3,7	16,3±4,1	19,6±2,9	13,2±5,3
10		8,2	Глина	16,7±3,7	17,0±4,5	23,5±5,1	18,3±7,0

№п/п	Скважина, 3-936	Интервал, м	Тип почвы	²³⁸ U, Бк/кг	²³⁴ U, Бк/кг	²³² Th, Бк/кг	²³⁴ Th, Бк/кг
11		1	Растит.*	11,3±4,2	12,5±4,7	19,0±4,5	10,7±4,7
12		2	Песок с глиной	15,6±3,9	15,9±2,3	13,9±2,6	14,0±4,5
13		3	Песок	13,2±3,3	14,0±2,1	11,9±2,1	12,0±3,7
14		4	Песок	12,5±2,9	13,8±2,0	9,1±1,9	11,1±3,9
15		5	Песок	16,7±4,0	18,9±3,5	15,6±3,0	14,4±4,5
16		6	Песок	15,1±3,8	16,0±3,2	19,3±2,9	13,4±5,9
17		7,8	Глина	17,0±4,0	17,2±4,0	17,6±6,5	16,3±7,5

№п/п	Скважина, 3-939	Интервал, м	Тип почвы	²³⁸ U, Бк/кг	²³⁴ U, Бк/кг	²³² Th, Бк/кг	²³⁴ Th, Бк/кг
18		0-0,5	Песок	98,5±12,5	105,2±16,4	38,9±3,5	80,0±12,5
19		0,5-1,0	Песок	21,1±4,3	25,2±4,2	45,8±6,4	19,5±5,4
20		1,0-1,5	Песок	12,4±2,9	13,3±2,9	41,4±4,9	10,5±5,2
21		1,5-2,0	Песок	13,2±3,2	15,8±4,1	23,4±5,6	12,5±5,0
22	Пр.5	2,0-2,5	Песок	14,7±3,5	15,5±3,6	13,5±5,3	13,9±6,3
23	Пр.6	2,5-3,0	Песок	11,6±2,8	13,3±3,5	13,7±4,4	11,0±4,5
24	Пр.7	3,0-3,5	Песок	15,2±3,6	18,8±5,0	14,5±2,7	16,2±3,7
25		4,5-5,0	Песок	18,8±3,4	19,7±4,3	24,5±6,9	19,0±6,1
26		6-6,5	Песок	10,8±3,5	12,2±3,3	15,7±2,5	9,5±3,5
27		7,5-8,0	Песок	9,2±2,6	10,9±3,0	12,4±4,4	8,5±5,4

№п/п	Скважина, 3-940	Интервал, м	Тип почвы	²³⁸ U, Бк/кг	²³⁴ U, Бк/кг	²³² Th, Бк/кг	²³⁴ Th, Бк/кг
28	Пр.1	0-0,5	Песок	87,1±19,4	91,0±20,1	117±20	82,1±20,5
29	Пр.2	0,5-1,0	Песок	21,4±5,8	22,4±4,9	31,3±6,2	19,5±5,2
30	Пр.3	1,0-1,5	Песок	18,5±4,3	18,9±4,5	12,9±2,4	13,0±5,6
31	Пр.4	1,5-2,0	Песок	10,6±2,6	12,0±3,2	5,0±1,6	8,3±2,3
32	Пр.6	2,0-2,5	Песок	9,6±2,3	10,1±3,1	<0,5	7,7±4,5
33	Пр.6	2,5-3,0	Песок	13,2±2,9	14,1±3,1	13,3±4,5	12,1±5,5
34	Пр.7	3,0-3,5	Песок	15,3±3,1	15,8±3,3	24,3±3,9	13,5±4,8
35	Пр.10	4,5-5,0	Песок	14,5±3,0	15,9±3,2	19,6±6,2	11,8±6,1
36	Пр.11	5,0-5,5	Песок	12,3±2,9	13,7±3,0	11,8±2,3	10,1±3,3
37	Пр.13	6,0-6,5	Песок	5,6±1,8	5,9±1,8	<0,5	4,9±2,1

№п/п	Скважина, 3-941	Интервал, м	Тип почвы	²³⁸ U, Бк/кг	²³⁴ U, Бк/кг	²³² Th, Бк/кг	²³⁴ Th, Бк/кг
38		0,1	Суглинок	13,5±3,3	13,9±2,9	37,0±4,2	12,5±5,2
39		1,1	Песок	18,3±4,1	22,8±3,5	23,6±7,0	16,5±6,3
40		2,1	Песок	21,6±4,6	22,5±3,6	22,4±5,6	18,3±5,6
41		3,1	Песок	27,8±4,1	28,2±4,7	25,1±5,8	27,0±12,5
42		5,1	Песок	20,2±3,8	22,1±4,2	60,2±5,1	15,2±5,4
43		11,5	Глина	12,9±4,4	13,0±4,6	37,5±5,8	10,8±6,1

№п/п	Скважина, 3-942	Интервал, м	Тип почвы	²³⁸ U, Бк/кг	²³⁴ U, Бк/кг	²³² Th, Бк/кг	²³⁴ Th, Бк/кг
44	Пр.1	0,2	Суглинок	14,5±3,6	15,0±3,8	16,3±5,1	12,7±6,0
45	Пр.3	2,2	Песок	34,2±5,9	36,8±6,2	58,6±8,8	29,6±9,8
46	Пр.4	3,2	Песок	3,3±1,0	3,2±1,0	2,4±0,7	2,4±1,2
47		5,2	Песок	7,9±2,2	7,8±2,3	5,6±1,2	7,1±3,0
48		11,2	Глина	18,6±3,3	18,9±3,5	28,6±4,5	15,6±8,4

№п/п	Скважина, 955-3	Интервал, м	Тип почвы	²³⁸ U, Бк/кг	²³⁴ U, Бк/кг	²³² Th, Бк/кг	²³⁴ Th, Бк/кг
49		0,4	Растит.*	21,5±4,8	22,8±4,9	43,4±12,6	18,2±8,6
50		1,4	Песок	17,9±3,5	18,0±3,7	3,9±1,9	15,5±4,6
51		2,4	Песок	16,4±3,3	16,9±3,3	5,6±1,4	12,7±4,5
52		3,4	Песок	15,8±3,8	17,0±4,0	16,4±3,1	13,9±5,0
53		4,4	Песок	14,9±4,0	15,3±3,7	13,5±3,6	12,9±5,7
54		5,4	Песок	15,9±4,1	16,7±3,2	7,6±4,3	14,5±3,9
55		6,4	Песок	15,1±4,2	17,0±3,6	9,6±3,7	12,8±4,8
56		7,4	Песок	12,8±3,6	12,9±3,0	10,4±2,3	11,7±4,4
57		8,4	Песок	11,9±3,1	13,0±2,9	13,9±2,6	11,0±5,0
58		15,4	Глина	13,0±3,2	14,4±3,3	20,9±5,6	9,9±3,7

№п/п	Скважина, 956-3	Интервал, м	Тип почвы	²³⁸ U, Бк/кг	²³⁴ U, Бк/кг	²³² Th, Бк/кг	²³⁴ Th, Бк/кг
59		0,5	Песок	10,9±2,5	11,2±	14,7±2,6	9,3±3,6
60		1,5	Песок	9,9±2,3	10,2±	11,3±6,0	8,2±3,4
61		2,5	Песок	10,5±2,6	10,7±	21,5±5,6	9,1±4,7
62		3,5	Песок	11,3±3,3	12,0±	10,7±3,2	9,7±4,2
63		4,5	Песок	27,5±4,9	28,3±	40,4±8,9	26,4±9,9
64		5,5	Песок	5,8±2,1	5,9±	<0,5	5,1±2,2
65		6,5	Песок	28,8±5,0	30,2±	39,8±7,1	23,8±9,8
66		7,5	Песок	12,4±3,2	12,8±	21,3±6,0	10,2±6,7
67		8,5	Песок	6,6±2,4	6,8±	4,1±1,7	5,1±2,4
68		15,5	Глина	13,5±3,7	14,2±	22,8±9,0	10,4±4,5

№п/п	Скважина, 957-3	Интервал, м	Тип почвы	²³⁸ U, Бк/кг	²³⁴ U, Бк/кг	²³² Th, Бк/кг	²³⁴ Th, Бк/кг
69		0,7	Песок	28,4±4,4	32,3±4,7	43,2±6,5	22,2±5,6
70		1,7	Песок	25,6±4,1	29,6±4,5	41,4±7,4	20,1±4,6
71		2,7	Песок	12,2±3,2	15,2±4,0	6,1±1,4	8,2±1,4
72		3,7	Песок	14,9±3,8	15,7±3,9	5,5±1,1	11,5±2,2
73		5,7	Песок	10,1±2,9	12,2±3,1	<0,5	8,9±1,5
74		15,8	Глина	18,0±3,8	19,4±3,9	27,6±4,1	20,1±5,2

№п/п	Скважина, 958-3	Интервал, м	Тип почвы	²³⁸ U, Бк/кг	²³⁴ U, Бк/кг	²³² Th, Бк/кг	²³⁴ Th, Бк/кг
75		0,4	Песок	28,5±5,0	29,3±5,3	24,0±3,1	25,0±8,2
76		1,4	Песок	39,7±7,7	40,2±7,9	65,5±7,2	32,4±9,5
77		2,4	Песок	8,5±2,2	8,8±2,2	<0,5	7,7±3,5
78		3,4	Песок	6,4±2,7	6,8±2,8	<0,5	5,9±2,6
79		4,4	Песок	20,4±4,6	22,0±4,7	25,5±8,4	19,1±9,0
80		16,4	Глина	49,3±6,7	50,2±7,0	55,4±6,6	39,5±20,0

Таблица 13. Вода, соответствующая скважинам Таблицы 12.

№п/п	Скважина	^{238}U , Бк/л	^{234}U , Бк/л	^{232}Th , Бк/л	^{234}Th , Бк/л
1	934	2,3±1,1	2,6±1,2	0,9±0,3	2,1±0,9
2	936	11,0±3,4	11,9±3,5	0,6±0,2	8,3±3,2
3	939	12,6±2,3	13,0±3,1	0,6±0,2	9,0±3,1
4	940	13,0±3,4	13,8±3,6	0,7±0,2	10,2±3,1
5	941	6,7±2,1	7,2±2,3	<0,5	5,0±2,1
6	942	6,6±2,2	6,9±2,4	<0,5	6,1±2,0
7	955	7,1±2,4	7,0±2,5	1,1±0,4	6,0±2,2
8	956	6,0±2,1	6,1±2,2	<0,5	5,4±2,2
9	957	4,2±1,8	4,3±1,9	<0,5	3,3±1,2
10	958	4,3±1,9	5,6±3,3	0,8±0,2	6,7±2,5

2.3.2. Керны пород, взвешенное вещество и подземные грунтовые воды промплощадки ФГУП ПО Маяк.

Таблица 14. Концентрация радионуклидов в породах наблюдательных скважин и в донных отложениях некоторых промышленных водоемов, Бк/кг

Номер скважины/глубина отбора керна, м	^{90}Sr	^{239}Pu	^{241}Am	^{237}Np
108/95	1.8	0.51	0.10	0.005
108/110	5.7	0.50	0.10	0.002
108/115	16	0.35	0.22	Не обн.
108/120	14	0.38	0.23	Не обн.
109/13-19	1.3	0.65	0.10	0.005
109/31-39	2.1	0.32	0.05	0.003
109/52-55	2.7	0.15	0.21	0.008
109/71-75	0.63	1.0	0.10	0.007
109/89-94	0.59	0.14	0.01	Не обн.
109/98	0.34	0.71	0.12	0.005
В-4/0-3	$7.1 \cdot 10^5$	$6.2 \cdot 10^6$	$7.4 \cdot 10^5$	$2.1 \cdot 10^3$
В-10/0-3	$9 \cdot 10^4 - 7.3 \cdot 10^5$	$5 \cdot 10^3 - 1 \cdot 10^6$	$1.4 \cdot 10^3 - 1.9 \cdot 10^5$	$(1.6 - 13) \cdot 10^3$
В-10/20-23	$6 \cdot 10^3 - 7 \cdot 10^5$	$(1.2 - 21) \cdot 10^5$	$(1 - 35) \cdot 10^3$	$(2.1 - 3.9) \cdot 10^3$
В-11/0-2,5	$(1.1 - 4.4) \cdot 10^5$	$(6 - 20) \cdot 10^4$	$(0.1 - 2) \cdot 10^3$	Не обн.

Таблица 15. Анионный состав отобранных вод, мг/л.

№	Скважина (глубина, м)	pH	Eh, mV	DOC	Cl ⁻	SO ₄ ²⁻	PO ₄ ³⁻	NO ₃ ⁻	HCO ₃ ⁻ (CO ₃ ²⁻)
1	64/68 (20)	7.1	180	40	49.3	40	0.1	900	140.3
2	64/68 (80)	7.7	120	312	343.2	89	0.06	4030	397
3	160/70 (20)	7.9	240	32	44.0	36	0.01	10	128.1 (66.0)
4	160/70 (100)	8.2	150	80	113.1	88	0.04	3900	36.6 (10.5)
5	50/79 (20)	7.2	220	40	60.7	156	0.03	24	88.4
6	50/79 (50)	7.6	180	112	267	144	0.1	2900	253
7	63/68 (30)	7.1	280	81	110	47	0.12	2427	299
8	63/68 (80)	7.6	130	601	2640	564	0.01	33110	1678
9	63/68 (100)	7.1	280	-*	278	201	1.9	48800	1340
10	3/68 (100)	7.3	300	-	41.0	430	0.8	43900	1290
11	9/68 (100)	7.4	240	-	124	360	0.7	40800	1060
12	43/78 (100)	7.5	150	-	459	212	0.5	26500	657
13	176 (100)	7.4	220	-	2.50	93	0.8	12200	1910
14	173 (100)	8.2	180	-	139	324	0.9	450	(237)
15	4/90 (100)	7.8	140	1.8	219	267	0.5	11	(345)
16	209 (100)	8.0	130	2.1	224	223	0.4	12	(410)

Таблица 16. Катионный состав отобранных вод, мг/л.

№	Скваж. (глубина, м)	Na	K	Ca	Mg	Mn	Al	Fe	Si	U
1	64/68 (20)	112.0	1.1	186.6	64.8	1.19	0.64	2.77	8.0	0.32
2	64/68 (80)	500.0	4.7	792.8	283.2	6.51	0.17	4.99	12.7	3.05
3	160/70 (20)	52.0	10.0	8.06	6.87	0.01	0.06	0.29	1.9	0.002
4	160/70 (100)	189.3	10.6	798.1	257.2	0.09	0.07	4.39	2.7	0.075
5	50/79 (20)	55.1	5.3	17.6	23.6	0.03	0.10	2.46	1.2	0.009
6	50/79 (50)	177.0	1.8	647.7	275.8	0.17	0.81	4.92	3.6	1.26
7	63/68 (30)	161.9	1.7	490.8	221.7	1.10	0.36	7.40	2.4	0.40
8	63/68 (80)	5532	38.1	4237	1435	5.69	0.22	13.05	12.1	23.05
9	63/68 (100)	8990	81	4004	2708	47.2	18.8	15.6	13.0	38.0
10	3/68 (100)	4302	98	5707	3100	61.0	16.8	14.9	12.3	35.0
11	9/68 (100)	2216	8.2	7584	2508	47.2	18.8	15.6	10.2	26.0
12	43/78 (100)	2150	95	5291	1181	8.7	3.21	1.53	9.6	13.0
13	176 (100)	1182	11.9	2434	660	8.6	2.0	0.741	3.0	9.80
14	173 (100)	237.0	3.0	189	58.8	0.34	1.6	0.199	2.9	0.43
15	4/90 (100)	149.5	2.1	197	70.6	0.82	1.2	0.109	2.3	0.012
16	209 (100)	139.3	1.7	248	61.2	0.82	0.76	0.101	1.3	0.011

Таблица 17. Радионуклидный состав отобранных вод, мг/л.

№	Скваж. (глуб., м)	Бк/л							мг/л
		³ H	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs	²³⁸⁻²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Am	²⁴⁴ Cm	²³⁷ Np	U
1	64/68 (20)	570	3470	<0.3	1.84	0.73	0.36	0.08	0.32
2	64/68 (80)	3168	14560	2.1	1.22	0.65	0.37	0.17	3.05
3	160/70 (20)	1070	21	<0.3	0.84	0.18	0.31	0.003	0.002
4	160/70 (100)	1580	12950	1.3	0.78	0.34	0.22	0.12	0.075
5	50/79 (20)	84.1	35	<0.3	0.74	0.68	0.12	0.09	0.009
6	50/79 (50)	990	9870	4.5	0.86	0.68	0.10	0.12	1.26
7	63/68 (30)	5980	8980	12.8	0.45	3.07	1.86	0.071	0.40
8	63/68 (80)	65090	72300	32.0	1.31	1.15	0.61	0.78	23.05
9	63/68 (100)	-*	97500	28.0	1.31	1.32	0.61	11.1	38
10	3/68 (100)	-	90700	3.0	1.26	1.11	0.81	10.4	35
11	9/68 (100)	-	75700	11.9	1.09	1.10	0.67	5.8	26
12	43/78 (100)	-	42800	4.2	0.31	0.082	0.017	2.5	13
13	176 (100)	-	2150	0.34	3.61	1.78	1.52	3.1	9.8
14	173 (100)	-	1200	1.8	0.89	0.82	0.87	0.13	0.43
15	4/90 (100)	-	26	<0.3	1.20	1.23	1.17	0.0041	0.012
16	209 (100)	-	49	<0.3	1.89	0.98	0.72	0.0056	0.011

Таблица 18. Содержание радионуклидов и других химических элементов во взвесах на фильтре 200 нм.

№ скваж.	Глубина отбора, м	DOC	Fe	Al	Mn	Si	U	Np	Pu	Am
64/68	20	0.21	0.05	0.012	0	0.11	0	0	0.0013	0
	80	1.34	0.04	0.011	0.001	0.23	0.001	0	0	0
160/70	20	0.07	0.02	0.002	0	0.078	0	0	0	0
	100	0.06	0.09	0.002	0.001	0.065	0	0	0	0
50/79	20	0.17	0.07	0.002	0	0.009	0	0	0	0
	50	0.13	0.05	0.009	0	0.019	0.001	0	0	0
63/68	30	0.34	0.06	0.003	0	0.017	0	0	0.0011	0.0023
	80	1.67	0.09	0.001	0	0.34	0.021	0	0.0011	0.0013
	100	1.93	0.23	0.12	0.11	0.45	0.034	0.001	0	0.0018
43/78	100	-*	0.02	0.045	0.021	0.24	0.0032	0.001	0.0027	0
176	100	-	0.01	0.032	0.03	0.076	0.027	0	0.0051	0.015
209	100	0.09	0.002	0.012	0.004	0.065	0	-		0

Таблица 19. Содержание радионуклидов и других химических элементов во взвесах на фильтре 50 кДа.

№ скваж.	Глубина отбора, м	DOC	Fe	Al	Mn	Si	U	Np	Pu	Am
64/68	20	0.71	1.08	0.26	0	2.93	0	0	0.23	0.21
	80	2.85	1.38	0.071	0.057	4.01	0.043	0	0.067	0.26
160/70	20	0.56	0.061	0.026	0	0.59	0	0	0.096	0.029
	100	0.41	2.73	0.031	0.023	1.16	0.0038	0	0.095	0.071
50/79	20	0.73	1.84	0.045	0.012	0.41	0	0.0012	0.087	0.07
	50	0.59	1.96	0.38	0.011	1.37	0.011	0.0014	0.047	0.19
63/68	30	1.40	3.47	0.21	0.021	0.94	0	0	0.032	0.78
	80	5.70	3.1	0.1	0	2.3	0.019	0.0034	0.13	0.46
	100	5.15	7.99	7.6	0.89	2.84	0.045	0.11	0.16	0.58
43/78	100	-	0.74	1.92	0.67	1.78	0.0097	0.021	0.054	0.022
176	100	-	0.31	0.82	0.56	0.75	0.0065	0.054	0.27	0.62
209	100	0.145	0.045	0.29	0.034	0.22	0	-	0.19	0.27

Таблица 20. Содержание радионуклидов и других химических элементов во взвесах на фильтре 10 кДа.

№ скваж.	Глубина отбора, м	DOC	Fe	Al	Mn	Si	U	Np	Pu	Am
64/68	20	1.36	0.86	0.32	0	3.76	0.0064	0.0017	0.85	0.12
	80	4.23	0.73	0.066	0.059	5.79	0.23	0.0073	0.31	0.11
160/70	20	0.81	0.18	0.028	0.001	0.91	0.00028	0.00015	0.37	0.014
	100	0.49	1.31	0.029	0.039	1.31	0.030	0.0044	0.37	0.051
50/79	20	1.34	0.50	0.038	0.0042	0.52	0.0011	0.011	0.36	0.059
	50	0.85	0.50	0.34	0.021	1.56	0.25	0.020	0.25	0.068
63/68	30	1.98	0.47	0.13	0.034	1.11	0.036	0.0085	0.20	0.88
	80	6.45	1.12	0.090	0	8.37	2.73	0.082	0.50	0.31
	100	7.92	7.07	9.01	1.83	8.15	5.62	1.11	0.48	0.36
43/78	100	-	0.40	0.99	1.14	6.04	1.55	0.12	0.11	0.016
176	100	-	0.29	0.95	1.39	1.54	1.34	0.17	1.49	0.52
209	100	0.29	0.032	0.42	0.060	0.82	0.00099	-	1.08	0.15

2.3.3. Пластовые воды и взвешенное вещество, из глубинных наблюдательных скважин ФГУП СХК.

Таблица 21. Радионуклидный состав вод наблюдательных скважин СХК и фильтратов.

А-46				
Membrane, nm	U*	Np*	²³⁸⁻²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Am
	мг/л	мг/л	Бк/л	Бк/л
450**	0,8	1,4×10 ⁻⁶	0,58	0,33
200	0,75	1,3×10 ⁻⁶	0,54	0,28
50	0,052	3,0×10 ⁻⁷	0,27	0,15
5	0,008	5,0×10 ⁻⁸	0,061	0,056

A-44				
Membrane, nm	U*	Np*	²³⁸⁻²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Am
	мг/л	мг/л	Бк/л	Бк/л
450**	0,011	4,0×10 ⁻⁶	0,26	0,0049
200	0,011	3,8×10 ⁻⁶	0,23	0,0044
50	0,0051	2,3×10 ⁻⁶	0,18	0,0024
5	0,0012	9,1×10 ⁻⁷	0,079	0,0011
A-3				
Membrane, nm	U*	Np*	²³⁸⁻²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Am
	мг/л	мг/л	Бк/л	Бк/л
450**	0,0041	2,0×10 ⁻⁶	0,038	0,022
200	0,0038	1,9×10 ⁻⁶	0,034	0,022
50	9,2×10 ⁻⁴	1,3×10 ⁻⁶	0,026	0,015
5	5,2×10 ⁻⁴	4,5×10 ⁻⁷	0,017	0,0051
A-6				
Membrane, nm	U*	Np*	²³⁸⁻²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Am
	мг/л	мг/л	Бк/л	Бк/л
450**	0,0067	4,0×10 ⁻⁶	0,023	0,098
200	0,0061	2,9×10 ⁻⁶	0,017	0,087
50	0,0021	2,3×10 ⁻⁶	0,015	0,065
5	0,00072	5,5×10 ⁻⁷	0,0024	0,013

2.3.4. Вода, взвеси, донные отложения, пойменные почвы и водная растительность реки Енисей вблизи ФГУП ГХК.

Таблица 22. Концентрация радионуклидов в пойменных отложениях островов реки Енисей

Месторасположение и расстояние от источника сбросов	Номер образца	Глубина отбора образца, см	Бк/кг воздушно-сухой массы			Отношения	
			²³⁸ Pu	^{239,240} Pu	²⁴¹ Am	²³⁸ Pu/ ^{239,240} Pu	²⁴¹ Am/ ^{239,240} Pu
о. Атамановский, на приверхе, 7 км	568	0-5	0.8	8.0	1.5	0.10	0.19
	569	5-10	0.7	5.9	1.7	0.12	0.29
	570	10-15	4.3	14.5	3.4	0.30	0.23
	571	15-20	2.8	7.2	1.2	0.39	0.17
	572	20-25	9.2	10.7	3.7	0.86	0.35
	573	25-30	1.4	4.8	1.6	0.29	0.33
	574	30-35	0.4	3.8	1.3	0.11	0.34
	575	35-40	3.6	39.2	4.1	0.09	0.10
	576	40-45	1.1	11.3	2.6	0.10	0.23
о. Березовый, на ухвостье. 21 км	1175	0-5	0.5	4.5	0.2	0.11	0.04
о. Тарыгин, на приверхе, 27 км	577	0-5	0.4	8.1	7.9	0.05	0.98
	578	5-10	0.3	1.6	0.9	0.19	0.56
	579	10-15	0.3	1.5	0.8	0.20	0.53
	580	15-20	0.5	1.4	0.3	0.36	0.21
	582	25-30	0.2	2.1	1.2	0.96	0.57
	584	35-40	0.3	0.5	0.3	0.60	0.60
	586	40-50	0.5	0.7	1.0	0.71	1.4
о. Осерёдыш, на приверхе, 44 км	565	0-5	0.4	1.2	0.9	0.33	0.75
о. Предивинский, на ухвостье, 134 км	3 ¹ (97)	0-5	0.9	6.2	0.5	0.15	0.08
о. Момотов, на ухвостье, 176 км	4 ¹ (97)	0-5	0.4	5.1	0.6	0.78	0.12
о. Черемухов в 30м от правого берега, 248 км	8 ¹ (97)	0-5	0.3	1.5	0.02	0.20	0.13
о. Черемухов, ухвостье, в 30 м от берега, 250 км	2 ¹	0-2	0.1	1.2	2.1	0.05	1.75
	2 ³	4-6	0.4	4.0	5.2	0.10	1.30
	2 ⁵	8-10	0.7	6.4	9.5	0.11	1.48
	2 ⁷	12-14	0.4	1.8	2.9	0.22	1.61
	2 ⁹	16-18	0.8	5.7	7.6	0.14	1.33
	2 ¹¹	20-22	1.3	5.4	6.8	0.24	1.26
	2 ¹³	24-26	0.6	3.4	4.3	0.18	1.26
О. Усть-Тунгусский, на ухвостье, 259 км	12 ¹ (97)	0-5	0.1	1.2	0.4	0.08	0.33

Таблица 23. Концентрация радионуклидов в верхнем слое (0-5см) донных отложений р. Енисей.

Месторасположение	Расстояние от источника по течению, км	Номер образца	Бк/кг воздушно-сухой массы			Отношения	
			²³⁸ Pu	^{239,240} Pu	²⁴¹ Am	²³⁸ Pu/ ^{239,240} Pu	²⁴¹ Am/ ^{239,240} Pu
Протока Куваширская	16 выше от ГХК	519а	1.0	15.5	0.2	0.06	0.07
У правого берега	1	520а	5.2	21.1	0.4	0.22	0.02
У правого берега	6	521а	1.4	26.9	0.3	0.05	0.01
О. Атамановский, ухвостье	7	522а	0.7	9.6	0.2	0.07	0.02
У левого берега	15	523а	0.4	5.6	0.2	0.07	0.04
Протока Балчуковская, у правого берега	19	524а	1.3	36.3	0.2	0.03	0.01
Протока Хлоптуновская, у левого берега	19	525а	3.2	35.1	0.2	0.09	0.01
О. Заячий, на приверхе	22	526а	0.4	15.2	0.2	0.03	0.01
О. Тарыгин, ухвостье	28	527а	0.4	5.3	0.2	0.08	0.04
Протока Старый Енисей	45	528а	0.5	1.9	0.3	0.26	0.16
Осерёдок у правого берега	63	529а	0.1	1.3	0.1	0.08	0.08

Таблица 24. Химический состав донных отложений, мг/г.

№	Описание	C, %	N,%	C/N	K	Na	Ca	Mg	Fe	Al
1	Темно-серый, илистый	15.2	1.51	10.1	15	31	34	19	86	76
2	Темно-серый, средний суглинок	9.4	0.71	13.2	18	8	23	19	82	78
3	Темно-серый, опесчаненный суглинок	4.2	0.29	14.5	16	19	24	16	90	77
4	Серый, супесь, кварцевая присыпка	0.85	0.05	17	8	17	14	7	23	48

Таблица 25. Содержание отдельных радионуклидов в образцах водных растений р. Енисей

Водное растение	^{238}U	^{237}Np	^{241}Am	^{239}Pu
	Бк/кг	Бк/кг	Бк/кг	Бк/кг
Роголистник темно-зеленый	11,8	1300	1,3	0,19
Мох ключевой	15,4	3250	2,7	3,2
Элодея канадская	12,0	600	2,0	0,23
Рдест блестящий	16,2	1600	1,1	0,35
Содержание радионуклида в воде	0.1	Ниже ПО	Ниже ПО	0.04

2.3.5. Вода и биота реки Теча вблизи ФГУП ПО Маяк и почвы ВУРС.

Отбор образцов по течению реки Теча осуществляется в настоящее время сотрудниками ФИБ УОРАН (г. Челябинск). Всего отобрано около 100 образцов воды, взвесей, донных отложений, пойменных почв, биоты.

2.3.6. Наземная растительность и почвы Брянской области, загрязненные в результате аварии на ЧАЭС.

Отбор образцов осуществляется в настоящее время сотрудниками ГЕОХИ РАН. Образцы мхов и почв анализируются на химический и радиохимический состав.

2.3.7. Морская вода и взвешенное вещество Белого, Баренцева и Карского морей.

В **Таблице 26** представлен список станций отбора, глубины в точках отбора, координаты и объемы морской воды, отобранные для ультрафильтрации в Карском море.

Таблица 26. Координаты отобранных образцов (Карское море)

Станция	Глубина, м	Координаты (с.ш., в.д.)	V морской воды
Залив Ога			
1	62	74°35'811" 59°27'850"	1000
6	51	74°34'809" 59°20'021"	1500
Залив Цивольки			
20	65	74°28'510" 58°38'695"	1500
45	43	74°22'464" 58°41'318	1500
Залив Степового			
67	16	72°31'389" 55°30'589"	1500
70	30	72°33'421" 55°26'212"	2000
Залив Абросимова			
93	15	71°56'021" 55°21'445"	1500

В **Таблице 27** представлены концентрации изотопов плутония в заливах Ога, Цивольки, Степового и Абросимова (Карское море) и процентное содержание плутония в коллоидной фракции (0,5 мкм – 15 кД).

Таблица 27. Концентрации изотопов плутония в заливах Ога, Цивольки, Степового и Абросимова (Карское море) и процентное содержание плутония в коллоидной фракции (0,5 мкм – 15 кД)

Станция	A ^{238}Pu Бк/м ³	A $^{239,240}\text{Pu}$ Бк/м ³	% Pu в коллоидной фракции	$^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ в коллоидной фракции	$^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ в фильтрате (< 15 кД)
Залив Ога					
1	0,19	0,99	30	0,19	-
6	0,13	1,10	23	0,12	-
Залив Цивольки					
20	0,16	1,18	15	0,14	0,9
45	0,26	1,09	4	0,24	-
Залив Степового					
67	0,32	1,01	11	0,32	-
70	0,11	0,87	20	0,13	2,6
Залив Абросимова					
93	0,11	1,06	25	0,1	2,4

Таблица 28. Список станций отбора, глубины в точках отбора, координаты и объемы морской воды, отобранные для ультрафильтрации в Белом море

Станция	Положение	Глубина, м	Координаты (с.ш., в.д.)	V морской воды
4928	Кандалакшский залив	106	66°08,2' 36°36,3'	1250
4932	Центральная часть	241	66°26,5' 36°45,0'	1450
4939	Близ Горла	70	65°45,8' 38°44,0'	839
4944	Двинской залив			700

Таблица 29. Результаты определения изотопов плутония во фракциях коллоидного материала морской воды Белого моря (активности изотопов плутония приведены к 1 м³ морской воды)

Фракция	A ²³⁸ Pu Бк/м ³	A ^{239,240} Pu Бк/м ³	A(²³⁸ Pu)/ A(^{239,240} Pu)	% ²³⁸ Pu	% ^{239,240} Pu
4928					
Исходная вода	1,7	3,01	0,56	100	100
0,5 мкм – 300 Кд	0,26	0,49	0,52	15,0	16,0
300 – 50 Кд	0,06	0,14	0,41	3,4	4,7
50 – 15 кД	0,04	0,20	0,19	2,3	6,8
Фильтрат < 15 кД	0,90	1,16	0,78	38,7	53,1
Массовый баланс	0,73	0,66			
Общая доля Pu в коллоидной фракции				20,8	27,7
4932					
Исходная вода	1,13	22,1	0,06	100	100
0,5 мкм – 300 Кд	0,07	0,17	0,39	5,2	0,76
300 – 50 Кд	0,47	4,99	0,09	36,1	22,6
50 – 15 кД	1,50	19,40	0,08	118,4	88,0
Фильтрат < 15 кД	0,44	2,17	0,20	34,2	9,84
Массовый баланс	1,21	1,94			
Общая доля Pu в коллоидной фракции				159,7	111,3
4939					
Исходная вода	5,80	18,5	0,31	100	100
0,5 мкм – 300 Кд	0,07	0,10	0,71	1,27	0,56
300 – 50 Кд	0,33	0,45	0,74	5,76	2,44
50 – 15 кД	0,65	0,12	0,54	11,2	6,49
Фильтрат < 15 кД	4,32	15,25	0,28	74,5	82,47
Массовый баланс	0,93	0,92			
Общая доля Pu в коллоидной фракции				18,2	9,5

4944

Исходная вода	3,20	18,01	0,18	100	100
0,5 мкм – 300 Кд	0,23	1,39	0,17	7,3	7,7
300 – 50 Кд	0,86	2,4	0,36	26,9	13,26
50 – 15 кД	1,3	5,3	0,24	40,6	29,3
Фильтрат < 15 кД	0,63	4,05	0,16	19,7	22,4
Массовый баланс	0,94	0,72			
Общая доля Р _и в коллоидной фракции				74,7	50,3

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Искусственные радионуклиды и, прежде всего, наиболее опасные изотопы трансураниевых элементов (ТУЭ), стали постоянным и необратимыми компонентами биосферы вследствие проводившихся ядерных взрывов, сброса радиоактивных отходов в водоемы, а также нарушений технологий и аварийных ситуаций на предприятиях ядерно-топливного цикла. Проведение радиомониторинга этих высокотоксичных элементов с учетом низкого уровня массовых концентраций и сложного солевого состава объектов окружающей среды требует знания форм нахождения актинидов и разработки методов предварительного избирательного концентрирования, а также использования уникальных методов высокочувствительного определения актинидов в объектах окружающей среды.

Известно, что многие радионуклиды способны накапливаться компонентами биогеоценозов и включаться в пищевые цепочки. Однако в настоящее время наиболее подробно изучено поведение только гамма-излучающих короткоживущих изотопов. Биоаккумуляция альфа-излучающих и наиболее токсичных изотопов актинидных элементов исследована меньше из-за методологических трудностей радиохимического анализа. Тем не менее лабораторные исследования показывают высокую степень сорбции актинидов, в первую очередь нептуния, микроорганизмами и растительностью.

Активность облученного ядерного топлива (ОЯТ) через 10-100 лет выдержки определяется следующими радионуклидами $^{241,243}\text{Am} > ^{90}\text{Sr} > ^{137}\text{Cs} > ^{239,240}\text{Pu} > ^{237}\text{Np}$. В настоящее время подробный радиомониторинг проводится только для ^{137}Cs и частично, для ^{90}Sr и $^{239,240}\text{Pu}$. В то же время все указанные радионуклиды накапливаются в различных компонентах окружающей среды: ^{90}Sr – в водах, ^{137}Cs – в глинистых минералах донных отложений, $^{241,243}\text{Am}$ в органическом веществе вод и донных отложений, $^{239,240}\text{Pu}$ – в гидроксидах коллоидов и донных отложений, ^{237}Np в микроорганизмах, биоте и растительности. Поэтому каждый из перечисленных радионуклидов может являться индикатором техногенного загрязнения. Особенно это касается $^{241,243}\text{Am}$, содержание (активность) которого для ОЯТ максимальна, и ^{237}Np , коэффициенты накопления которого растительностью на 2-4 порядка превышают эти значения для других радионуклидов. Кроме того отношение активности америция и нептуния к активности плутония для ОЯТ существенно отличается от этого отношения в продуктах глобальных выпадений и других техногенных загрязнений, что позволяет выявлять источники загрязнения.

Проведенный критический анализ литературы показал, что в целом первоначальные формы радионуклидов быстро изменяются под воздействием

биогеохимических процессов. Основным депо радионуклидов в поверхностных экосистемах являются почвы и донные отложения. Причем подвижность радионуклидов выпавших на почвы в растворимой форме достаточно быстро становится равной подвижности радионуклидов, выпавших в слаборастворимых формах. Этому способствует прочная связь радионуклидов с компонентами почв, например, радиоцезий сорбируется глинистыми минералами, плутоний и ТПЭ органическим веществом почв.

Динамика миграции радионуклидов в пресноводных экосистемах существенно зависит от гидрохимического режима водоемов. В реке Енисей наблюдается перенос нерастворимых горячих частиц микронного размера и загрязненных илов на десятки километров от источника загрязнения. Быстрое изменение форм нахождения радионуклидов и перенос со взвешенным веществом характерен также для морских экосистем.

В подземных средах при проникновении растворимых форм по гидросистеме наиболее эффективным геохимическим барьером является взвешенное вещество подземных вод и вмещающие породы. Мелкодисперсные коллоидные частицы и комплексообразующие вещества (низкомолекулярные органические и неорганические вещества, фульвокислоты), способствуют миграции за счет ускоренного (коллоидного) транспорта радионуклидов. На больших глубинах в анаэробных условиях подвижность урана и трансурановых элементов невелика за счет прочной связи с крупнодисперсными частицами.

На основании анализа литературных данных были выбраны следующие направления исследований:

- Исследование миграции $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am , и ^{237}Np в системе почва-травянистая и древесная растительность в зависимости от следующих параметров: pH; Eh; содержание солей; содержание органических компонентов (гуминовых и фульвокислот); температура; содержание фосфора, азота и кремния.

- Создание банка данных по коэффициентам накопления актинидов различными объектами биогеоценозов.

- Разработка в соответствии с полученными данными способов повышения чувствительности мембранно-люминесцентного определения актинидов

- Изучение процессов биотрансформации (изменения физико-химических форм нахождения актинидов) под воздействием компонентов биогеоценозов.

Для проведения исследований планируется применять принципы ландшафтно-геохимического метода исследования обменных процессов. Этот метод позволяет проследивать трансформацию компонентного состава ландшафта на уровне химических

реакций, движения химических элементов, выявлять причинно-следственные связи в процессе функционирования и динамики природного комплекса.

Будут проводиться исследования химического состава всех компонентов ландшафта (горных пород, коры выветривания, поверхностных и подземных вод, почв, растительности) с последующим сравнением полученных результатов между собой как в пределах одного элементарного ландшафта, так и смежных с ним.

Особое внимание будет уделено геохимическим барьерам –участкам ландшафта, где на малом расстоянии происходит резкое уменьшение интенсивности миграции химических элементов и, как следствие, их концентрация аномально высокая. Последние относятся и к экотоксикантам.

План работ включает обор образцов в соответствии с принципами ландшафтно-геохимических исследований, их классификацию специалистами (почвоведрами, биологами, геохимиками), химический, элементо-органический и радиохимический анализ. На последующих этапах планируется применение спектральных методов определения и химических методов фракционирования форм нахождения актинидов

Для отбора образцов почв во всех случаях выбирали наиболее типичные для изучаемых регионов биогеоценозы. Образцы почв на территории Восточно-Уральского радиоактивного следа (ВУРС) отбирали с площади 0,02-0,36 м² непрерывно по почвенному профилю с учетом генетического строения почв путем закладывания почвенных разрезов глубиной до 40 см от поверхности либо разборным почвенным буром. Мощность отбираемых слоев почвы составляла от 2 до 5 см. Отдельно собирали с определенной площади полуперегивший растительный опад.

Образцы воды из промышленных водоемов ФГУП ПО «Маяк» отбирали батометром из поверхностного слоя; донных отложений - стратометром трубчатого типа со льда. Керны донных отложений замораживали на месте и затем делили на слои для последующего анализа. Для определения концентрации радионуклидов в донных отложениях анализировали два слоя: поверхностный мощностью 0-2,5(3) и с глубины в 20-23 см.

Отбор образцов на промплощадке Кирово-Чепецкого химического комбината проводили сотрудники Гидроспецгеологии (ООО «Геосервис»). Отбор образцов в этом случае производился буром до глубины 8-10 м.

Образцы пойменных почв и донных отложений реки Енисей (вблизи Красноярского ГХК) были представлены сотрудниками ФГУП НПО «Радиевый институт им. В.Г. Хлопина» и Института биофизики СО РАН. Пойменные почвы были отобраны на

разных глубинах почвенных профилей. В качестве образцов донных отложений отбирали верхние слои (0-5 см).

В качестве полигона для проведения радиомониторинга в рамках НИР выбрана также зона хранилищ приповерхностного типа, расположенных в Московской области (полигон МосНПО «Радон»). Площадка исследований представляет собой полигон долговременного хранения РАО, на территории которого хранятся отходы низкого и среднего уровня активности. Вмещающими породами являются покровные суглинки и суглинки московской морены - грунты с низкими фильтрационными свойствами. Возможность выноса радионуклидов из хранилищ с грунтовыми водами в горизонтальном направлении контролируется дренажной системой предприятия, включающей в себя дренажные колодцы, траншеи, канавы и отстойники. В вертикальном направлении основным естественным барьером, помимо инженерных, являются суглинки московской морены, мощностью в 35-40 метров, препятствующие миграции загрязнения в первый водоносный горизонт.

Образцы биоты и их описание были представлены сотрудниками лаборатории морской геоэкологии ГЕОХИ РАН, Института биофизики СО РАН (г. Красноярск) и ФГУП ФИБ (г. Озерск). В месте отбора почвенных образцов срезали наземную часть травянистых растений с площади 0,25-5,25 м² в зависимости от плотности растительного покрова. После отбора живой травянистой растительности, с этой же площади отбирали прошлогодний полуперегнивший растительный опад и ветошь, который скапливается непосредственно над верхним гумусовым горизонтом почвы. Растительные образцы высушивали на воздухе, измельчали ножницами, помещали в фарфоровые чашки и осторожно озоляли в муфельной печи при 550 градусах С постепенно повышая температуру в течении 5-6 часов до получения однородного зольного остатка. Растительные образцы взвешивали до и после озоления.

ИСПОЛЬЗОВАННЫЕ ЛИТЕРАТУРНЫЕ ИСТОЧНИКИ

- 1 Крышев И.И., Рязанцев Е.П. Экологическая безопасность ядерно-энергетического комплекса России. М.: Издат. 2000, 383С.
- 2 Павлоцкая Ф.И. Миграция радиоактивных продуктов глобальных выпадений в почвах. М.: Атомиздат, 1974., 215 С.
- 3 Куляко Ю.М., Перевалов С.А., Трофимов Т.И. и др. Диспропорционирование полимерного плутония в слабокислых растворах // Радиохимия, 209, Т.51, №4, с. 323-326.
- 4 Мясоедов Б.Ф., Новиков А.П., Павлоцкая Ф.И. Комплексные радиохимические исследования поведения радионуклидов в водных и наземных экосистемах ближайшей зоны воздействия ПО « Маяк ». Методология, объекты и методы исследований. // Радиохимия. **40** (5), 447-453 (1998)
- 5 Новиков А.П., Кремлякова Н.Ю., Корпусов С.Г., Мясоедов Б.Ф. Авт.свид. № 1805381, 1992.
- 6 A. P. Novikov and B.F. Myasoedov Radiochemical procedures for speciation of actinides in the Environment. Environment Protection against Radioactive pollution. 2003. P. 147-154.
- 7 Б.Ф. Мясоедов, А.П. Новиков, Ф.И. Павлоцкая. Комплексные радиохимические исследования поведения радионуклидов в водных и наземных экосистемах ближайшей зоны воздействия ПО « Маяк ». Методология, объекты и методы исследований. Радиохимия, 1998, т. 40, №5, С.447-453.
- 8 Новиков А.П., Михеева М.Н., Иванова С.А., Мясоедов Б.Ф. Авт.свид. №5146273/27, 1992.
- 9 Орлов Д.С. Химия почв. Москва, Изд-во МГУ, 1992, с. 259
- 10 Орлов Д.С. Гумусовые кислоты почв и общая теория гумификации. Москва, Изд-во МГУ, 1990, с. 325
- 11 Голованов В.И., Шкинев В.М., Спиваков Б.Я. Оценка эффективности мембранного концентрирования и разделения веществ с водорастворимыми полимерами // ЖАХ, 1995. Т.50. №6. С.622-628.
- 12 Павлоцкая Ф.И., Тюрюканова Э.Б., Баранов В.И. Глобальное распределение радиоактивного стронция по земной поверхности. (М.: Наука, 1970)
- 13 Novikov A.P., Tkachev V.V., Myasoedov B.F. Speciation Methods of Actinides at Trace Concentration. // Comptes Rendus, Chimie. **7**, 245-259 (2004).
- 14 Павлоцкая Ф.И. Формы нахождения и миграция радиоактивных продуктов глобальных выпадений в почвах. Диссертация на соискание уч. ст. д.х.н. (М.: ГЕОХИ АН СССР. 1981. 519с.).
- 15 Павлоцкая Ф.И. *Геохимия искусственных радионуклидов.* // Современные проблемы радиогеохимии и космохимии. (М.: Наука, 1992).
- 16 Горячев В.А., Исаев А.А., Сойфер В.Н. Формы нахождения ⁶⁰Со в донных осадках бухты Чажма Японского моря. // Радиохимия. **50** (4), 380-383 (2008).
- 17 *Радиоактивное загрязнение природных сред при подземных ядерных взрывах.* Под редакцией Ю.А.Израэля. (Ленинград: Гидрометеиздат, 1970)

-
- ¹⁸ Трансурановые элементы в окружающей среде. Под редакцией Р.М. Алексахина. (М.: Энергоатомиздат, 1974)
- ¹⁹ Myasoedov B.F., Drozko E.G. Up-to-date radioecological situation around the 'Mayak' nuclear facility. // *J. of Alloys and Compounds*. **271/273**, 216-220 (1998).
- ²⁰ Алексахин Р.М., Булдаков Л.А., Губанов В.А. и др. *Радиационные аварии*. (М. Изд-во АТ, 2001).
- ²¹ Дрожко Е.Г., Иванов И.А., Алексахин А.И. Современное состояние подземной гидросферы в районе ПО «Маяк» // *Вопросы радиационной безопасности*. 1996. №1. С.11-19.
- ²² *Итоги изучения и опыт ликвидации последствий загрязнения территории продуктами урана* // Под редакцией А.И. Бурназяна. (М.: Энергоатомиздат, 1990).
- ²³ Павлоцкая Ф.И., Горяченкова Т.А., Емельянов В.В. Поведение ^{239,240}Pu в почвах на следе после аварии на Южном Урале в 1957г. // *Атомная энергия*. **73** (1), 32-36 (1992).
- ²⁴ Ф.И. Павлоцкая Ф.И., Т.А. Горяченкова Т.А., Б.Ф. Мясоедов Б.Ф. Формы нахождения техногенного плутония в аэрозолях, горячих частицах и почвах. // *Радиохимия*. **39** (5), 464-470 (1997).
- ²⁵ Allen V.D., Briant J.K., Voss O.R. et al. Dissolution Characteristics of LMFBR Fuel-sodium Aerosols // *Health Phys.* **40** (2), 183-193 (1981).
- ²⁶ Boniforty R. Lanthanides, uranium, and thorium as possible simulators of the behavior of transuranics in the aquatic environment // *Sci. Total Environ.* **64** (1-2), 181-189 (1987).
- ²⁷ Мясоедов Б.Ф. Радиоактивное загрязнение окружающей среды и возможности современной радиохимии в области мониторинга. // *Вопросы радиационной безопасности*. **1**, 4 (1997).
- ²⁸ Сапожников Ю.А., Алиев Р.А., Калмыков С.Н. *Радиоактивность окружающей среды*. (М: БИНОМ. Лаборатория знаний. 2006).
- ²⁹ Громов В. В., Москвин А. И., Сапожников Ю. А. *Техногенная радиоактивность мирового океана*. (М.: Энергоатом-издат 1985)
- ³⁰ Айбулатов Н.А. *Экологическое эхо холодной войны в морях Российской Арктики*. (М.: ГЕОС. 2000).
- ³¹ Матушенко А.М., et al. Ядерный полигон без грифа секретности (даты, события). // *Новая земля.. Т.3*. (М: Рос. НИИ культуры и природного наследия: 1994, **3**, 54-67).
- ³² Smith J.N., et al. ^{239,240}Pu transport into the Arctic Ocean from underwater nuclear tests in Chernaya Bay. // *Novaya Zemlya. Continental Shelf Research*. **20**, 255-279 (2000).
- ³³ Monetti M.A. Worldwide Deposition of ⁹⁰Sr through 1990. U. S. (Department of Energy Report EML-579. March 1996).
- ³⁴ Матишов Г.Г. *Радионуклиды в экосистеме Баренцева и Карского морей*. (Апатиты: КНЦ РАН. 1994).
- ³⁵ Foin L., Nikitin A. The joint norwegian-russian expedition to the dump-sites for radioactive wastes in the Abrosimov fiord and the Stepovogo fiord. (August-September 1994. Report from the expedition on board r/v "V. Buinitski", with some preliminary results. 1994. P.18).
- ³⁶ Кузнецов Ю. В., Ревенко Ю. А., Легин В. К. К оценке вклада реки Енисей в общую радиоактивную загрязненность Карского моря. // *Радиохимия*. **36**, 6, 546-559 (1994).

-
- ³⁷ Радиационная обстановка на территории России и сопредельных государств в 2004 году. Ежегодник. Под редакцией К.П. Махонько. (Санкт-Петербург: Гидрометеоздат, 2005)
- ³⁸ Круглов А.К. *Как создавалась атомная промышленность в СССР*. (М: ЦНИИАтоминформ. 1994)
- ³⁹ Фетисов В.И. Производственное объединение Маяк – из истории развития. // Вопросы радиационной безопасности. **1**, 5-10 (1996).
- ⁴⁰ Никипелов Б.В., Дрожко Е.Г. Взрыв на Южном Урале. // Природа. **5**, 48-49 (1990).
- ⁴¹ Глаголенко Ю.В., Дрожко Е.Г., Мокров Ю.Г. и др. Современное состояние и обеспечение вывода из эксплуатации водоемов-хранилищ жидких среднеактивных отходов – озера Карачай и хранилища Старое Болото. // Вопросы радиационной безопасности. **1**, 14-19 (2003).
- ⁴² Samsonova L. M. and Drozhko E. G. Migration of high-density industrial waste solutions through fresh groundwaters. In *Deep Injection Disposal of Hazardous and Industrial Waste: Scientific and Engineering Aspects*, (eds. J. A. Apps and C-F. Tsang). Chap. **41**, 669-680 (1996). Academic Press.
- ⁴³ Алексахин А.И. Особенности техногенных илов открытого хранилища ЖРО ПО Маяк водоема В-9 (Карачай). Атореф. на соиск. уч. ст. к.х.н. (Озерск. 2007).
- ⁴⁴ Радиационная обстановка на территории России и сопредельных государств в 1993 году. Ежегодник. Под редакцией К.П. Махонько. (Обнинск, НПО Тайфун. 1995).
- ⁴⁵ Экологический мониторинг. Состояние окружающей среды Томской области в 1997 году. (Томск: Изд. Госкомитета по охране окружающей среды. 1998).
- ⁴⁶ Рыбальченко А.И, Пименов М.К., Костин П.П. и др. *Глубинное захоронение жидких радиоактивных отходов*. (М.: Изд. АТ, 1994).
- ⁴⁷ Гритченко З.Г., Кузнецов Ю.В., Легин В.К. и др. Хронология формирования радиоактивно-загрязненных пойменных и донных отложений реки Енисей с помощью радиоактивных изотопов европия. // Радиохимия. **44**, (2), 185-189 (2002).
- ⁴⁸ Болсуновский А.Я., Горяченкова Т.А., Черкезян В.О. и др. Горячие частицы в Красноярском крае. // Радиохимия. **40** (3), 271-274 (1998).
- ⁴⁹ Smith-Briggs J.L., Craig D.R., Watterson J.D. et al. Evaluation of Radioactive Pollution of the Territories around Krasnoyarsk-26. Proc. Int. Conf. On Radiation Legacy of 20th Century: Environmental Restoration (Radleg-2000). (Moscow. 2000. P.32-33).
- ⁵⁰ Гритченко З.Г., Кузнецов Ю.В., Легин В.К. и др. «Горячие» частицы 2-го рода в пойменных почвах реки Енисей // Радиохимия. **43** (6), 639-642 (2001).
- ⁵¹ Носов А.В., Мартынова А.М. Анализ радиационной обстановки на реке Енисей после снятия с эксплуатации прямоточных реакторов Красноярского ГХК. // Атомная энергия. **81** (3), 226-231 (1996).
- ⁵² Павлоцкая Ф.И., Новиков А.П., Горяченкова Т.А. и др. Формы нахождения радионуклидов в воде и донных отложениях некоторых промышленных водоемов ПО « Маяк ». // Радиохимия. **40** (5), 462-467 (1998).
- ⁵³ Кузнецов Ю.В., Легин В.К., Струков И.Р. и др. Трансурановые элементы в пойменных почвах реки Енисей. // Радиохимия. **42** (6), 519-529 (2000).

-
- ⁵⁴ Романов Г.Н., Мартюшов В.В., Смирнов Е.Г. и др. Ландшафтно-геохимические аспекты почвенного покрова Восточно-Уральского радиоактивного следа. // *Геохимия*. **7**, 955-962 (1993).
- ⁵⁵ *Миграция в почве и ее моделирование*. Научн. труды. – М57. (М.: Почвенный институт им. В.В. Докучаева, 2006)
- ⁵⁶ Павлоцкая Ф.И. *Миграция радиоактивных продуктов глобальных выпадений в почвах*. (М.: Атомиздат, 1974)
- ⁵⁷ Silva R. J., Nitché H. Actinide Environment Chemistry // *Radiochemica Acta*. **70/71**, 377-396 (1995).
- ⁵⁸ Мотузова Г.В. *Соединения микроэлементов в почвах: системная организация, экологическое значение, мониторинг*. (Эдиториал УРСС, Москва, 1999)
- ⁵⁹ Зайдельман Ф.Р. Лессиваж и его связь с гидрологическим режимом почв. // *Почвоведение*. **2**, 133-144 (2007)
- ⁶⁰ Ковда В.А. *Основы учения о почвах*. (М.: Наука, 1973. Кн.1)
- ⁶¹ Шеин Е.В., Девин Б.А. Современные методы изучения коллоидного транспорта в почве. // *Почвоведение*. **4**, 438-449 (2007).
- ⁶² Горяченкова Т.А., Казинская И.Е., Кузовкина Е.В. и др. Изучение связи радионуклидов с коллоидным веществом почвенных растворов. // *Радиохимия*. **51** (2), 178-186 (2009).
- ⁶³ Романов Г.Н., Дрожко Е.Г., Никипелов Б.В. Кыштымская авария крупным планом: подводя итоги // *Природа*. **5**, 73-75 (1990).
- ⁶⁴ Романов Г.Н., Тепляков И.Г., Шилов В.П. Кыштымская авария крупным планом: восстановление хозяйственной деятельности // *Природа*. **5**, 67-72 (1990).
- ⁶⁵ Романов Г.Н., Спиринов Д.А., Алексахин Р.М. Поведение радиоактивных веществ в окружающей среде // *Природа*. **5**, 53-58 (1990).
- ⁶⁶ Романов Г.Н., Бакуров А.С. Плутоний в окружающей среде производственного объединения Маяк // *Вопросы радиационной безопасности*. **2**, 11-21 (1996).
- ⁶⁷ Информация об аварии на Чернобыльской АЭС и ее последствиях, подготовленная для МАГАТЭ // *Атомная энергия*. **61** (5), 301-320 (1986).
- ⁶⁸ Израэль Ю.А., Петров В.Н., Авдюшин С.И. и др. Радиоактивное загрязнение природных сред в зоне аварии на Чернобыльской атомной станции. (М.: Гидрометиздат, 1987)
- ⁶⁹ Радиоэкологические последствия Чернобыльской аварии. // Под ред. И.И. Крышева. (М., ИАЭ им. И.В.Курчатова, 1991)
- ⁷⁰ Медведев Ж.А. Подробная информация о масштабе и характере радиоактивных выпадений после аварии на ЧАЭС. // *Радиобиология*. **31** (6), 771-793 (1991).
- ⁷¹ Чернобыль. Радиоактивное загрязнение природных сред // Под ред. Ю.А.Израэля. (Ленинград: Гидрометиздат, 1990).
- ⁷² Кривохатский А.С., Смирнова Е.А., Савоненков В.Г. и др. Выщелачивание радионуклидов из частиц ядерного топлива и реакторного графита, выделенных из проб 30-километровой зоны Чернобыльской АЭС. Результаты по выщелачиванию радионуклидов на 1989-1991гг. // *Радиохимия*. **34** (5), 92-101 (1992).
- ⁷³ Новиков А.П., Павлоцкая Ф.И., Горяченкова Т.А. и др. Содержание и распределение радионуклидов в воде и донных отложениях некоторых промышленных водоемов ПО «Маяк». // *Радиохимия*. **40** (5), 453-462 (1998)

-
- ⁷⁴ Павлоцкая Ф.И., Горяченкова Т.А. Распределение плутония по компонентам природных органических веществ и их роль в его миграции в почвах. // Радиохимия. **29** (1), 99-106 (1987).
- ⁷⁵ Павлоцкая Ф.И. Геохимия искусственных радионуклидов. // В кн.: современные проблемы радиохимии и космохимии. (М.: Наука, 1993, 148-199)
- ⁷⁶ Смагин А.И. Экология промышленных водоемов предприятия ядерного топливного цикла на Южном Урале. (Озерск. Редакционно-издательский центр ВРБ. 2007)
- ⁷⁷ Смагин А.И., Лугаськова Н.В., Меньших Т.Б. Цитогенетическое исследование рыб из водоема-хранилища отходов ПО «МАЯК»// Проблемы радиозологии и пограничных дисциплин». Екатеринбург. **7**, 97-118 (2005).
- ⁷⁸ Смагин А.И. Радиозологические особенности водоема-хранилища отходов радиохимических заводов и состояние популяции обитающей в нем щуки. // Вопросы радиационной безопасности. **2**, 35-45 (1996).
- ⁷⁹ Носов А.В., Ашанин М.В., Иванов А.А. и др. Радиоактивное загрязнение р.Енисей, обусловленное сбросами Красноярского горно-химического комбината. //Атомная энергия. **74** (2), 144-150 (1993).
- ⁸⁰ Сухоруков Ф.В., Дегердменжи А.Г., Белолипецкий В.М. Закономерности распределения и миграция радионуклидов в долине реки Енисей. (Новосибирск: Изд-во СО РАН, 2004).
- ⁸¹ Носов А.В. Исследование механизмов миграции радиоактивных веществ в пойме р.Енисей. // Метеорология и гидрология. **2**, 84-91 (1997).
- ⁸² Кузнецов Ю.В., Легин В.К., Шишлов А.Е. Изучение поведения ^{239,240}Pu и ¹³⁷Cs в системе река Енисей - Карское море. // Радиохимия. **41** (2), 181-186 (1999)
- ⁸³ Радиационная обстановка на территории России и сопредельных государств 1993г. Ежегодник. (Обнинск-НПО "Тайфун". Росгидромет. 1994, 93-110).
- ⁸⁴ Кузнецов Ю. В., Легин В. К., Струков В. Н. и др. Трансурановые элементы в пойменных отложениях реки Енисей // Радиохимия. **42** (5), 470-477 (2000).
- ⁸⁵ Кузнецов Ю. В., Ревенко Ю. А., Легин В. К. К оценке вклада реки Енисей в общую радиоактивную загрязненность Карского моря. // Радиохимия. **36**, 6, 546-559 (1994).
- ⁸⁶ Болсуновский А.Я., Ермаков А.И., Мясоедов Б.Ф. и др. Новые данные по содержанию трансурановых элементов в донных отложениях реки Енисей. // Докл. Акад. наук. **387** (6), 233-236 (2002).
- ⁸⁷ Куликов Н.В., Чеботина М.А. *Радиозология пресноводных биосистем.* (Свердловск: УрО АН СССР. 1988)
- ⁸⁸ Болсуновский А.Я., Косиненко С.В. Экспериментальные исследования интенсивности поглощения ³²P пробами альгобактериального сообщества реки Енисей. //Радиационная биология. Радиозология. **41** (1), 119-123 (2001).
- ⁸⁹ Галимов Э.М., Кодина Л.А., Степанец О.В. и др. Биохимия российской арктики. Карское море. Результаты исследований по проекту sirgo 1995-2003 годы. // Геохимия. **11**, 1139-1191 (2006).
- ⁹⁰ Гусев Б.А., Епимахов Б.Н., Ефимов А.А. и др. Комплексное решение проблем радиозологической безопасности объектов атомной энергетики, промышленности и флота. (СПб.: ВВМ, 2009)

-
- ⁹¹ Галимов Э.М., Наверное Н.Р. Степанец О.В. и др. Предварительные результаты эколого-геохимического исследования Арктических морей России (по материалам 22 рейса НИС "Академик Борис Петров). // *Геохимия*. **7**, 379-597 (1996).
- ⁹² Галимов Э.М., Кодина Л.А., Степанец О.В. и др. Биогеохимия российской арктики. Карское море. Результаты исследований по проекту sirro 1995-2003 годы. // *Геохимия*. **11**, 1139-1191 (2006).
- ⁹³ Громов В. В., Москвин А. И., Сапожников Ю. А. *Техногенная радиоактивность мирового океана*. (М.: Энергоатом-издат 1985)
- ⁹⁴ Сапожников Ю.А., Алиев Р.А., Калмыков С.Н. *Радиоактивность окружающей среды*. (М: БИНОМ. Лаборатория знаний. 2006)
- ⁹⁵ Eyrolle, F. and Charmasson S. Importance of colloids in the transport within the dissolved phase (<450 nm) of artificial radionuclides from the Rhône river towards the Gulf of Lions (Mediterranean Sea). // *Journal of Environmental Radioactivity*. **72**, 273–286 (2004).
- ⁹⁶ Morse, J.W. and Choppin G.R. Laboratory studies of plutonium in marine systems. // *Marine Chemistry*. **20**, 73 (1986).
- ⁹⁷ Kershaw P.J., et al. Plutonium from European reprocessing operations — Its behaviour in the marine environment. // *Applied Radiation and Isotopes*. **46** (11), 1121-1134 (1995).
- ⁹⁸ Choppin, G.R. f-elements and environmental behavior. // *European Journal of Solid State and Inorganic Chemistry*. **28**, 319-333 (1991).
- ⁹⁹ Назина Т.Н., Лукьянова Е.А., Захарова Е.В. и др. Распространение и активность микроорганизмов в глубинном хранилище жидких радиоактивных отходов Сибирского химического комбината. // *Микробиология*. **75** (6), 836-848 (2006).
- ¹⁰⁰ Лукьянова Е.А., Захарова Е.В., Константинова Л.И. Сорбция радионуклидов микроорганизмами из хранилища жидких низкоактивных отходов. // *Радиохимия*. **50** (1), 29-36 (2008).
- ¹⁰¹ Singer D.M., Farges F., Brow G. E. Biogenic nanoparticulate UO₂: Synthesis, characterization and factors affecting surface reactivity. // *Geochimica et Cosmochimica Acta*. **73**, 3593–3611 (2009).
- ¹⁰² Burgos W. D., McDonough J. T., Senko J. M. et al. Characterization of uraninite nanoparticles produced by *Shewanella oneidensis* MR-1. // *Geochimica et Cosmochimica Acta*. **72**, 4901-4915 (2008).