

СОДЕРЖАНИЕ

ВВЕДЕНИЕ	7
1. Аналитическая часть	12
1.1. Реактивы и материалы	12
1.2. Объекты исследования.....	12
1.3. Методики анализа.....	13
ОСНОВНАЯ ЧАСТЬ.	25
2 Выбор направления исследования, отбор и классификация образцов	25
2.1. Обзор литературы.....	25
2.2. Постановка направлений и задач исследования.....	79
2.3. Отбор и классификация образцов	80
3. Проведение теоретических и экспериментальных исследований	104
3.1. Поверхностная травяная растительность, почвы и приповерхностные грунтовые воды Кирово-Чепецкого химического комбината.....	104
3.2. Керны пород, взвешенное вещество и подземные грунтовые воды промплощадки ФГУП ПО Маяк	107
3.3. Пластовые воды и взвешенное вещество, из глубинных наблюдательных скважин ОАО СХК.....	116
3.4. Вода, взвеси, донные отложения, пойменные почвы и водная растительность реки Енисей вблизи ФГУП ГХК.....	121
3.5. Биота и почвы ВУРС вблизи ФГУП ПО Маяк и почвы ВУРС	131
3.6. Биота, почвы и поверхностные воды зоны воздействия аварийного подземного ядерного взрыва (ПЯВ) «Кратон-3», Якутия.....	140
3.7. Морская вода и взвешенное вещество Белого и Карского морей	147
ЗАКЛЮЧЕНИЕ	149
ИСПОЛЬЗОВАННЫЕ ЛИТЕРАТУРНЫЕ ИСТОЧНИКИ	157

НОРМАТИВНЫЕ ССЫЛКИ

В настоящем отчете о НИР использованы ссылки на следующие стандарты:

1. ГОСТ 7.32-2001. Отчет о научно-исследовательской работе.
2. ГОСТ Р 15.011-96. Система разработки и постановки продукции на производство.
Патентные исследования.
3. ГОСТ 7.9-95. Реферат и аннотация.

ОБОЗНАЧЕНИЯ И СОКРАЩЕНИЯ

ЯТЦ – ядерный топливный цикл

ОЯТ - отработавшее ядерное топливо

РАО - радиоактивные отходы

ВАО – высокоактивные отходы

РН – радионуклиды

ВУРС – Восточно-Уральский радиоактивный след

ТУЭ - трансурановые элементы

РЗЭ - редкоземельные элементы

ПД – продукты деления ядерного топлива

ГВ – гумусовые вещества

ГК – гуминовые кислоты

ФК – фульвокислоты

НМОС – низкомолекулярные органические соединения

ННОВ - низкомолекулярные неспецифические органические вещества

ЛГБ – ландшафтно-геохимические барьеры

ГПС – гуминовые производные соединения

ТПЭ – трансплутониевые элементы

КЧХК - Кирово-Чепецкий химический комбинат

ОАО СХК – Сибирский химический комбинат

ФГУП ГХК – горно-химический комбинат

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 альфа-излучающие 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 территории страны на содержание 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 зон предприятий ядерного-топливного цикла (ЯТЦ) 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 [1]. 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 [2]. 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 [3]. 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.

Цель выполнения данной научно-исследовательской 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.

Проведенный на первом этапе 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: рН; 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 на первом этапе был применен принцип 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.

На заключительном этапе были проведены 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 было 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 на первом этапе включает обор образцов в соответствие с принципами ландшафтно-геохимических исследований, их классификацию специалистами (почвоведями, биологами, геохимиками), химический, элементо-органический и радиохимический анализ. На заключительном этапе планировалось применение спектральных методов определения и химических методов фракционирования форм нахождения актинидов

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».

1.2. Объекты исследования

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 воздействия подземного ядерного взрыва «Кратон».

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 тетрагидроэтане (**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 LaF₃ (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 pH=9 со стабильным стронцием и измеряли общую бета-активность до накопления дочернего ⁹⁰Yt.

Измерение активности актинидов проводили на альфа-спектрометрической установке, (Canberra) с полупроводниковыми PIPS детекторами (8 камер). Фон установки в области пиков ^{236, 239,240}Pu - $1 \cdot 10^{-3}$ имп/мин, эффективность счета - около 30%, разрешение по эталону ^{239,240}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 прокаливали при 900⁰С и измеряли сигнал его люминесценции на разработанном в ГЕОХИ РАН анализаторе ЛЛФ-5. В качестве кристаллофосфоров применяли CaF₂, PbMoO₄ и NaBi(WO₃)₂ при определении пар: уран - нептуний, плутоний - нептуний и нептуний - америций, соответственно.

Коэффициенты очистки пар ⁹⁰Sr/¹³⁷Cs, ^{239,240}Pu/²²⁸Th, ²³⁸Pu/²⁴¹Am, ²⁴¹Am/²³⁸Pu и ²³⁹Np/Fe по описанной выше методике составляли - 10³, 10⁴, 10⁴, 10³ и 10³, соответственно.

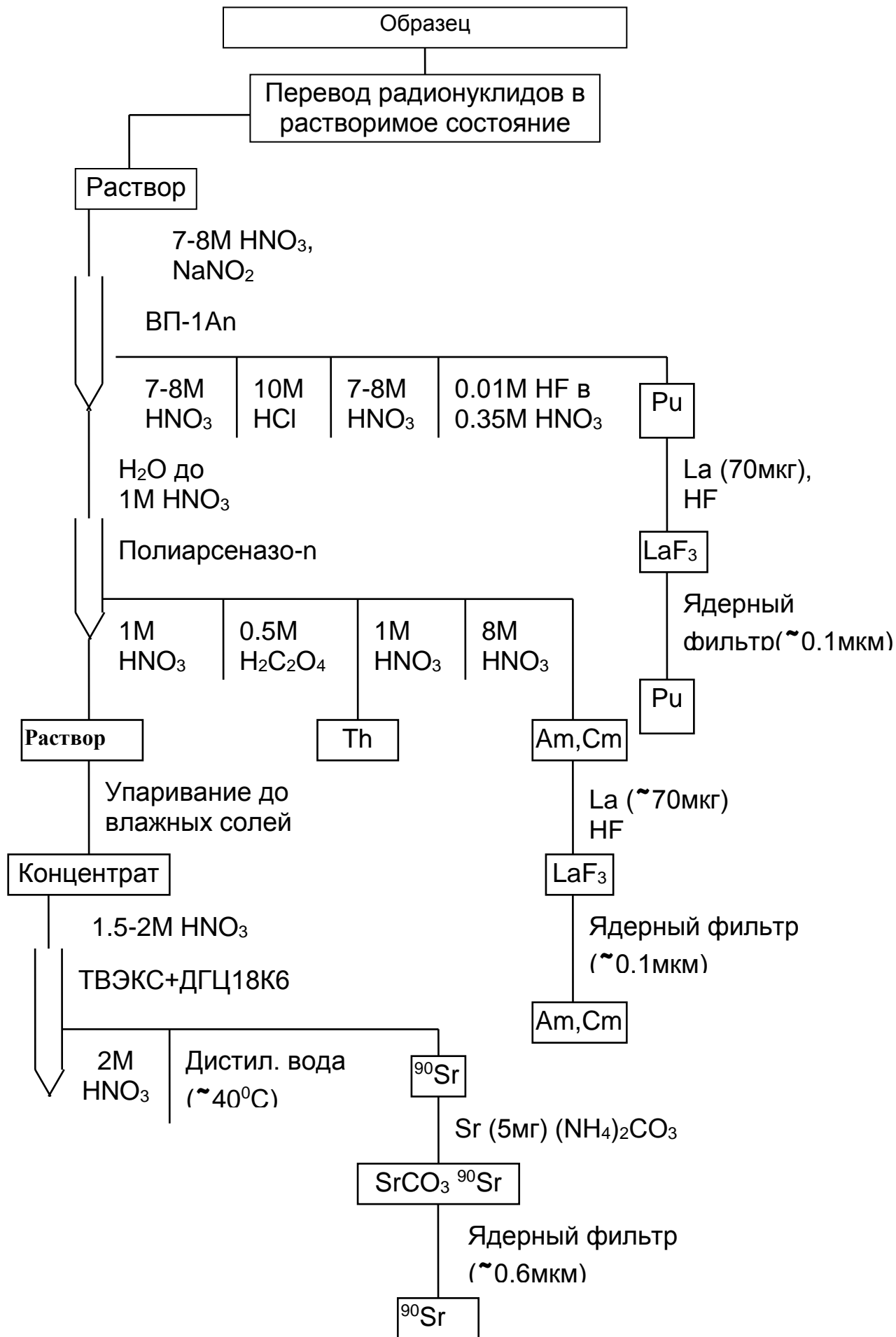


Рис. 1. Схема радиохимического анализа образцов

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 $(NH_4)_2SO_4 \cdot FeSO_4 \cdot 6H_2O$ 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 спектроскопии (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 $\text{Na}_2\text{SO}_4 \cdot 10\text{H}_2\text{O}$ (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 $\text{R}_2\text{O}_3 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ 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, озоляют в муфельном шкафу при $t=500^\circ$, обрабатывают при кипячении в течение 30-40 мин дважды с 7,5М HNO_3 , 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 (N_2) 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: $R^z = C^z/C^o$, где C^o 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.

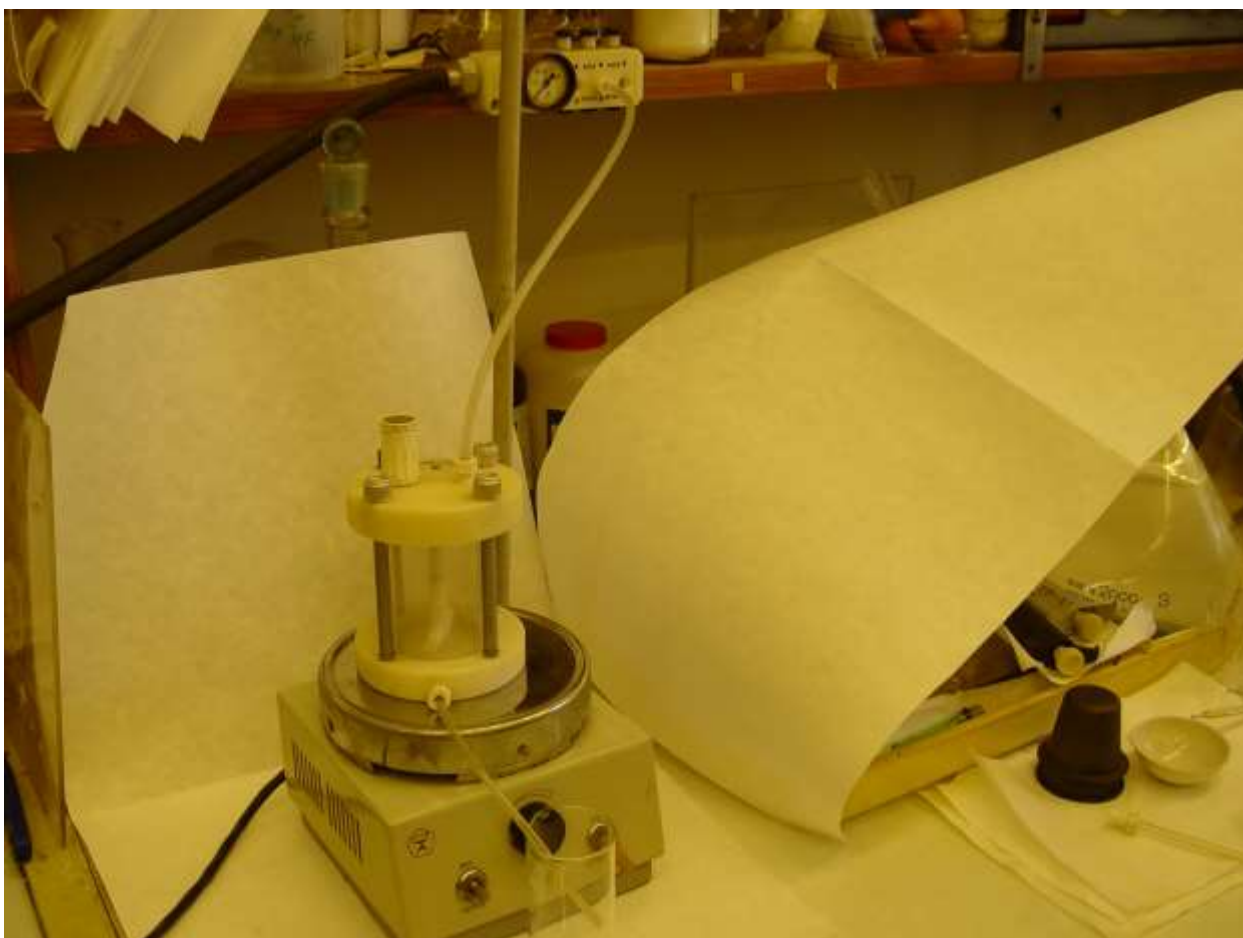


Рис. 2. Внешний вид фильтрационной ячейки

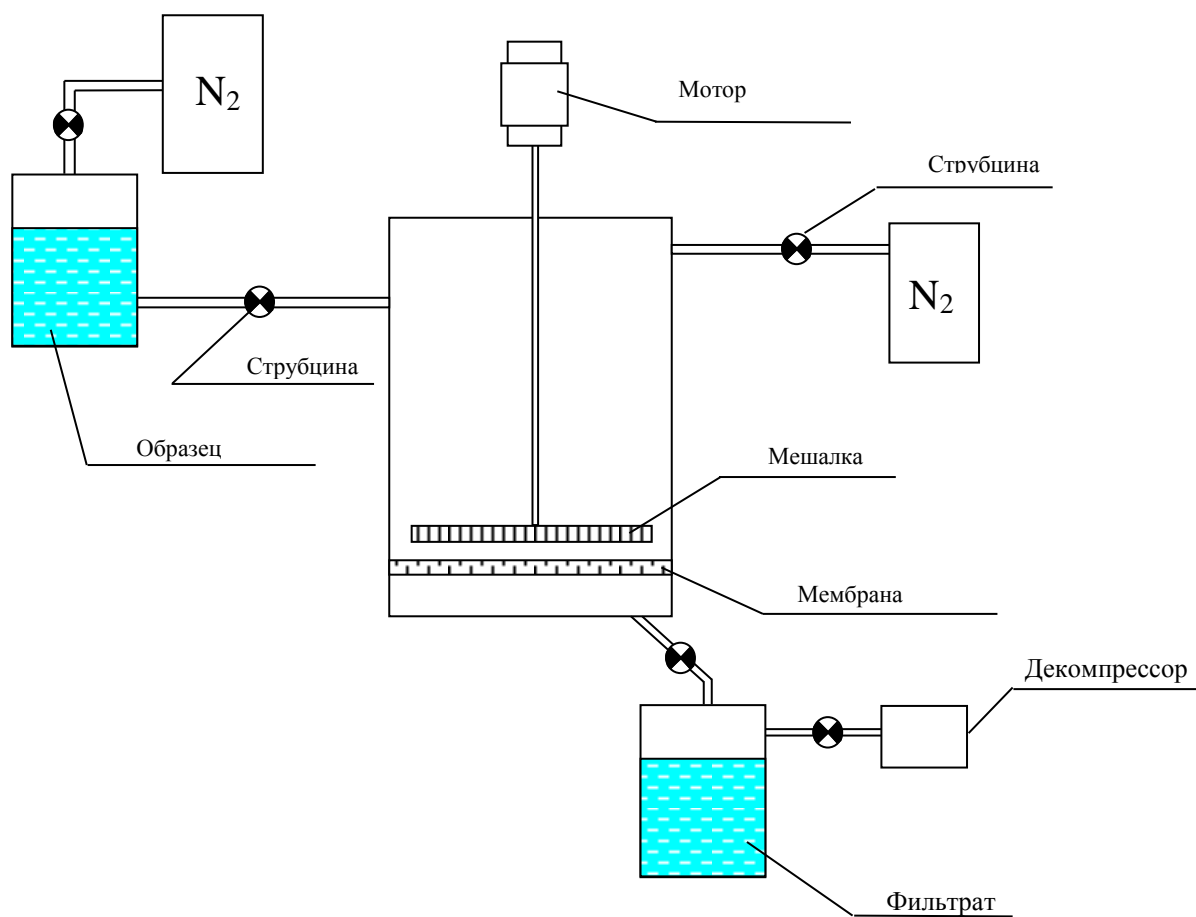


Рис. 3. Схема ультрафильтрационной установки



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.

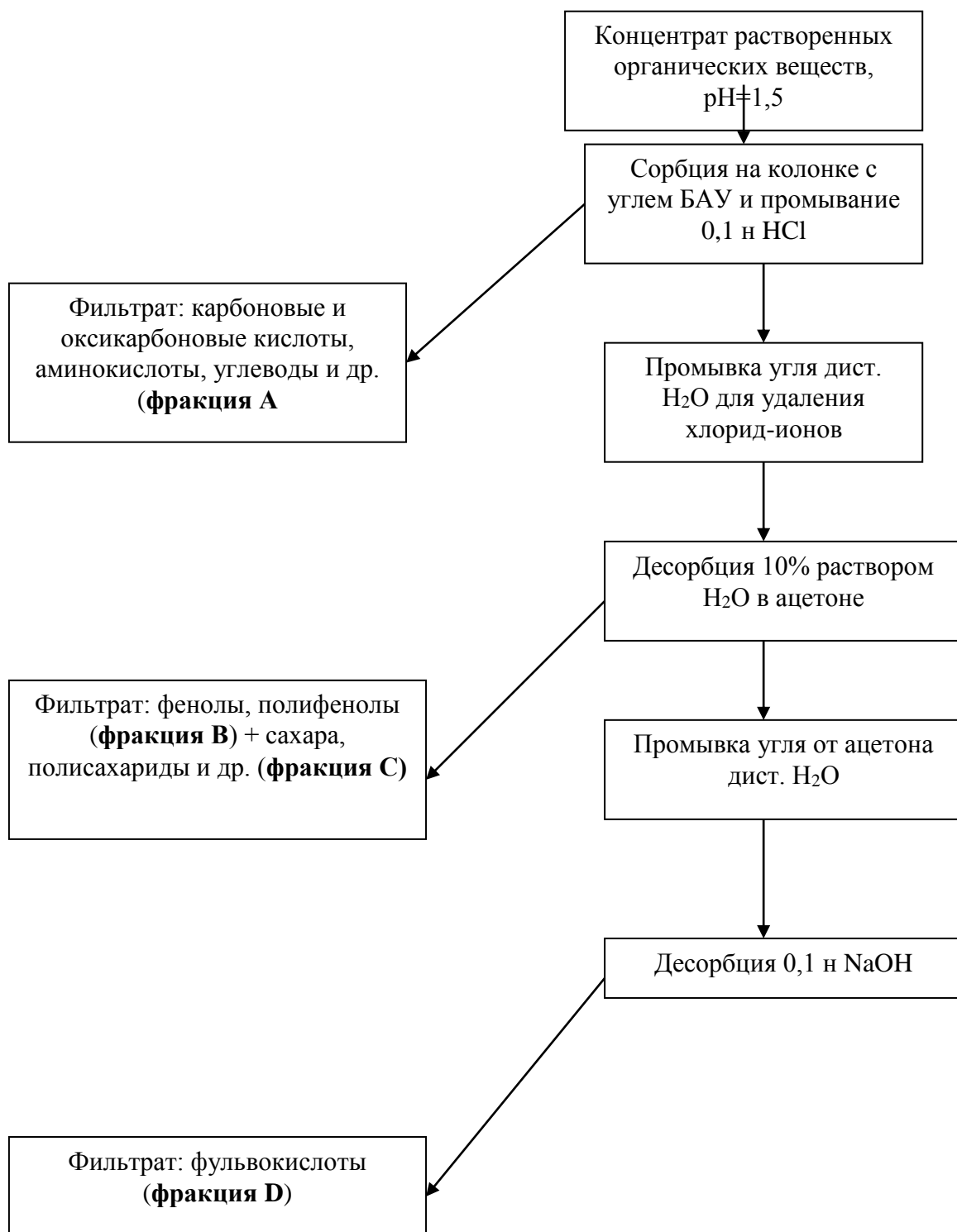


Рис. 5. Схема фракционирования растворенных органических веществ методом адсорбционной хроматографии на угле БАУ

II. ОСНОВНАЯ ЧАСТЬ.

2. 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.

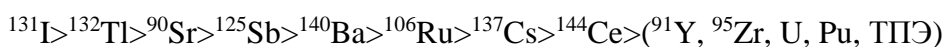
2.1.1.1. Формы нахождения радионуклидов в выбросах различных источников радиоактивного загрязнения окружающей среды.

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 ± 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 цирконеовой, 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).

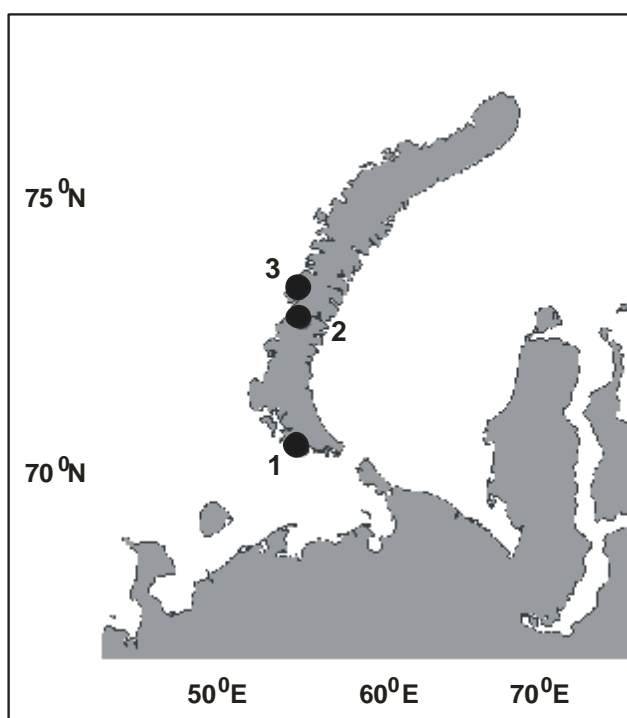


Рис. 6. Места проведения ядерных взрывов на Новоземельском полигоне: 1 – губа Черная, 2 – пролив Маточкин шар, 3 – губа Митошиха.

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 ограничен. 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.

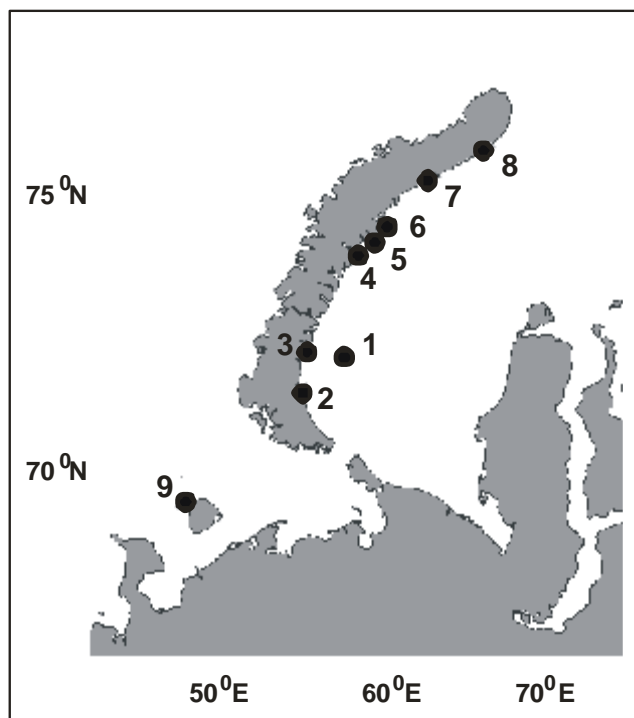


Рис. 7. Карта расположения мест захоронения РАО в Карском и Баренцевом морях: 1 – Новоземельская впадина, 2 – залив Абросимова, 3 – залив Степового, 4 – залив Цивольки, 5 – залив Ога, 6 – залив Седова, 7 – залив Благополучия, 8 – залив Течений, 9 – о. Колгуев.

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.

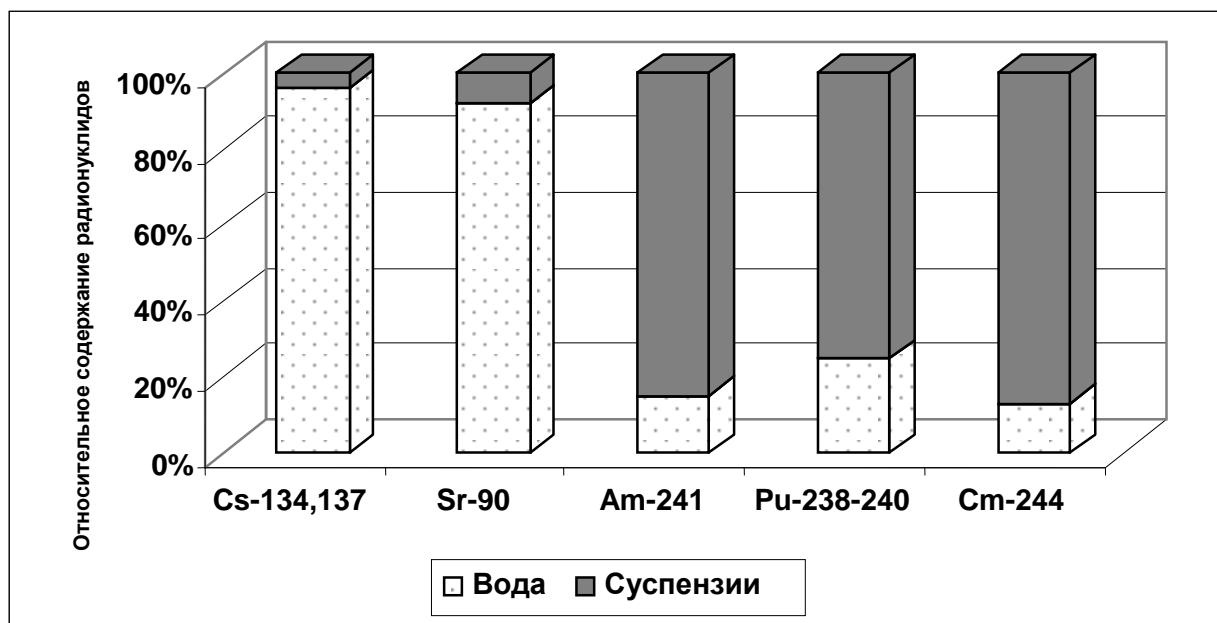


Рис. 8. Распределение радионуклидов между водой и взвешенным веществом в оз. Карачай

Таблица 3. 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*10 ⁶ (9)	1.6*10 ⁶ (13)	7 000 (44)	7.0*10 ³ (1)
Донные отложения	10.8*10 ⁶ (91)	8.5*10 ⁶ (87)	8 900 (56)	8.0*10 ⁵ (99)
Всего, Ки	1.2*10 ⁶	1.2*10 ⁷	~16000	8.0*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.

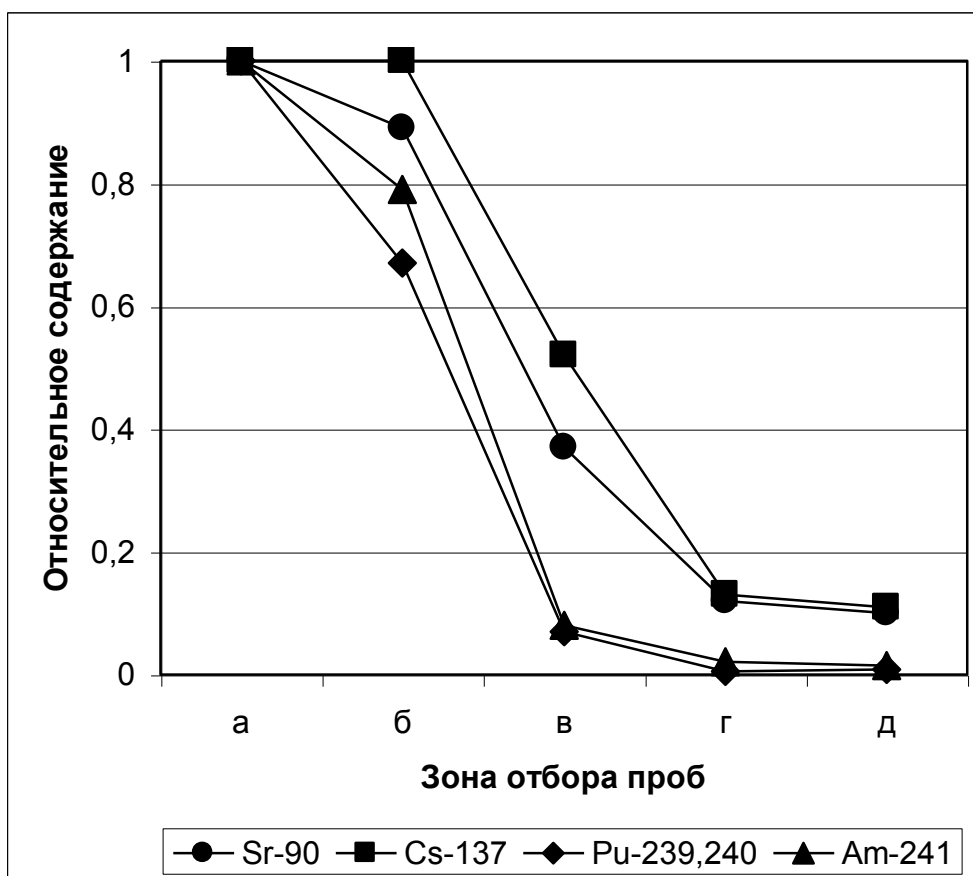


Рис. 9. Относительное содержание радионуклидов в 0-3 см слое донных отложений на ключевых участках в водоеме В-10 (за единицу принята их концентрация в этом же слое в русле): а -русло, б - бывшая пойма, в-д - затопленные территории в направлении от русла к периферии.

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**).

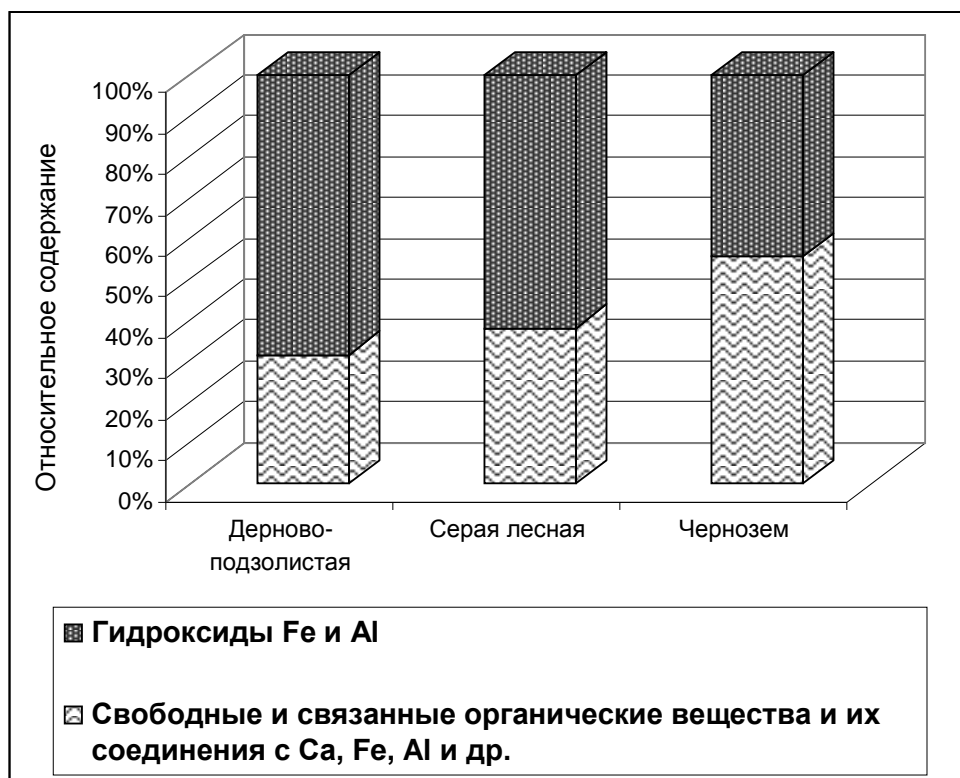


Рис. 10. Распределение плутония между органическими и неорганическими компонентами почв, %.

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.

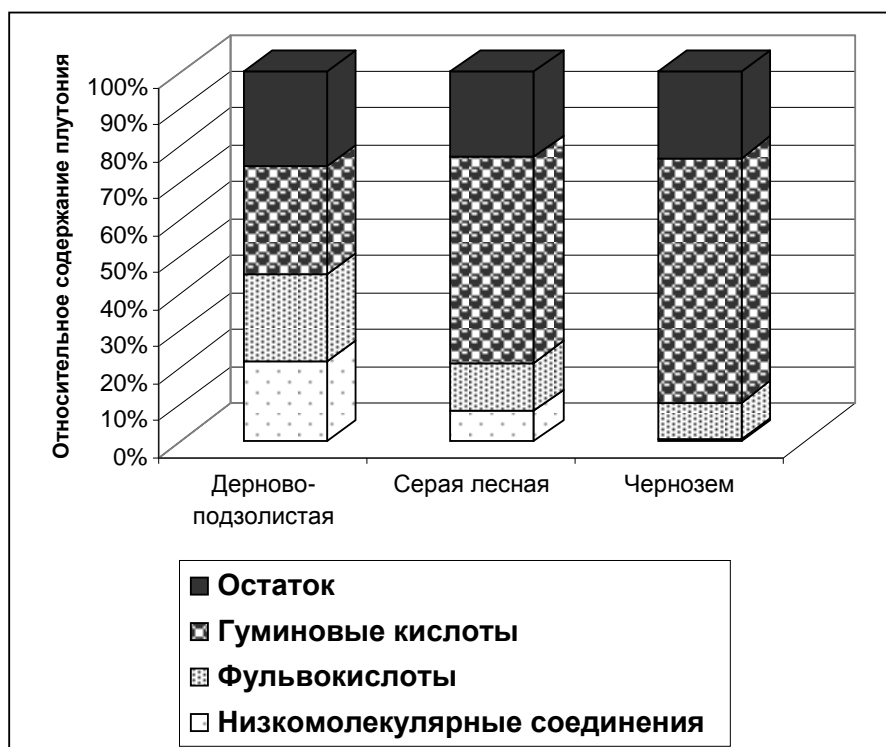


Рис. 11. Содержание плутония в отдельных группах органического вещества почв, %

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.

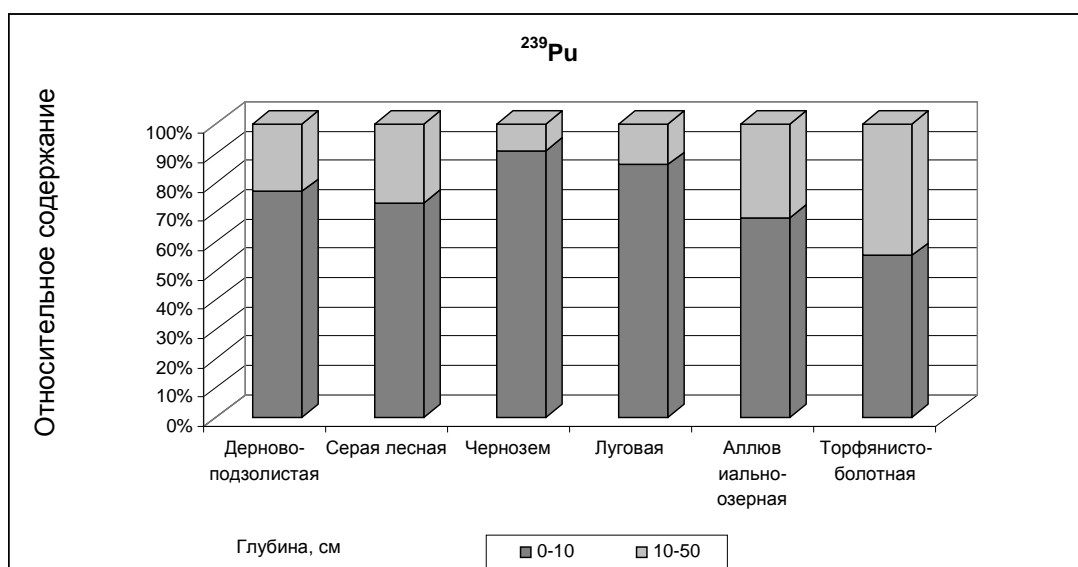
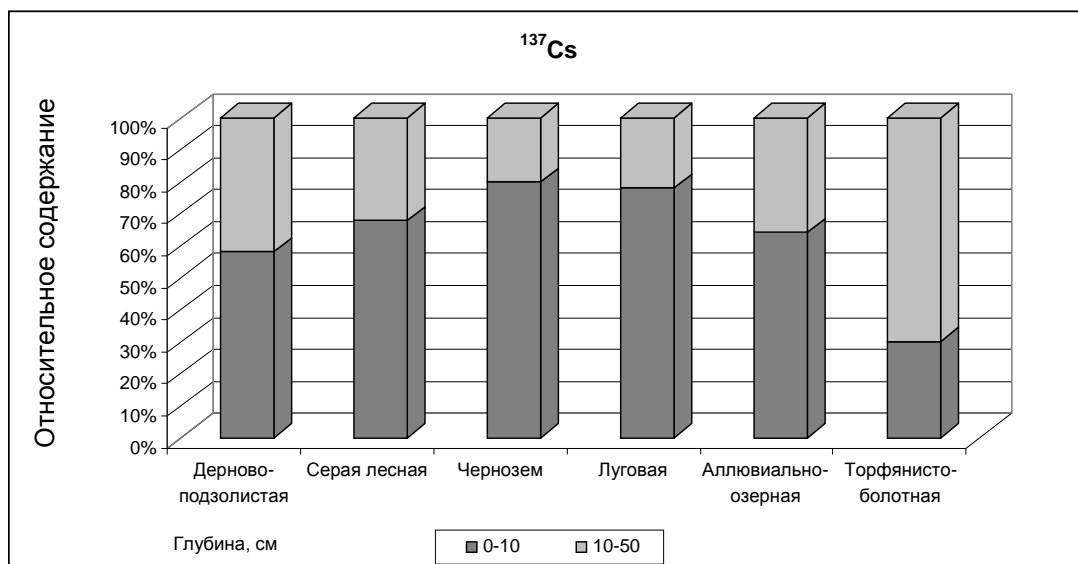
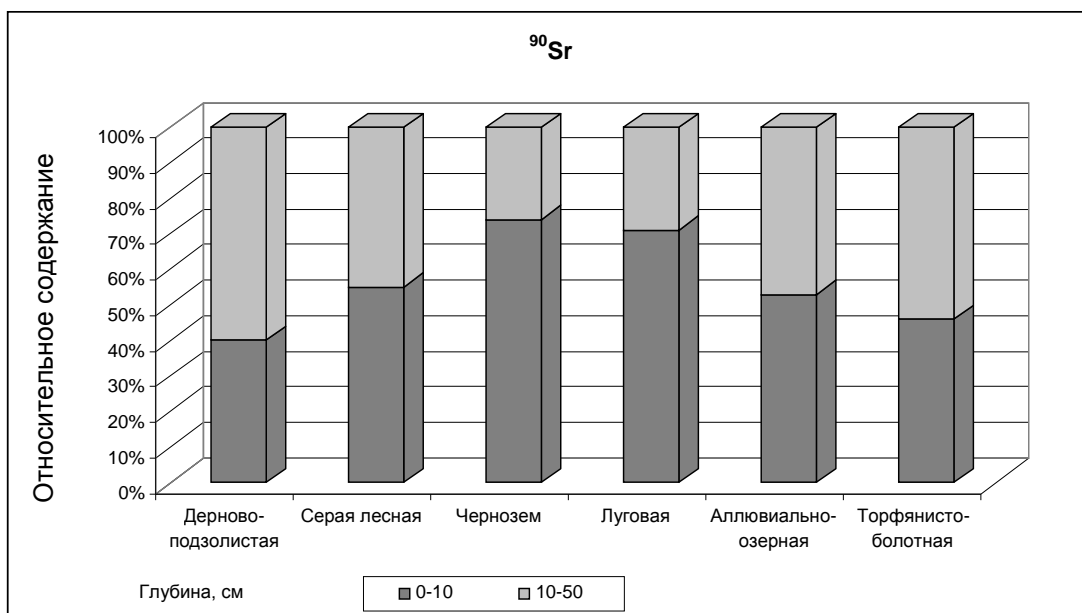


Рис. 12. Распределение радиостронция, радиоцезия и плутония по горизонтам почв различного генетического строения.

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).

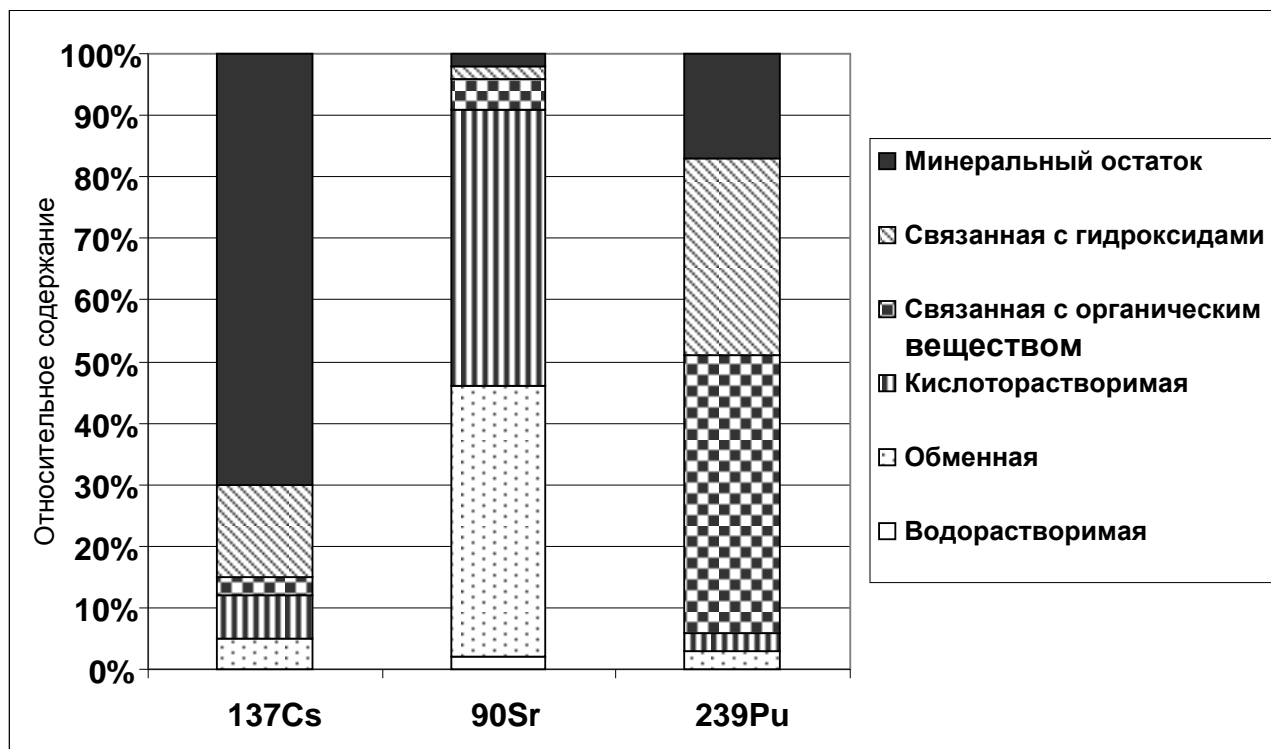


Рис. 13. Формы нахождения радионуклидов в черноземе выщелоченном.

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 $C_{\text{орг}}$ 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 ультраfiltrации 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 высокомолекулярной 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 взвешях 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**).

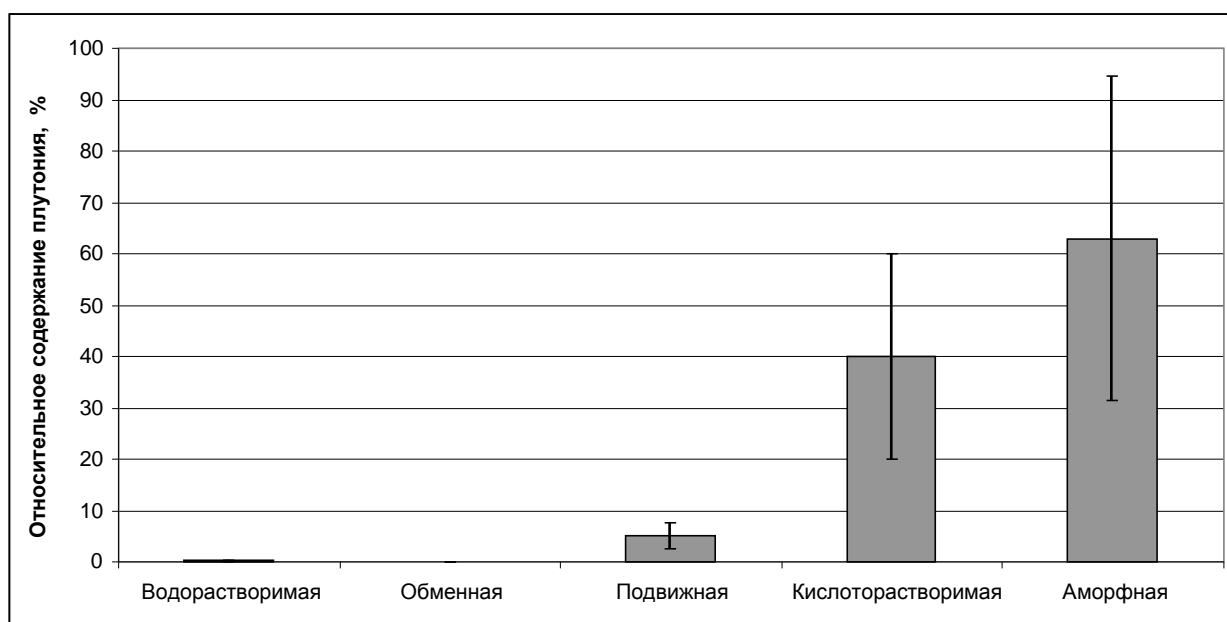


Рис. 14. Формы плутония в почвах после аварии на ЧАЭС.

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.

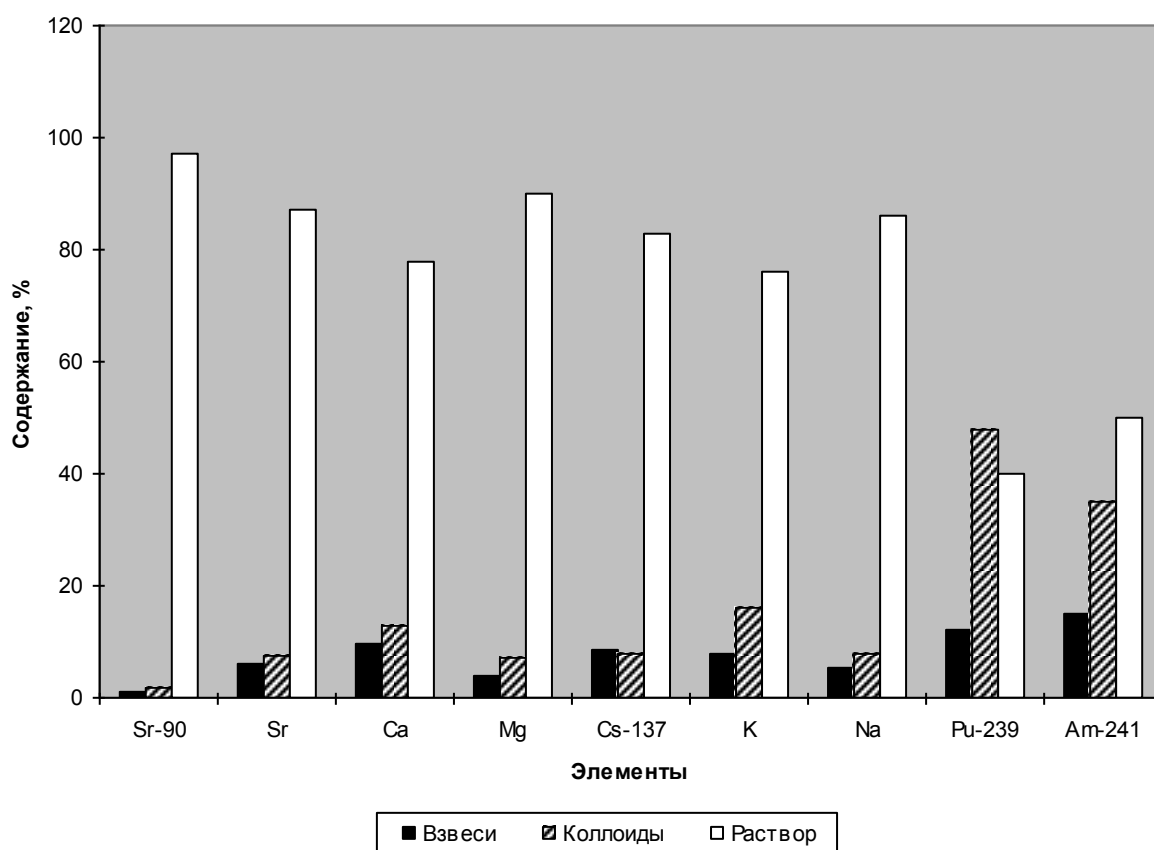


Рис. 15. Фазовое распределение радионуклидов, щелочных и щелочноземельных элементов в водной фазе, %

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 (Kd) 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	Kd, л/кг			
		^{90}Sr	^{137}Cs	Pu	Am
1	Торф	91	151	38975	71748
2	Темно-серый, суглинок	144	Не опр.	Не опр.	Не опр.
3	Темно-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	Темно-серый, легкий суглинок	57	12450	Не опр.	Не опр.
7	Палево-серый, палевые включения, легкий суглинок	25	4656	22000	21430
8	Серый, опесчаненый суглинок	192	35000	Не опр.	
9	Темно-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 50-60° северной широты фоновые содержания $^{239,240}\text{Pu}$ и ^{137}Cs оцениваются 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 (*Phyllolimnogammarus 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 $2 \times 10^2 - 2 \times 10^5$. 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.

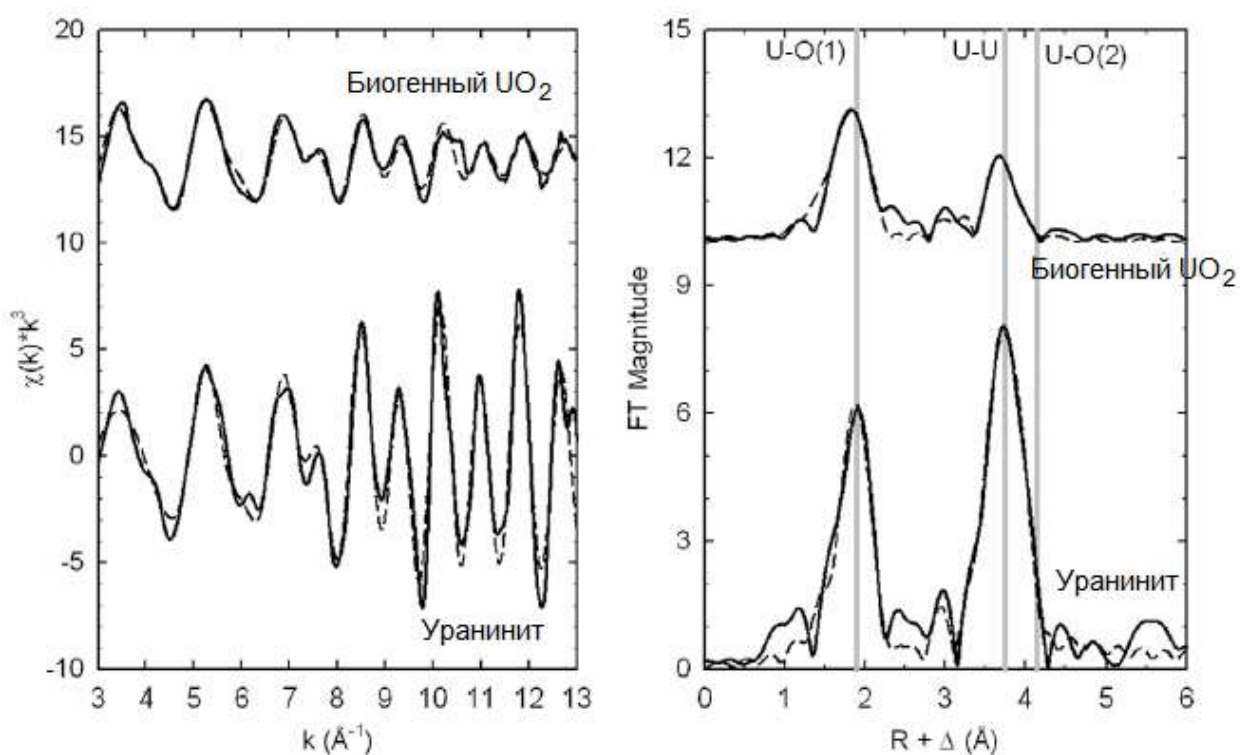


Рис. 16. Результаты EXAFS для биогенных наночастиц диоксида урана и макрокристаллического образца диоксида урана показаны непрерывной линией и результаты расчетов пунктирной линией. Слева результаты показаны в k -пространстве, слева – после преобразования Фурье.

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**.

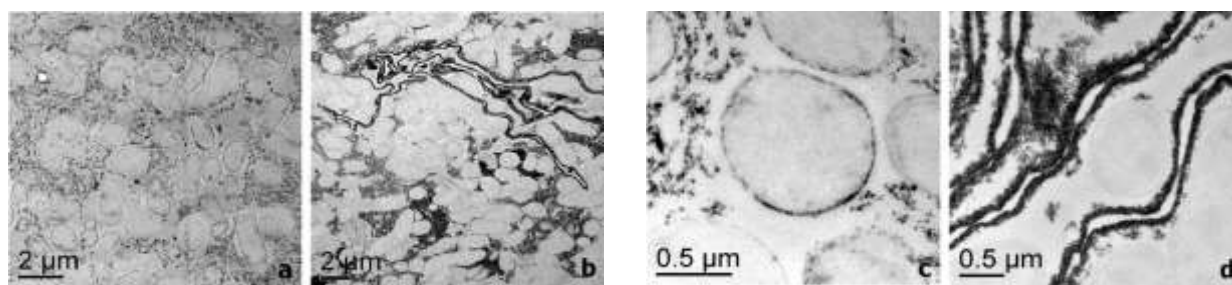


Рис. 17. Изображения бактерий *Shewanella* после контакта с раствором уранила, полученные методом ПЭМ.

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. 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. Поверхностная травяная растительность, 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 ОАО СХК.

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

5. Биота и почвы ВУРС вблизи ФГУП ПО Маяк и почвы ВУРС.

6. Биота, почвы и поверхностные воды зоны воздействия аварийного подземного ядерного взрыва (ПЯВ) «Кратон-3», Якутия.

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

Отбор проб осуществляли сотрудники ГЕОХИ РАН, ФГУП ПО Маяк, ОАО СХК, Гидроспецгеология (ООО «Геосервис»), ФИБ УО РАН (г. Челябинск), Института биофизики СО РАН (Красноярск), ФГУП НПО «Радиевый институт им. В.Г. Хлопина», Института биофизики криогеографической зоны (Якутск).

Ниже приведены описание и данные по составу отобранных образцов.

2.3.1. Растительность, 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			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			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			Растительность	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		Растительность	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			Растительность	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		Растительность	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			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			Растительность	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			Растительность	10,5±2,6	86±9	70,0±11,0**
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			Растительность	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:

1. Стронций определяли после отделения плутония, кроме образцов, помеченных **

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			Растит.	12,4±3,7	13,7±2,9	11,2±1,7	11,6±3,8
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			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			Растит.	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		Растит.	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			Растит.	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		Растит.	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			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			Растит.	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			Растит.	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			Растит.	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	POУ	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	POY	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	POY	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	POY	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 ОАО СХК.

Таблица 21. Химический состав вод наблюдательных скважин СХК.

Скважина	pH	Eh	HCO ₃ ²⁻	Cl ⁻	SO ₄ ²⁻	PO ₄ ³⁻	NO ₃ ⁻
А-44	6,70	- 98	359,9	16,3	202,0	0,06	2544
А-6	6,92	- 120	210,4	8,0	10,6	0,025	7,1
А-46	6,79	- 105	372,1	9,8	47,2	0,25	9,8
А-3	7,07	- 118	234,8	7,8	26,6	0,25	1,5
С-15	6,98	-100	265	12,0	2,1	-	0,2

Продолжение Таблицы 21.

Скважина	Na	K	Li	Cs	Ca	Mg	Ba	Sr	Mn	Al	Fe	Zn	B
А-44	500,0	24,9	0,021	0,02	338,0	233,0	0,2	15,7	0,8	1,1	0,40	0,008	<0,01
А-6	26,0	5,8	0,001	<0,005	31,5	16,9	0,49	1,65	0,12	0,18	5,80	0,025	0,2
А-46	30,3	9,1	0,001	<0,005	62,0	39,8	0,48	2,7	0,17	0,54	3,47	0,02	0,12
А-3	44,4	16,6	0,003	<0,005	28,5	12,5	0,15	1,4	0,29	0,25	3,30	0,009	0,1
С-15	38,8	4,5	-	-	17	11	-	-	0,07	0,4	3,2	-	-

Таблица 22. Радионуклидный состав вод наблюдательных скважин СХК и фильтратов.

А-46				
Мембрана, нм	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
А-44				
Мембрана, нм	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
А-3				
Мембрана, нм	U	Np	²³⁸⁻²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Am
	мг/л	мг/л	Бк/л	Бк/л

450**	0,0041	$2,0 \times 10^{-6}$	0,038	0,022
200	0,0038	$1,9 \times 10^{-6}$	0,034	0,022
50	$9,2 \times 10^{-4}$	$1,3 \times 10^{-6}$	0,026	0,015
5	$5,2 \times 10^{-4}$	$4,5 \times 10^{-7}$	0,017	0,0051
А-6				
Мембрана, нм	U	Np	²³⁸⁻²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Am
	мг/л	мг/л	Бк/л	Бк/л
450**	0,0067	$4,0 \times 10^{-6}$	0,023	0,098
200	0,0061	$2,9 \times 10^{-6}$	0,017	0,087
50	0,0021	$2,3 \times 10^{-6}$	0,015	0,065
5	0,00072	$5,5 \times 10^{-7}$	0,0024	0,013
С-15				
Мембрана, нм	U			
	мг/л			
450**	0,00059			
200	0,00061			
50	0,00061			
5	0,00059			

** - исходная пластовая вода, отфильтрованная через стеклянный фильтр при пробоотборе

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

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			
			²³⁸ U	^{239,240} Pu	²⁴¹ Am	²³⁷ Np
Протока Куваширская	16 выше от ГХК	519а	11,0	15,5	0,2	0,003
У правого берега	1	520а	15,2	21,1	0,4	0,02
У правого берега	6	521а	11,4	26,9	0,3	0,005
О. Атамановский, у правого берега	7	522а	10,7	9,6	0,2	0,004
У левого берега	15	523а	10,4	5,6	0,2	0,001
Протока Балчуковская, у правого берега	19	524а	11,3	36,3	0,2	0,004
Протока Хлопуновская, у левого берега	19	525а	13,2	35,1	0,2	0,006
О. Заячий, на приверхе	22	526а	10,4	15,2	0,2	<ПО*
О. Тарыгин, ухвостье	28	527а	10,4	5,3	0,2	<ПО
Протока Старый Енисей	45	528а	10,5	1,9	0,3	<ПО
Осерёдок у правого берега	63	529а	10,1	1,3	0,1	<ПО

* - ниже предела обнаружения

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

№	Описание	С, %	N,%	C/N	K	Na	Ca	Mg	Fe	Al
524а	Темно-серый, илистый	15,2	1,51	10,1	15	31	34	19	86	76
520а	Темно-серый, средний суглинок	9,4	0,71	13,2	18	8	23	19	82	78
522а	Темно-серый, опесчаненный суглинок	4,2	0,29	14,5	16	19	24	16	90	77
528а	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	Место отбора	²³⁸ U	²³⁷ Np	²⁴¹ Am	²³⁹ Pu
		Бк/кг	Бк/кг	Бк/кг	Бк/кг
Роголистник темно-зеленый	519а	0,11	13	0,013	0,19
	524а	0,23	1,4	0,015	0,02
Мох ключевой	520а	0,15	32,2	0,27	3,2
	528а	0,17	0,01	0,02	1,0
Элодея канадская	521а	0,12	6,4	2,0	0,23
	525а	0,13	0,03	0,04	1,5
Рдест блестящий	522а	0,16	16,1	1,1	0,35
Среднее содержание радионуклида в воде		0,1	<ПО	<ПО	0,04

2.3.5. Биота и почвы ВУРС вблизи ФГУП ПО Маяк и почвы ВУРС.

Таблица 26. Описание образцов, отобранных в районе озера Кызылташ и на территории ВУРСа.

№	Образец	Место отбора	Описание образцов
1	Лесная подстилка из-под крон деревьев	Оз. Кызыл-Таш, в 5-6 мм от уреза водоема	Темно-серая, смесь растительных остатков разной степени разложения и растительного опада текущего года, легкая, слабовлажная.
2	Донные осадки	Оз. Кызыл-Таш	Песок, влажный, зеленовато-серый, примесь речной гальки, разного размера от мелкой до крупной, редкие включения речных растений.
3	Песок	Оз. Кызыл-Таш, прибрежная зона	Песок серо-сизый, смешанной с мелкой галькой, влажный, присутствуют остатки полуразложившихся растений.
4	Лесная подстилка	Ось ВУРСа, 10 км от эпицентра	Темно-серая, слабовлажная, смесь растительных остатков разной степени разложения
5	Почва, темно-серая лесная.	Ось ВУРСа, 10 км от эпицентра, глубина отбора 5-7 см	Темно-серая. влажная, структура комковатая, механический состав-суглинок
6	Растительность, камыш	Оз. Кызыл-Таш	Наземная и корневая часть растений
7	Растительность, рогоз	Оз. Кызыл-Таш	Наземная и корневая часть растений

Таблица 27. Содержание радионуклидов отобранных образцах(Таб. 26), Бк/кг.

№	²³⁷ Np	²³⁹⁻²⁴⁰ Pu	²³⁸ Pu	²⁴¹ Am	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs
1	2,6	28	17	12	28	132
2	1,2	294	205	120	1570	12900
3	1,8	222	320	124	1785	14200
4	234	2313	1245	569	12000	13000
5	120	550	220	231	10900	14500
6	149	162	257	146	132	32
7	76	67	104	43	89	14

2.3.6 Биота, почвы и поверхностные воды зоны воздействия аварийного подземного ядерного взрыва (ПЯВ) «Кратон-3», Якутия.

Таблица 28. Результаты определения радионуклидов в природных образцах Якутии, Бк/кг воздушно-сухой навески (для водных образцов Бк/л).

№ п/п	Образец	Глубина, см	^{239,240} Pu	²³⁸ Pu	¹³⁷ Cs	²³⁷ Np	⁹⁰ Sr
1	Почва	0-5	116,6	5,4	7336	7,4	2834
2	Почва	5-10	127,2	5,1	6901	13,0	4081
3	Почва	0-5	300,7	13,2	13961	12,9	1864
4	Почва	5-10	19,4	0,2	493	2,3	808
5	Почва	0-5	57,2	2,6	3060	2,1	716
6	Почва	5-10	5,1	0,1	82,3	0,5	22
7	Почва	0-5	123,5	6,1	8736	6,6	6261
8	Почва	5-10	7,2	0,5	174	0,5	246
9	Почва	0-5	29,5	2,2	2128	2,0	1529
10	Почва	5-10	3,0	0,1	77	0,2	52
11	Почва	0-5	46,3	2,8	3356	3,4	3012
12	Почва	5-10	4,3	0,4	271	0,5	234

13	Почва	0-5	92,0	4,6	7710	12,5	735
14	Почва	5-10	6,0	0,1	72	2,5	67
15	Почва	0-5	54,6	2,0	6492	5,5	623
16	Почва	5-10	5,6	0,1	269	3,1	1069
17	Почва	0-5	29,6	1,5	2686	1,0	519
18	Почва	5-10	5,2	0,1	216	0,2	114
19	Почва	0-5	7,7	0,2	412	0,5	128
20	Почва	5-10	2,1	0,6	26	0,1	14
21	Почва	0-4	184,5	9,6	10820	3,3	1807
22	Почва	4-8	6,7	0,2	532	2,7	1310
23	Почва	8-12	2,3	0,1	47	2,0	386
24	Почва	12-16	2,6	0,7±0,2	18	1,8	150
25	Почва	16-20	1,8	0,5±0,2	13	1,5	22
26	Почва	20-30	1,7	0,05	1,6	1,2	19
27	Почва	30-42	3,2	0,1	4,0	1,1	13
28	Хвоя лиственницы	-	0,05	0,01	541	0,42	1858
29	Осока (надземная часть)		1,4	0,15	486	0,32	910
30	Лишайник		18,8	0,8	4151	0,08	1509
31	Мох		121,5	6,3	3924	2,3	2511
32	Донные отложения 1	0-5	1,3	0,1	3,8	1,2	10
33	Донные отложения 2	0-5	6,4	1,2	11,2	2,7	17
34	Вода реки 1		0,44	0,2	0,04	3,2	0,89
35	Вода реки 2		6,8	0,2	0,07	3,8	15,4
36	Вода лужи		0,20	0,01	0,01	0,01	0,56
1*	брусника	U=4,5 ppm	<ПО**	<ПО	<ПО	0,44	<ПО

2*	рябина	U=2,0 ppm	<ПО	<ПО	<ПО	0,66	<ПО
3*	мясо зайца	U=0,5 ppm	<ПО	<ПО	<ПО	0,08	<ПО
4*	Кости зайца	U=2,0 ppm	<ПО	<ПО	<ПО	0,11	<ПО

* - урановое месторождение

** - ниже предела обнаружения

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

В **Таблице 29** представлен список станций отбора, глубины в точках отбора, координаты и объемы морской воды, отобранные для ультрафильтрации в Карском море.

Таблица 29. 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 30** 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 30. 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	^{238}Pu Бк/м ³	$^{239,240}\text{Pu}$ 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

В **Таблице 31** представлены станции отбора в Белом Море. В **Таблице 32** - результаты определения изотопов плутония во фракциях коллоидного материала морской воды.

Таблица 31. 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	73		700

Таблица 32. Результаты определения изотопов плутония во фракциях коллоидного материала морской воды Белого моря.

Фракция	²³⁸ Pu Бк/м ³	^{239,240} Pu Бк/м ³	(²³⁸ Pu)/ (^{239,240} Pu)	% ²³⁸ Pu	% ^{239,240} Pu
4928					
Исходная вода	1,2	3,01	0,46	100	100
0,5 мкм – 300 Кд	0,26	0,49	0,52	22	16
300 – 50 Кд	0,06	0,14	0,41	5	14
50 – 15 кД	0,54	0,70	0,77	45	24
Фильтрат < 15 кД	0,34	1,67	0,20	28	46
4932					
Исходная вода	1,13	22,1	0,06	100	100
0,5 мкм – 300 Кд	0,29	5,57	0,07	25	25
300 – 50 Кд	0,17	4,99	0,05	15	22
50 – 15 кД	0,40	9,40	0,05	35	43
Фильтрат < 15 кД	0,27	2,17	0,13	25	10
4939					
Исходная вода	5,80	18,5	0,31	100	100
0,5 мкм – 300 Кд	0,27	1,10	0,25	5	7
300 – 50 Кд	0,13	0,45	0,28	2	3
50 – 15 кД	0,65	2,12	0,31	11	10
Фильтрат < 15 кД	4,82	14,8	0,28	82	80
4944					
Исходная вода	3,20	18,0	0,18	100	100
0,5 мкм – 300 Кд	0,81	6,29	0,17	28	38
300 – 50 Кд	0,46	2,40	0,36	12	12
50 – 15 кД	1,3	5,30	0,24	35	28
Фильтрат < 15 кД	0,63	4,05	0,16	25	22

3. Проведение теоретических и экспериментальных исследований.

3.1. Поверхностная травянистая растительность, почвы и приповерхностные грунтовые воды Кирово-Чепецкого химического комбината.

Основным радиохимическим производством Кирово-Чепецкого химкомбината (КЧХК) были цеха по производству гексафторида урана. В 1990 году остановлен выпуск указанной продукции, использующейся в процессе обогащения урана. Производившие их цеха законсервированы. Однако на предприятие были завезены радиоактивные отходы. Так как хранилища этих отходов были не приспособлены к длительной эксплуатации, произошла утечка радиоактивных веществ. Нами было установлено, что почвы вокруг указанного хранилища песчаные, уровень грунтовых вод высок (около 1 м от поверхности) и поэтому радионуклиды проникли на глубину до 8 м (**Табл. 10**).

Ранее нами было показано, что плутоний обладает способностью накапливаться в определенных горизонтах почв [4]. Было определено, что трансурановые элементы (ТУЭ) склонны к накоплению в некоторых компонентах различных биогеоценозов, причем для ТУЭ сильнее проявляется влияние места отбора образцов на формы их нахождения в почвах и донных отложениях, чем у радионуклидов стронция и цезия. Это объясняется существенным влиянием химического состава отложений на коэффициенты накопления ими ТУЭ. Так содержание в донных отложениях плутония и америция в отличие от нептуния, радиостронция и радиоцезия возрастает с содержанием в них органического вещества причем со значительной величиной параметрической чувствительности (3 для плутония и 2 для америция). Однако, для случая с КЧХК влияние органического вещества должно быть минимальным, так как грунт вокруг хранилища содержит в основном песок (**Табл. 10-13**). Поэтому для расчета коэффициентов сорбции (K_c) радионуклидов находили соотношение между содержанием в 1 кг воздушно-сухой навеске грунта, отобранной на глубине 2 м (ниже уровня грунтовых вод) и в 1 литре грунтовой воды. Коэффициенты накопления радионуклидов растительностью (K_n) рассчитывали как соотношение между содержанием радионуклида в воздушно-сухой навеске (1 кг) растительности и грунта. На диаграмме (**Рис. 18**) приведены значения рассчитанных коэффициентов. Как видно из представленных данных величины коэффициентов сорбции значительно превышают значения коэффициентов накопления всех определяемых радионуклидов для всех образцов. Тем не менее коэффициенты сорбции техногенных радионуклидов гораздо ниже литературных данных (**Рис. 19**).

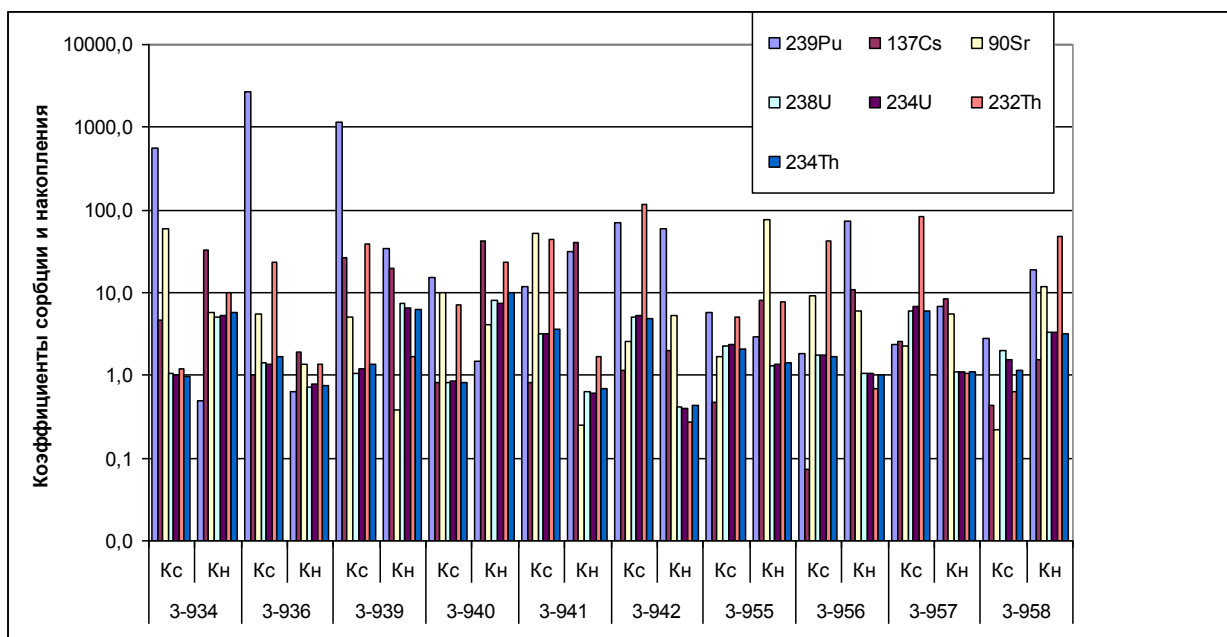


Рис. 18. Коэффициенты сорбции и накопления растительностью различных техногенных и природных радионуклидов.

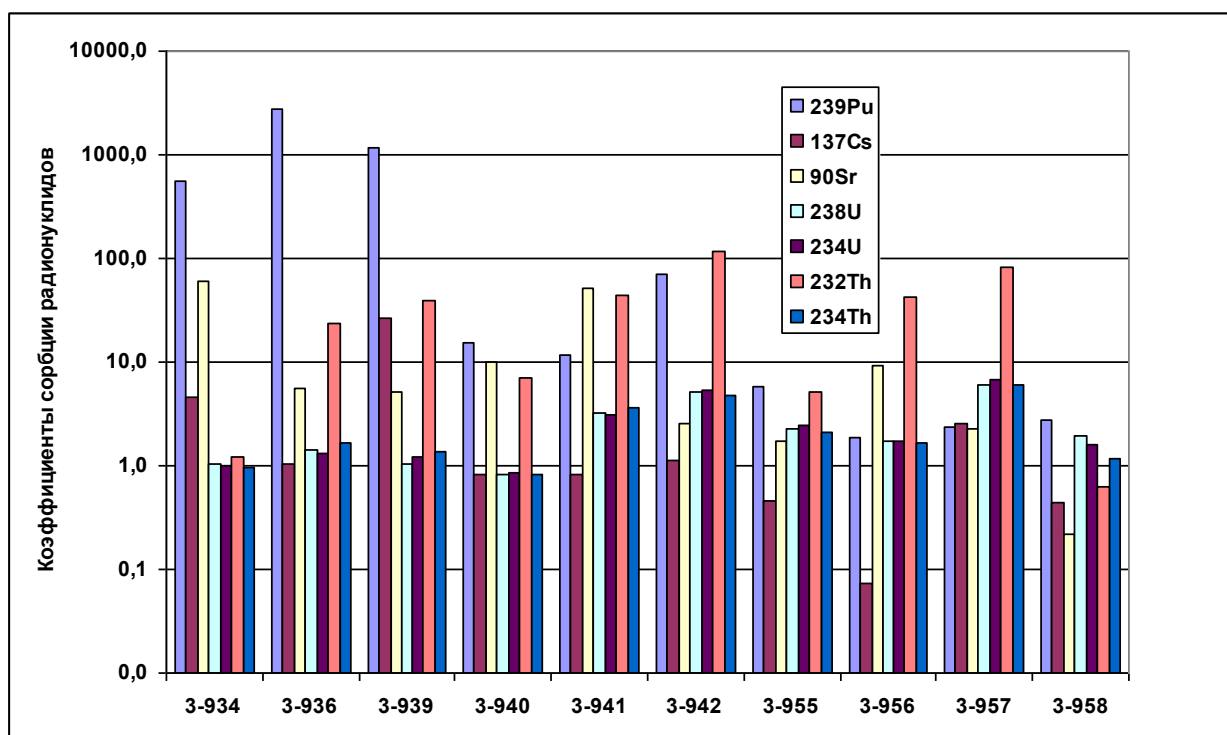
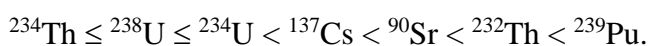


Рис. 19. Коэффициенты сорбции различных техногенных и природных радионуклидов.

Как видно из представленных данных максимальные коэффициенты сорбции грунтом наблюдаются для плутония (до 10^3). Однако в богатых гумусом донных отложениях и почвах величина этого коэффициента для плутония достигает ($10^5 - 10^6$) [4].

В ряду возрастания средней величины коэффициента сорбции (по всем 10 образцам) радионуклиды можно расположить в следующем порядке:



Величины Кс для ^{234}Th , ^{238}U и ^{234}U практически равны 2,4-2,6. Удивительно, что коэффициенты ^{232}Th значительно выше (среднее значение – 48,0). Причем максимальные значения Кс наблюдаются для разрезов с повышенным содержанием радионуклида (больше 20 Бк/кг). Учитывая, что содержание природного тория в почвах редко превышает эту величину, можно предположить, что часть тория-232 поступает в виде техногенных загрязнений. Также интересным оказывается более высокие значения Кс у радиостронция (14,8) по сравнению с радиоцезием (около 5). Это также объясняется особенностями данной экосистемы (высоко опесчаненные почвы). Цезий наиболее полно сорбируется на глинистых минералах. Слабая сорбция радионуклидов на грунте приводит к высоким степеням поглощения их травянистой растительностью (Рис. 20).

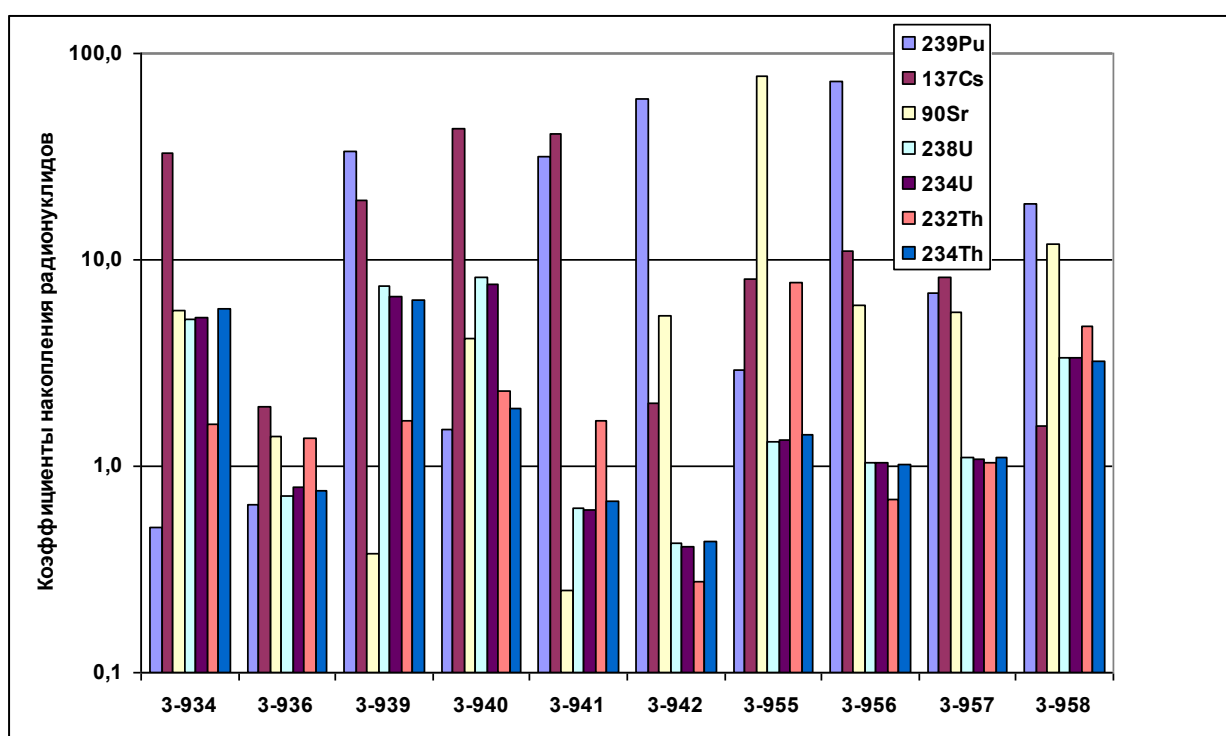
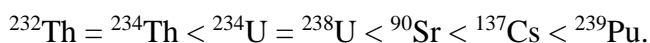


Рис. 20. Коэффициенты накопления растительностью различных техногенных и природных радионуклидов.

Причем величины Кн для различных радионуклидов возрастают в следующем ряду:



Полученный ряд достаточно хорошо согласуется с литературными данными. Накопление ураном и торием наиболее слабое, но превышает значения коэффициентов накопления для природных зон не загрязненных техногенными радионуклидами. Так для тория величина Кн составила 1-1,5 вместо 0,3-0,5. Для урана 2 вместо 0,1-0,6. При этом необходимо учитывать, что большинство надземных частей растений накапливают уран и

торий по фоновбарьерному типу, при котором значительное увеличение концентрации изучаемого элемента в питающей среде не сопровождается статистически достоверным увеличением его содержания в растениях [103]. Поэтому увеличение концентраций этих радионуклидов за счет техногенных выбросов может не влиять на величины K_n .

Коэффициенты накопления травянистой растительностью радиоцезия составляют по литературным данным 1-2 [104]. В исследуемой нами экосистеме среднее значение K_n для радиоцезия составило 16,9. Для плутония это значение еще выше – 23,0.

Таким образом установлено, что снижение поглощающей способности почв для водонасыщенных горизонтов приводит к повышенной аккумуляции радионуклидов травянистой растительностью.

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

В качестве приложения к настоящему отчету представлена база данных в формате Microsoft Access, которая содержит не только данные полученные в ходе выполнения настоящего проекта, но и полученные нами ранее данные. Они частично будут использованы для подтверждения сделанных выводов.

Озеро Карачай (водоем В-9), являющееся хранилищем среднеактивных жидких отходов радиохимического производства ФГУП ПО “Маяк”, представляет собой естественный бессточный водоем, связанный с подземными водами. Последние образуют единый водоносный горизонт мощностью 55-100 и более метров, приуроченный к трещинным зонам коренных пород и более рыхлым отложениям [105]. Постоянная миграция загрязнений в водоносный горизонт происходит через ложе водоема в разных от него направлениях. Под действием силы тяжести промышленные растворы опускаются до кровли относительного водоупора и мигрируют по горизонту подземных вод к участкам разгрузки в интервале глубин 40(60)-100 м за счет гравитационного вытеснения ими пресных вод с меньшим удельным весом. Концентрация ^{60}Co , ^{90}Sr , ^{106}Ru и ^{137}Cs в водоносном горизонте в 20-300 раз ниже, чем в воде водоема В-9, а содержание NO_3^- в линзе под водоемом превышает его концентрацию в воде самого водоема в 3,5-5 раз.

В **Таблице 14** приведены содержания радионуклидов в кернах вмещающих пород промышленной зоны ФГУП ПО Маяк. В **Таблице 17** содержание этих радионуклидов в грунтовых водах ближайших наблюдательных скважин (64/68 и 63/68). Так как глубины отбора не всегда совпадают, коэффициенты сорбции на вмещающих породах рассчитывали по средним значениям содержания радионуклида по всей глубине. Полученные данные приведены на **Рис. 21**.

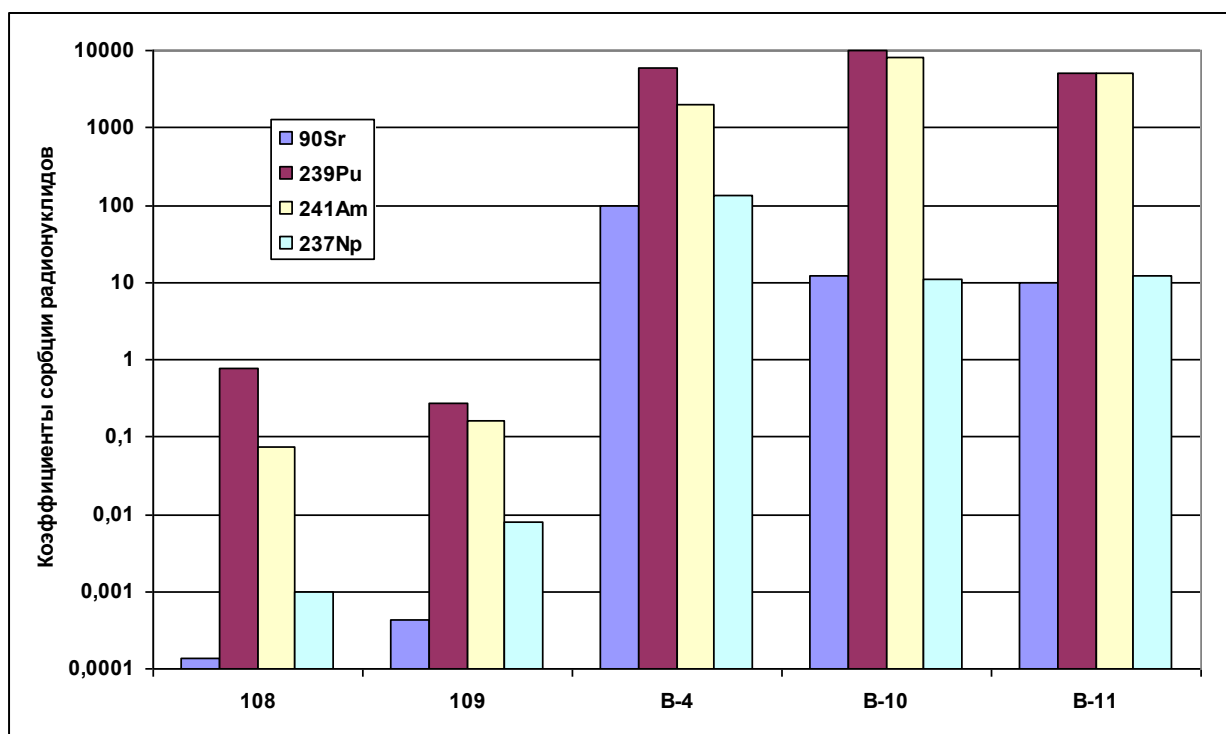


Рис. 21. Коэффициенты сорбции радионуклидов на вмещающих породах и донных отложениях водоемов-накопителей.

Для сравнения на **Рис. 21** приведены данные по средним величинам K_d для промышленных водоемов [53]. Как видно из представленных данных значения K_d для вмещающих пород не превышают 1,0 и значительно меньше соответствующих величин для водоемов. Поэтому латеральная миграция с грунтовыми водами для исследуемой зоны носит чрезвычайно интенсивный характер. Особенно это касается радионуклидов стронция и нептуния, для которых значения K_d минимальны. Другим фактором влияющим на миграцию радионуклидов является коллоидообразование в грунтовых водах. Данные по сорбции радионуклидов на коллоидных частицах различного размера приведены в **Таблицах 18-20**.

Принимая во внимание обычные уровни содержания актинидов в загрязненных подземных и поверхностных водах, можно сделать вывод, что только уран потенциально может образовывать в них истинные коллоиды. Однако необходимо учитывать, что истинные коллоиды техногенных актинидов могут проникать в природные воды из источника загрязнения, где концентрация радионуклидов значительно выше. Как известно устойчивость продуктов гидролитической полимеризации актинидов весьма высока [106], поэтому в процессе разбавления загрязненных вод природными водами скорость разрушения истинных коллоидных частиц может быть ниже скорости их транспорта. Установлено [107], что коллоидные полимеры Pu(IV) устойчивы в течении многих лет и могут быть выделены из раствора. Размеры таких коллоидных частиц изменяются от

единиц нанометра до десятых микрона [108, 109]. В работе Крауса [110] показано, что U(IV) также образует коллоидные полимеры, свойства которых близки к свойствам полимерного Pu(IV), однако они образуются только в восстановительной среде.

Для проб грунтовых вод, отобранных в зоне воздействия ФГУП ПО Маяк наблюдаются следующие закономерности коллоидообразования с участием актинидов (Рис. 22):

- В грунтовых водах актиниды находятся преимущественно в мелких фракциях коллоидов (5-50 нм) и фильтрате. Массовая доля включения в коллоидный материал уменьшается в ряду: $Pu > Zr \geq Am \geq Eu \gg Nr > U$. По мере разбавления техногенных вод доля урана и плутония, связанных с коллоидным веществом увеличивается, причем уран накапливается во фракции 3-10 нм частиц, а плутоний – во фракции частиц крупнее 10 нм.
- Проведенная оценка состояния окисления плутония в фильтратах грунтовых вод после 5 нм мембраны показала, что хотя доля Pu(V) в них несколько выше, чем после 200 нм фильтра (на 5-12%), ожидаемого преобладания этой формы в истинно растворимом состоянии не наблюдалось. Это свидетельствует о том, что в коллоидный материал включаются все формы актинидов, одновременно все эти формы находятся и в растворимом состоянии.
- Электрофоретическое исследование заряда коллоидных частиц после фильтрации через 450 нм фильтр для проб грунтовых вод показало, что доля анионных форм плутония составляет от 31 до 63%. Остальное количество приходится на нейтральные формы, тогда как доля катионных форм не превышает нескольких процентов. Для сравнения в поверхностных водах доля анионных форм плутония находится в тех же пределах, но доля катионных форм значительно выше. Этот факт имеет важное значение, поскольку степень сорбции на основных природных минералах анионных и нейтральных форм ниже, чем катионных [111].

Коллоидные частицы, отобранные как в окислительных, так и восстановительных условиях относительно гетерогенны по составу и распределению микропримесей. В окислительных условиях, характерных для грунтовых вод Карачаевского загрязнения, основную долю составляют частицы аморфного оксигидроксида Fe (ферригидрита) с примесями Si и Ca. Другими фазами являются рансеит ($CaMn_5O_9$), кварц (SiO_2), плагиоклаз ($(Na,Ca)(Si,Al)_4O_8$), рутил (TiO_2), гематит (Fe_2O_3), барит ($BaSO_4$), монацит (фосфат PЗЭ). Анализ морфологии и элементного состава коллоидных частиц был выполнен с применением растровой электронной микроскопии с ретгено-спектральным микроанализом (JEOL JSM-6380 LA с анализатором JET 2300). Среди коллоидных частиц

была обнаружена частица, размером около 2 мкм, содержащая Ti и Sm (Рис. 22-23). Хотя среднее содержание TiO_2 во вмещающих породах данной зоны составляет 0,84%, наиболее вероятно, что эта частица имеет искусственное происхождение, так как не содержит других РЗЭ, кроме самария.

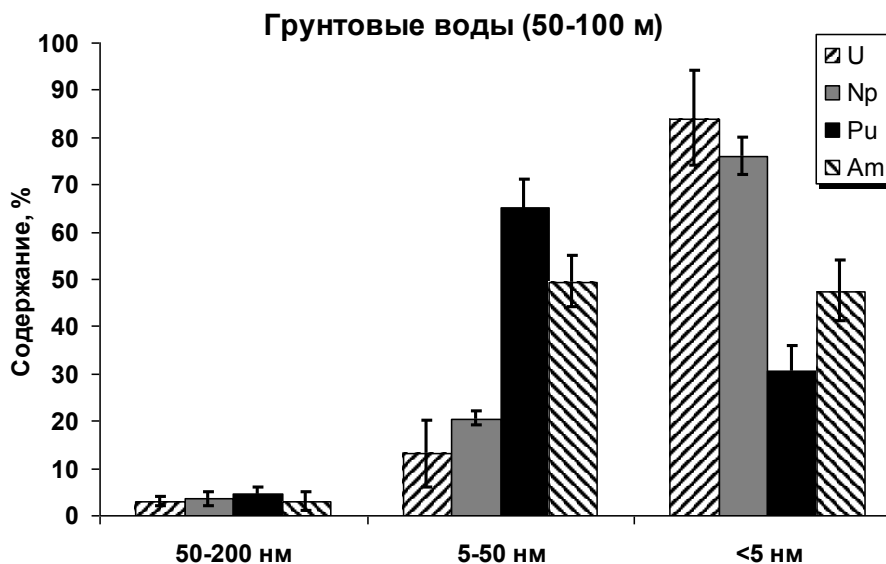


Рис. 22. Распределение актинидов по фракциям коллоидного вещества, %.

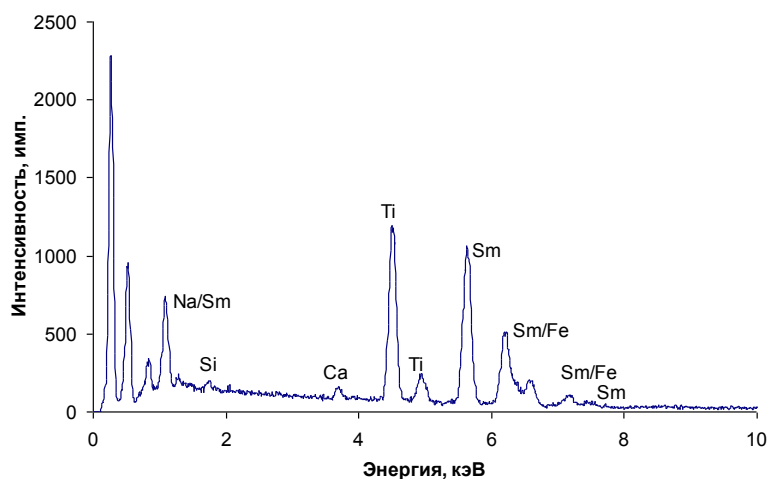


Рис. 22. Рентгеноспектральный анализ частицы, изображенной на Рис. 23.

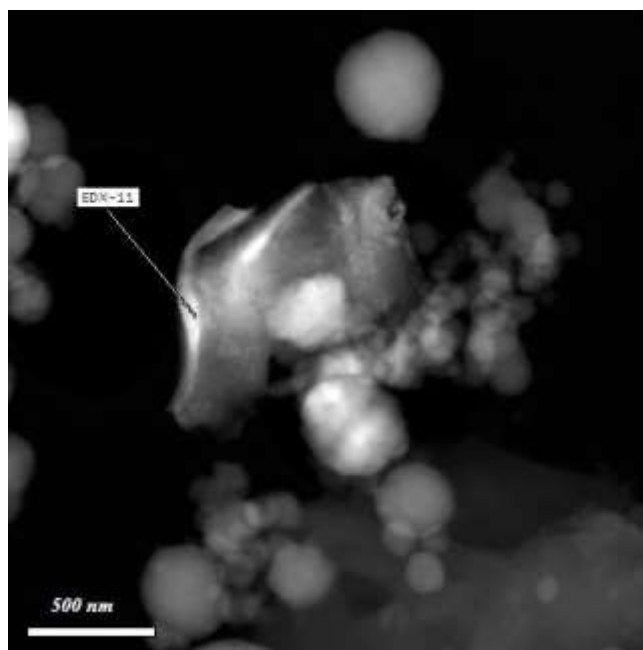


Рис. 23. Типичные изображения, полученные методом HAADF-STEM, коллоидных частиц, выделенных из подземных вод.

Выполненное ранее [112] исследование элементного распределения по поверхности коллоидного материала методом масс спектрометрии вторичных ионов с субмикронным разрешением (nanoSIMS-50, Cameca) показало, что в окислительных условиях уран предпочтительно связан с коллоидными частицами ферригидрита, содержащего примеси Al, Mn и Ca (**Рис. 24**), что свидетельствует об образовании псевдоколлоидов. Приблизительные атомные соотношения Al / Fe и Mn / Fe составили 0,003 и 0,004 соответственно.

Пространственное распределение плутония на фильтрах с коллоидными частицами в целом повторяет распределение урана (**Рис. 24**), который ассоциирован с ферригидритом. По результатам полуколичественного определения, атомное соотношение U и Fe равно 0,0004, а Pu и U - 0,03, что косвенно указывает на то, что ферригидрит сорбирует Pu и U, образуя псевдо-коллоиды. При этом общее содержание плутония и ТПЭ на фильтрах увеличивается с ростом содержания на фильтрах коллоидного железа (**Рис. 25**). Прямая зависимость распределения плутония и железа в почвах и донных отложениях была отмечена в литературном обзоре. Естественно, что для столь сложных природных систем не следует ожидать точных корреляционных связей между содержанием актинидов и возможных элементов-носителей. Однако, можно предполагать, что в ближней к Карачаю загрязненной зоне образование и осаждение ферригидрита ($5\text{Fe}_2\text{O}_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$) и гетита (FeOOH) по мере разбавления техногенных веществ природными водами будет основным механизмом задержки плутония и ТПЭ.

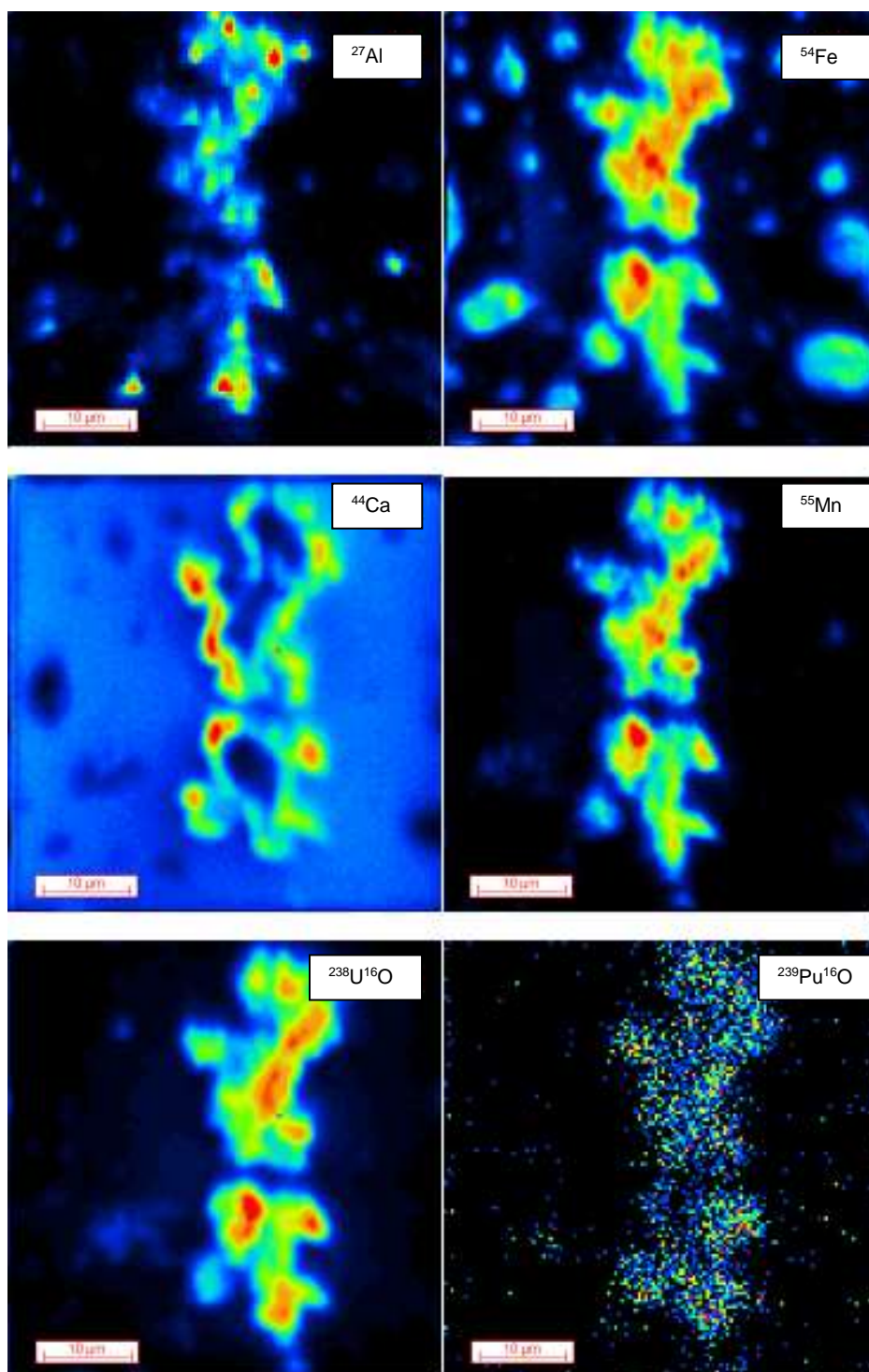


Рис. 24. Элементное распределение по коллоидному веществу загрязненных грунтовых вод

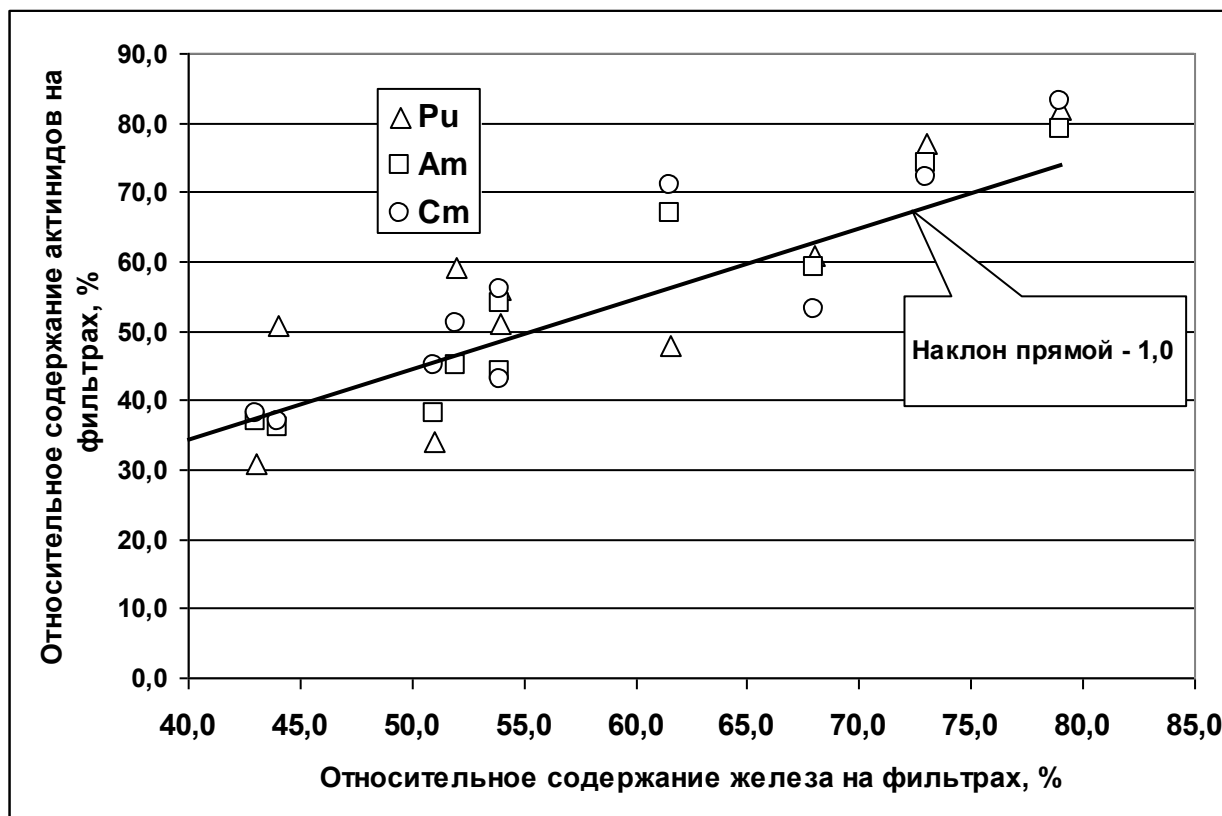


Рис. 25. Относительное содержание плутония и ТПЭ в коллоидном веществе подземных вод в зависимости от содержания в нем коллоидного железа.

Оксигидроксиды железа (ферригидрит, гетит, гематит) являются одним из наиболее сорбционно-активных компонентов природных вод. Сорбция радионуклидов стронция и плутония гидроксидами железа обнаружена в почвах, донных отложениях эстуарий и других объектах природной среды [113, 114]. Известно, что гидроксиды железа и глинистые минералы в отличие от силикатных пород и первичных минералов характеризуются высокой сорбционной способностью и прочностью поглощения радионуклидов [115,116].

Ключевым фактором, определяющим поведение актиноидов в окружающей среде является их состояние окисления. На **Рис. 26** представлены диапазоны растворимости актиноидов в трех различных средах: модельной грунтовой воде; синтетической морской воде и 0,01М растворе NaClO_4 с $\text{pH}=7$, находящийся в равновесии с атмосферой ($P(\text{CO}_2)=10^{-3,5}$ атм) [5].

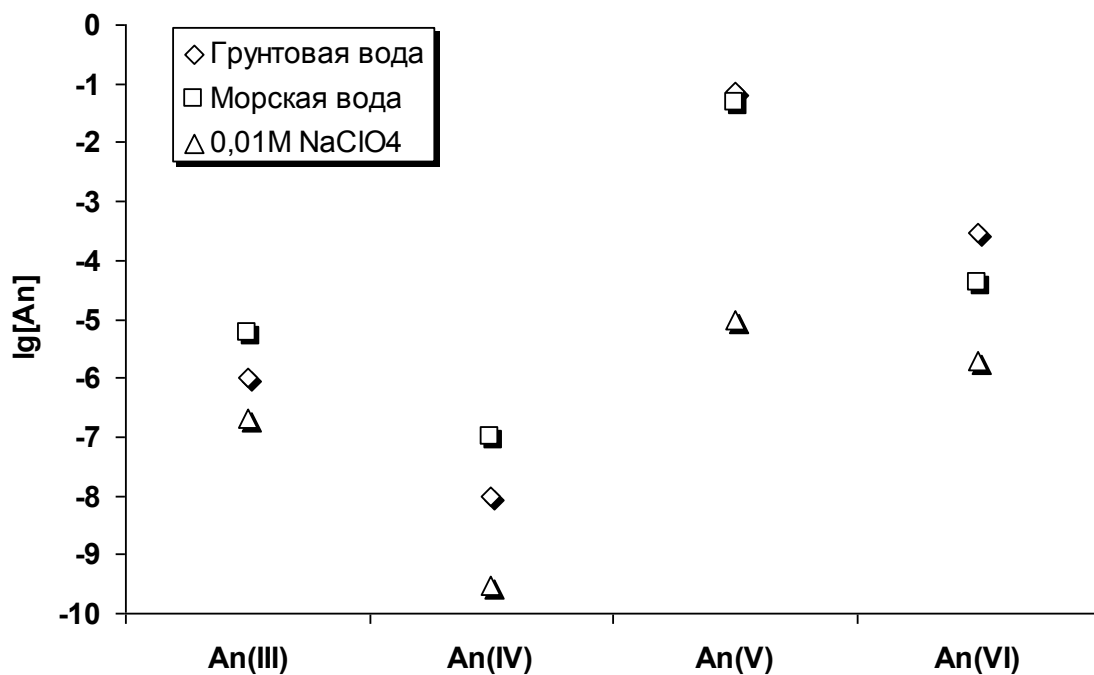


Рис. 26. Значения растворимости гидроксидов актинидов в различных модельных растворах

Как видно из данных, приведенных на **Рис. 26** степени окисления актинидов играют определяющую роль в образовании их потенциально подвижных форм. Расчет формальных окислительно-восстановительных потенциалов пар актинидов, при их низкой концентрации и учете только реакций гидролиза, показал [117], что в природных водах возможно существование следующих форм: U(IV, VI), Np(IV, V, VI), Pu(III, IV, V, VI) и Am(III). Учитывая, что природные системы содержат значительные количества минералов и органических веществ, для которых характерны как окислительные, так и восстановительные свойства, теоретический расчет преобладающих окислительных форм актинидов для реальных объектов затруднителен и может привести к ошибочным результатам. В связи с этим особую значимость приобретают экспериментальные результаты по определению физико-химических форм радионуклидов в природных объектах. Прямые физико-химические (спектральные) методы могут быть использованы в основном в лабораторных модельных системах, вследствие их относительно низкой чувствительности [118]. Для реальных природных объектов обычно применяют химические методы фракционирования различных физико-химических форм с последующим определением содержания во фракциях [119]. Эти методы могут основываться на жидкостной экстракции [120], сорбции [121], соосаждении [122], мембранных методах разделения [123]. Несмотря на то, что с использованием подобных методов возможно определение физико-химических форм радионуклидов при их

следовых содержаниях, в процессе разделения возможно изменение исходного распределения форм. По этой причине химические методы носят условный характер и по возможности следует использовать несколько доступных методов для проверки экспериментальных результатов.

Полученные нами данные с применением методов мембранной экстракции [124] и комплексообразовательной ультрафильтрации [125] показали, что в окислительных условиях поверхностных и грунтовых вод уран и нептуний представлены только высшими валентными формами, характерными для окружающей среды - U(VI) и Np(V). Плутоний обнаружен не только в состоянии окисления 4+, но и в высших состояниях окисления.

Нами была проведена математическая обработка результатов определения окислительных форм плутония в грунтовых водах Карачаевского ореола загрязнения. Весь использованный аналитический материал приведен в прилагающейся к отчету базе данных. Было получено эмпирическое уравнение, которое удовлетворительно описывает все имеющиеся данные для нижних горизонтов подземных вод. Критерий Фишера составил 2.46, что меньше табличного значения 2.73.

$$\lg K_s = 0,8 + 6,3 \cdot 10^{-4} E_h - 0,049 \lg[\text{CO}_3], \quad (1)$$

где K_s – соотношение между концентрациями Pu(V) и Pu(IV)

Как оказалось, в исследуемом диапазоне состава грунтовых вод величина pH оказывает на значение K_s незначительное влияние. Так, значение коэффициента Стьюдента, для коэффициента pH – величины, характеризующей степень значимости отдельных коэффициентов модели - составило 0.43, что значительно меньше табличного.

Выражение 1 является эмпирическим уравнением. Однако, если предположить, что величина K_s зависит обратно пропорционально от концентрации комплексообразующих веществ (число лигандов для комплекса Pu(IV) на 1 превышает число лигандов для комплекса Pu(V)), то в выражении

$$\lg K_s = a + b \cdot E_h - c \cdot \lg[\text{CO}_3] \quad (2)$$

в соответствии с уравнением Нернста коэффициент $c = RT/nF = 0,059$, что близко к приведенному в уравнении 1 значению этого коэффициента.

В отсутствие заметного комплексообразования ($[\text{CO}_3]$ близко к 1,0) и при $K_s = 1$, величина E_h приобретает смысл формального окислительно-восстановительного потенциала пары Pu(V)/Pu(IV). В этом случае $E_h = a/b = -1266$ mV. В литературе приводится экспериментально определенная величина этого потенциала для раствора с pH=7,0, которая составляет -1110 mV [126], что также достаточно близко к полученному нами значению. Это не придает уравнению 1 теоретический смысл, а только свидетельствует о том, что определяемая косвенным методом величина K_s изменяется в соответствии с

ожидаемыми закономерностями.

Для верхних горизонтов (до 30м) полученные значения K_s существенно ниже, чем соответствует по уравнению (1). Это может объясняться наличием в приповерхностных горизонтах гуминовых веществ, которые, как было показано, в литобзоре восстанавливают $Pu(V)$.

Вместе с тем, анализ форм нахождения плутония в десорбатах (1М HCl) с твердых загрязненных образцов (коллоиды, взвеси, керны пород) показал, что плутоний сорбирован на них только в форме $Pu(IV)$. Этот факт был подтвержден ранее экспериментально методами, основанными на синхротронном излучении (XANES) [4]. Поэтому можно сделать вывод о том, что основным геохимическим барьером для исследуемой экосистемы будет коллоидное и взвешенное вещество грунтовых вод. В то же время сорбция на вмещающих породах имеет меньшее значение для удерживания радионуклидов.

3.3. Пластовые воды и взвешенное вещество, из глубинных наблюдательных скважин ОАО СХК.

Сибирский химический комбинат (СХК) расположен около г.Северска в 20 км от крупного районного центра г.Томска. Комбинат был сдан в эксплуатацию в 1953 г. Размеры комбината 192 км², а зоны наблюдения - 1560 км². В пределах зоны наблюдения расположены г.Северск, ряд других населённых пунктов и частично г.Томск. В настоящее время СХК является крупнейшим комплексом по производству плутония, урана и трансурановых элементов. Он включает ряд потенциально опасных для населения и окружающей среды производств.

Полигоны захоронения жидких радиоактивных отходов (РАО) (площадки 18 и 18а) расположены вблизи основных производств в пределах санитарно-защитной зоны, в которой находятся также и другие объекты обращения с РАО: цех очистных сооружений, поверхностные бассейны-хранилища, промышленные водоёмы, могильники твёрдых отходов. В качестве пластов-коллекторов используются II и III песчаные горизонты. Разгрузка вод нижнего водоносного комплекса - в районе слияния рек Обь и Томь.

Эксплуатация площадки 18а была начата в 1963 г. как экспериментального полигона (глубина 314-341 м), включавшего 5 нагнетательных скважин (в центре полигона), 4 наблюдательных скважины в радиусе 125 м и 5 - в радиусе 380-400 м от центра. Концентрация радиоактивных продуктов в отходах 0,01-0,1 Ки/л.

Отходы, направляемые на захоронение в глубинное хранилище, существенно отличаются по составу от природных вод (см. Литературный обзор). Среди них по

химическим и радиохимическим характеристикам можно выделить 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 .

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.

Одной из задач данного проекта стало сравнение поведения природных и техногенных радионуклидов в окружающей среде. Наиболее оптимальные условия для этого дает полигон закачки радиоактивных отходов в глубинные геологические формации на ОАО СХК. Это объясняется тем, что на полигоне 18 проводится мониторинг не только загрязненных пластовых вод, но и соответствующих им природных пластовых вод.

В **Таблицах 21-22** представлены данные по химическому и радионуклидному составу пластовых вод. Степень воздействия радиоактивных отходов можно оценить по содержанию нитрат-ионов и радионуклидов. Скважина С-15 находится вне зоны проникновения отходов. На **Рис. 27** представлены данные по фильтрации пластовых вод через мембраны Millipore. Наблюдательные скважины на диаграмме расположены по мере удаления от нагнетательной скважины.

Как видно из полученных данных в загрязненной зоне радионуклиды (включая уран и нептуний – наиболее слабосорбируемые на коллоидных частицах актиниды) удерживаются достаточно эффективно. Это свидетельствует о том, что они связаны с крупными коллоидными частицами. В то же время поведение природного урана (С-15) сильно отличается от техногенного и природный уран в незагрязненной пластовой воде находится практически в истинно-растворимом состоянии.

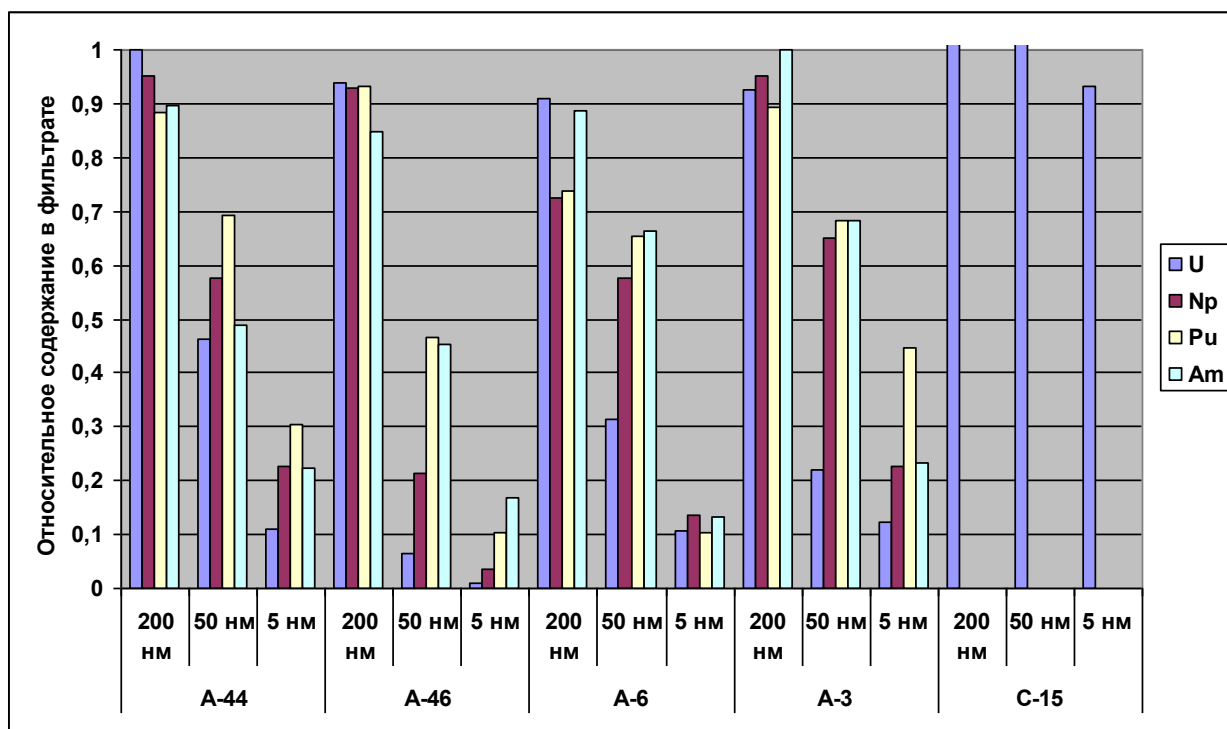


Рис. 27. Относительное содержание радионуклидов в фильтратах пластовых вод.

Проведенное мембранно-экстракционное фракционирование форм актинидов по состояниям окисления неожиданно показало, что все актиниды (включая уран и нептуний) в основном находятся во фракциях, соответствующих низшим степеням окисления Am(III), U(IV), Np(IV) и Pu(IV). Причем относительное содержание форм U(IV) и Np(IV) увеличивается с концентрацией урана в исследуемой воде.

В восстановительных условиях пластовых вод теоретически не только плутоний, но и нептуний и в значительной степени уран, могут существовать в форме An(IV). Но восстановление актинидов должно происходить или в источнике поступления, или в ближайшей зоне разбавления закачиваемых пульп, для которой характерно высокое содержание нитритов и, собственно, урана. Нахождение урана и нептуния в низших состояниях окисления косвенно подтверждается данными по фильтрации вод (Рис. 27) из которых видно, что распределение урана, нептуния и плутония по коллоидным фракциям практически одинаковое. Более того в образцах коллоидных частиц нами были обнаружены истинные коллоиды урана (Рис. 28). На Рис. 28 приведено элементное распределение по коллоидному веществу на фильтре, полученное методом масс-спектрометрии вторичных ионов (nanoSIMS-50, Cameca). Видно, что зона повышенной концентрации урана соответствует зоне пониженной концентрации железа, однако именно железосодержащие минералы наиболее сорбционно активны в отношении актинидов [5].

Таким образом для пластовых вод в условиях значительного комплексообразования, смещающего формальные окислительные потенциалы, и наличия потенциальных восстановителей – NO_2^- , Fe^{2+} , Mn^{2+} , уран частично или полностью восстанавливается до U(IV) . Это приводит к образованию истинных коллоидов урана, являющихся активными сорбционными центрами для других актинидных, редкоземельных и ряда переходных элементов. Поэтому коллоидные фракции пластовых вод содержат до 70-90% всех актинидов (**Рис. 27**).

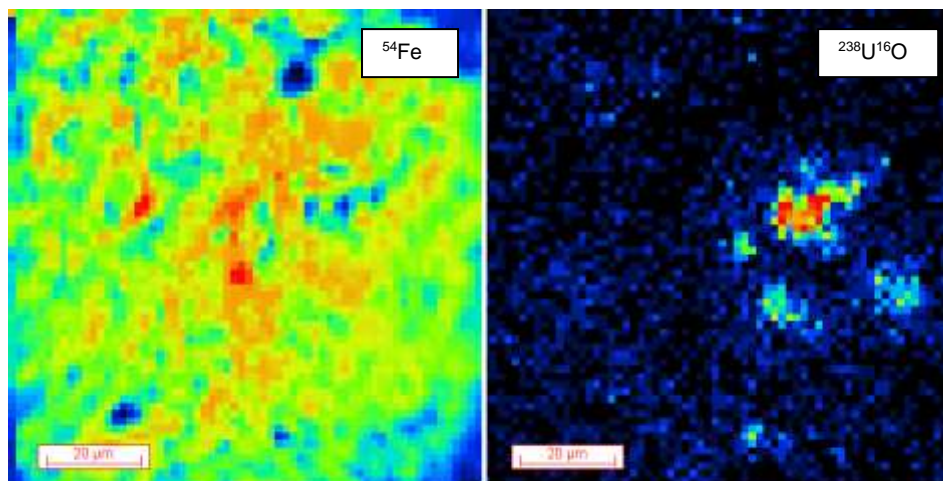


Рис. 28. Элементное распределение по коллоидному веществу загрязненных пластовых вод

Коллоидные частицы незагрязненной зоны имеют в основном имеют неправильную форму. Эти частицы подвержены существенной агломерации (**Рис. 29**) и представлены глинами. Встречаются отдельные частицы барита (сульфата бария), оксида железа и фосфата РЗЭ.

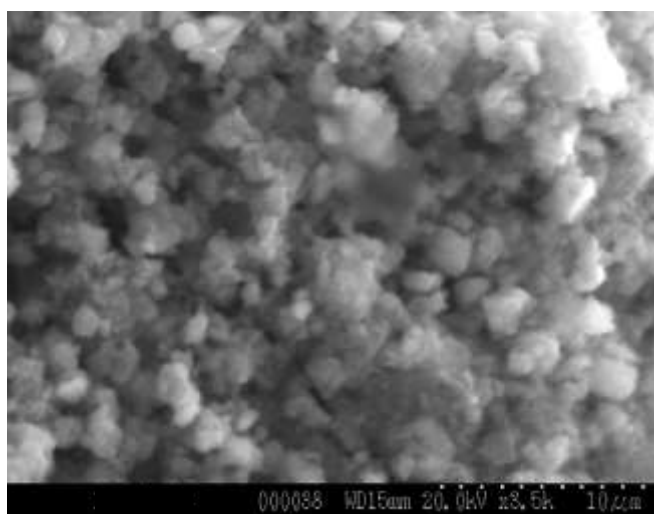


Рис. 29. SEM изображение коллоидных частиц из скважины С-15

Как показали микроскопические исследования основную часть коллоидных частиц из загрязненной зоны составляет оксид или оксигидроксид железа. Среди других фаз идентифицированы глины, карбонат кальция (кальцит), барит (сульфат бария) и сульфат свинца. Обнаружены частицы хлорида кальция и калия. Достаточно часто встречаются частицы, содержащие Fe, Cu, Zn. Энергодисперсионные рентгеновские спектры некоторых частиц представлены на **Рис. 30**.

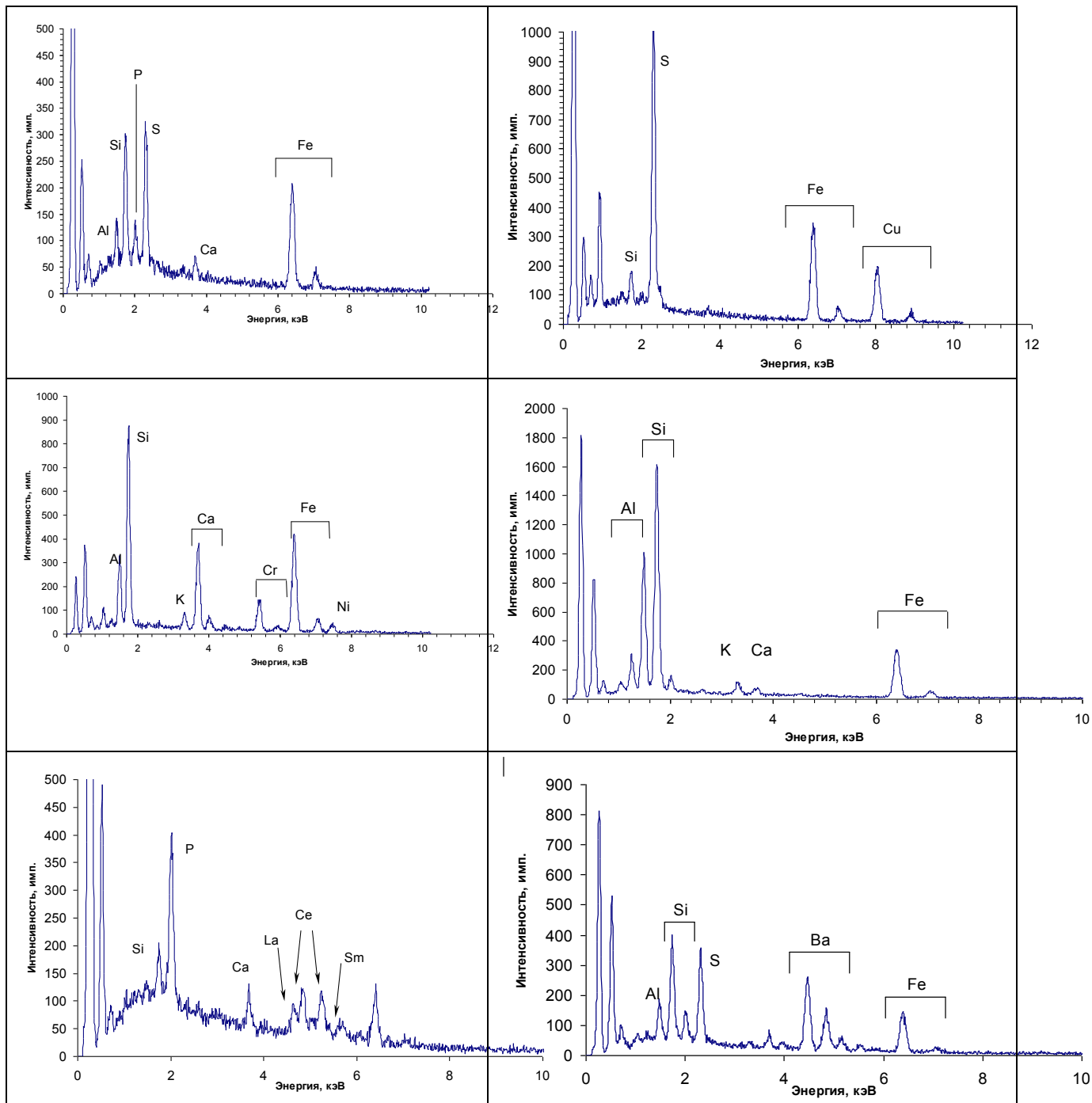


Рис. 30. ЭДС препаратов коллоидного вещества из скважин А-44 и А-46.

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

Горно-химический комбинат (ГХК) — предприятие по производству оружейного плутония в г. Железногорске Красноярского края. Производственные мощности комбината расположены в скальных породах горного массива на правом берегу реки Енисей в 60 км ниже г. Красноярска по течению.

Радиохимический завод, предназначенный для выделения плутония из облученного в реакторах естественного урана, был введен в эксплуатацию в 1964 году. Технологическая схема завода включает в себя операцию растворения металлического урана в азотной кислоте, экстракционную многоступенчатую переработку раствора с целью разделения урана и плутония, их очистку от радиоактивных продуктов деления, глубокую очистку плутония сорбционным способом. Готовыми продуктами переработки облученных в реакторах ТВЭЛ являются соль урана (нитрат уранила) и химическое соединение плутония. Сложность технологической схемы завода определяется очень малой концентрацией плутония в уране (менее одного весового процента) и высокой радиоактивностью растворов.

Образующиеся при переработке облученного урана жидкие высокоактивные отходы хранятся в специальных емкостях из нержавеющей стали. Жидкие отходы средней и низкой активности направляются на полигон «Северный» для подземного захоронения.

На ГХК используется технология подземного захоронения жидких радиоактивных отходов (ЖРО). Эта деятельность производится на полигоне "Северный" и заключается в закачке ЖРО в глубоко залегающие водоносные горизонты. Полигон "Северный" используется для глубинного захоронения низкоактивных нетехнологических отходов (НАО) комбината с 1962 года и среднеактивных отходов (САО) - с 1967 года. Захоронение САО осуществляется в первый горизонт (интервал глубин 355-500 м), захоронение НАО - во второй горизонт (интервал глубин 180-280 м) через специально оборудованные скважины.

Одним из последствий деятельности ГХК является загрязнение водного бассейна реки Енисей. Независимые исследования выявили 150-180 так называемых "точечных" радиоактивных аномалий с высоким (до 200 кюри на квадратный километр) уровнем радиоактивного загрязнения.

Загрязнение радионуклидами дна Енисея вплоть до Карского моря тянется на 1,5 тысячи километров. Радиоактивность накапливается в водорослях и в рыбе, и переносится рыбой на сотни километров как вниз, так и вверх по Енисею.

Важное значение для прогнозирования поступления радионуклидов со стоком реки Енисей в Карское море имеют данные по содержанию, распределению и поведению радионуклидов в системе Енисейский залив – Карское море, в зоне смешения пресных речных и солёных морских вод, в зоне так называемого маргинального фильтра. В этой зоне реализуются процессы лавинной седиментации, сопровождающиеся коагуляционными процессами с образованием многофункциональных сорбционных коллекторов, осаждающихся на дно.

Эти коллекторы способны эффективно извлекать из воды химические элементы присутствующие, как в ионной, так и в коллоидной форме. В эти процессы включаются поступающие с речной водой радионуклиды, Наиболее информативными в этом отношении являются данные по содержанию радионуклидов в системе вода – взвесь – донные отложения по мере удаления в сторону моря.

В **Таблицах 23 и 24** представлены данные по содержанию радионуклидов и химических элементов в донных отложениях реки Енисей на различном расстоянии от источника загрязнения. В **Таблице 25** приведены данные по содержанию радионуклидов в водной растительности, отобранной вместе с образцами донных осадков.

Рассчитанные по этим данным коэффициенты сорбции радионуклидов донными отложениями и коэффициенты накопления их водной растительностью приведены на **Рис. 31 и 32**.

Как видно из представленных данных величина K_s для плутония намного выше, чем для природного урана (содержание радионуклидов америция и нептуния в воде ниже предела обнаружения альфа-спектрометрического и люминесцентного методов). Значение K_s для урана слабо зависит от химического состава донных отложений (**Таблица 24**) и составляет величину около 10^2 . Значение K_s для плутония не коррелирует с содержанием химических элементов, однако линейно возрастает с увеличением содержания органического углерода в отложениях (**Рис. 33**). Причем величина достоверности аппроксимации составляет 0,998.

Коэффициенты накопления радионуклидов растительностью зависят как от природы растительности, так и типа почвы. В ряду радионуклидов средняя величина K_n возрастает в следующем порядке: $U < Pu < Am < Np$. Для плутония эта величина составляет 0,1; для америция – 2,0 и для нептуния – 10^3 . Высокие значения коэффициентов накопления нептуния водной растительностью ранее наблюдали в лабораторных экспериментах (см. литобзор).

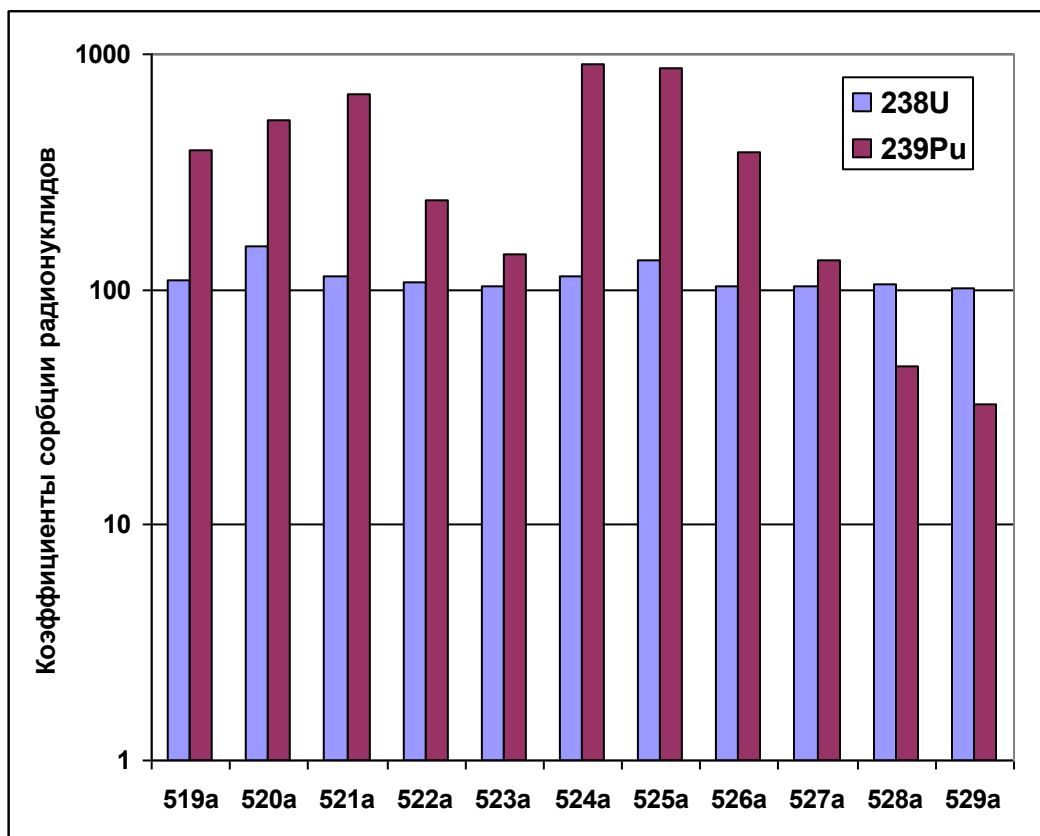


Рис. 31. Коэффициенты сорбции радионуклидов донными отложениями.

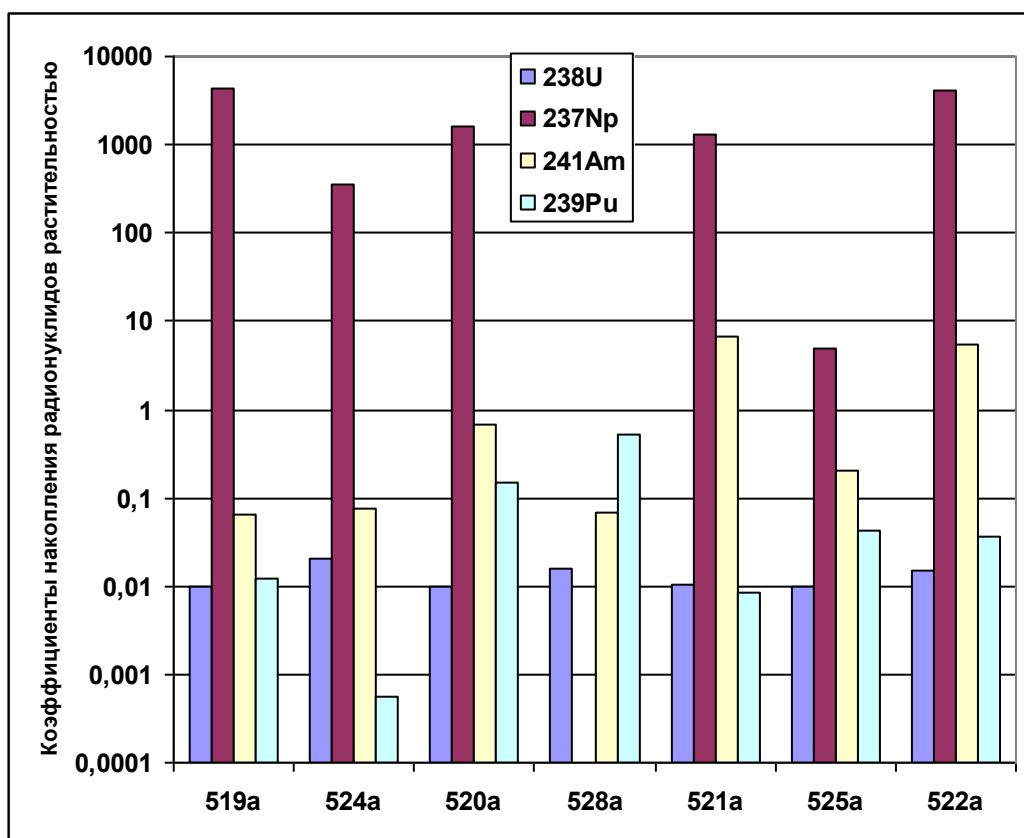


Рис. 32. Коэффициенты накопления радионуклидов водной растительностью.

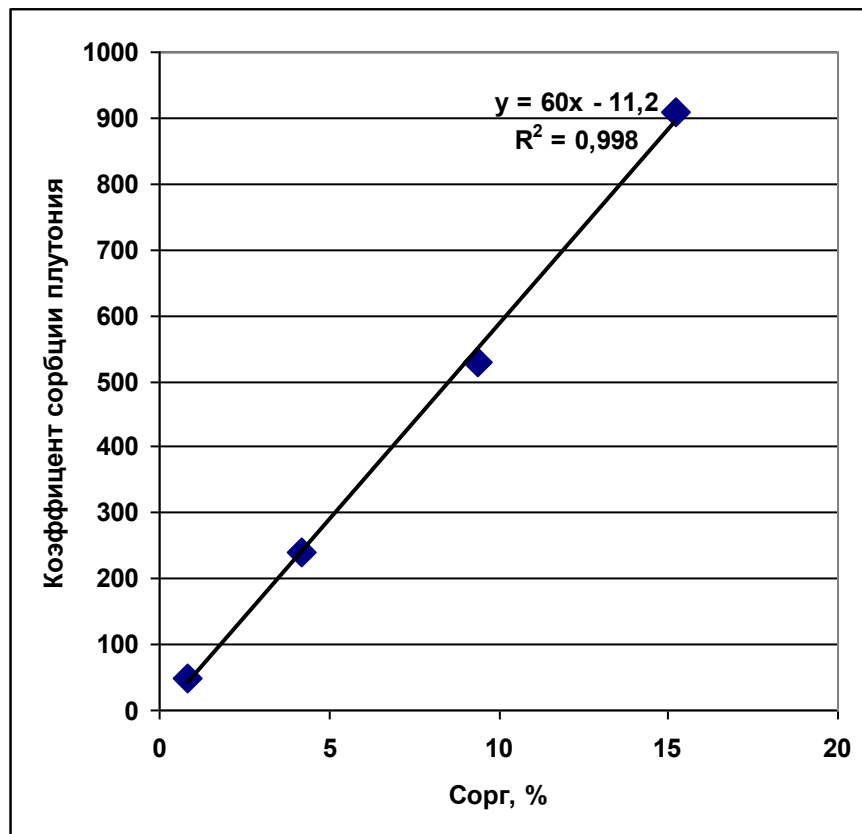


Рис. 33. Влияние органического вещества донных отложений на сорбцию ими плутония.

Как и для сорбции донными отложениями коэффициенты накопления растительностью природного урана не зависят от вида растительности и химического состава почв. Для нептуния величины K_n для всех видов растительности сильно зависят от места отбора, снижаясь с ростом содержания органического вещества в донных отложениях. По видимому, процессы накопления нептуния биотой, как наиболее растворимого актинида, определяются его связями с низкомолекулярным органическим веществом. К сожалению для данных образцов невозможно изучение распределения нептуния по фракциям органического вещества, поскольку его содержание в донных осадках слишком мало.

Накопление плутония и америция максимально для растения – мох ключевой. Однако коэффициент накопления этим растением плутония выше для обедненных по органическому веществу донных отложениях, а для америция – наоборот. Это объясняется разницей в накоплении плутония и америция по различным группам и фракциям органического вещества.

Из приведенных в **Таблице 33** данных видно, что в донных отложениях, америций предпочтительнее плутония находится в потенциально подвижных формах. Это указывает на большую вероятность перехода америция из твердых формаций в водную фазу и обуславливает его повышенную миграционную способность в экосистеме. Возможно, что

именно с повышенной миграционной способностью америция связано практически одинаковое содержание америция (0,2 Бк/кг) в 0-5 см слое донных отложений на значительном участке от 7 до 28 км от места выпуска сточных вод ГХК.

В **Таблице 34** представлено распределение по формам нахождения основных химических элементов, входящих в состав донных отложений. Видно, что в отличие от плутония и америция (**Табл. 33**), преобладающая часть макроэлементов в донных отложениях содержится в труднорастворимой форме, т.е. входит в состав гидроксидов, оксидов, высокомолекулярных органоминеральных веществ, а также включено в кристаллическую структуру глинистых минералов. Различия в распределении по формам нахождения макроэлементов, с одной стороны, и микроколичеств плутония и америция, с другой, обусловлены, главным образом, тем, что первые участвуют в формировании твердой фазы почв и донных отложений и определяют их химический состав и структуру, в то время как микроэлементы включаются в формирующиеся (или сформировавшиеся) почвы и донные отложения в присущих им специфических формах [127, 128].

Таблица 33. Формы нахождения ТУЭ верхних слоев донных отложений, в % от общего содержания в образце (горизонт 0-5 см).

Номер образца	Водорастворимая	Обменная и легкорастворимая	Подвижная	Кислоторастворимая	Труднорастворимая
$^{239,240}\text{Pu}$					
519a	0,07	9,0	22,5	46,3	22,1
520a	0,1	7,2	13,4	56,7	22,6
524a	0,1	4,3	6,2	64,0	24,8
528a	0,1	11,1	6,0	63,6	19,3
Среднее	0,1	7,9	19,0	57,7	22,2
^{241}Am					
519a	0,1	13,7	62,2	15,2	8,9
520a	0,1	9,2	61,0	20,5	9,2
524a	0,1	8,7	60,2	20,1	10,9
528a	0,1	19,4	42,2	29,7	8,1
Среднее	0,1	12,8	56,4	21,4	9,3

Таблица 34. Распределение химических элементов в донных отложениях между потенциально подвижными и нерастворимыми формами, в % от общего содержания в образце.

Элемент	Водорастворимая	Обменная и легкорастворимая	Подвижная	Кислоторастворимая	Труднорастворимая	Общее содержание в образце, мг/г
Al	0,01	0,03	1,23	1,43	97,3	73,9
Fe	0,06	0,14	5,70	6,80	87,3	17,6
Mg	0,05	2,00	1,60	3,60	92,8	14,8
Ca	0,11	5,00	4,30	1,60	89,0	8,60
K	0,02	0,23	0,11	0,20	99,5	9,04
Mn	0,04	2,20	16,6	6,2	74,9	0,46

Помимо рассмотренных выше форм нахождения ТУЭ в геохимии, почвоведении и радиогеохимии выделяют еще так называемые аморфную и силикатную формы. Первая представляет собой группу потенциально растворимых соединений органической и неорганической природы, покрывающих в виде пленок часть твердой фазы, в которой помимо минеральной фракции содержатся связанные с ними малорастворимые гидроксиды и высокомолекулярные органические вещества (гумины). Для выделения аморфной формы без разделения на составляющие ее группы соединений наиболее часто применяют обработку образца раствором Тамма (см. Экспериментальную часть). При этом в раствор переходят химические элементы и радионуклиды, склонные к образованию комплексных соединений при взаимодействии с такими органическими лигандами как оксалат-ионы. Частично в раствор переходят и соединения с природными органическими кислотами. Данные, представленные в **Таблице 35** показывают, что в донных отложениях, основная часть плутония сосредоточена в аморфной форме, в то время как для америция характерно концентрирование в силикатной форме.

Разделение аморфной формы на отдельные составляющие, осуществляли путем последовательной обработки образцов смесью растворов щелочи и щавелевокислого натрия, а затем реактивом Тамма. На первой стадии обработки преимущественно экстрагируются органические кислоты (низкомолекулярные, аминокислоты, гумусовые и др.) и их соединения с железом, алюминием, щелочноземельными и другими элементами. На второй стадии извлекаются гидроксиды железа и алюминия (**Табл. 36**). Установлено, что в органических компонентах донных отложений содержание плутония и америция

составляет в среднем 24-30 и 16-31 %, соответственно. Наибольшая разница в содержании Am и Pu в донных отложениях, наблюдается для фракций гидроксидов и остатка. При этом в малоподвижных гидроксидах донных отложений найдено в среднем в 2,6 раза больше плутония, чем америция. Следует отметить, что в донных отложениях прибрежной части Ирландского моря и Бомбейского залива, загрязненных сбросами предприятий ЯТЦ, наблюдается аналогичный характер распределения плутония между фракциями органических веществ и гидроксидов: 32-37 и 20-30 % в донных отложениях Ирландского моря и 33-51 % и 32-55 % в донных отложениях Бомбейского залива [129].

Таблица 35. Распределение ТУЭ между аморфной и силикатной формами, %

Номер образца	Плутоний		Америций	
	Аморфная	Остаток	Аморфная	Остаток
519a	81,7	18,3	11,7	88,3
520a	83,8	17,2	16,2	83,8
524a	85,4	14,6	27,7	72,3
528a	81,0	19,0	21,0	79,0
Среднее	83,0	17,0	19,1	80,9

Выполненные нами исследования показали, что органический углерод в сопоставимых количествах присутствует во всех горизонтах изученных профилей донных отложений. В некоторых профилях наблюдается существенная неоднородность вертикального распределения органического углерода. Ранее нами было установлено, что, несмотря на неоднородность распределения органического углерода в пойменных почвах и донных отложениях, также как и для поймы реки Теча (ФГУП ПО Маяк), имеется положительная корреляционная связь между содержанием $^{239,240}\text{Pu}$ и органическим углеродом [5]. Это обстоятельство делает особенно важным изучение влияния органического вещества на миграционное поведение радионуклидов и, в конечном счете, на самоочищение поймы.

Органическое вещество почв и донных отложений включает в себя сильные комплексообразующие вещества для трансурановых элементов (гуминовые и фульвокислоты и их органоминеральные производные), причем образующиеся комплексы, в зависимости от условий, могут как подавлять (гуминовые кислоты), так и активизировать (фульвокислоты) миграцию радионуклидов. На основе результатов

модельных экспериментов было показано, что подвижность Eu(Am) в пойменной почве реки Енисей в значительной степени определяется прочностью координационно-полимерной структуры металлофульватных гель-фаз [130, 131, 132], которая зависит от содержания основных металлов почвы, в первую очередь, железа и кальция. Важно отметить, что присутствие кальция существенно понижает растворимость железофульватных гель-фаз. Этот факт важно учитывать при рассмотрении миграционного поведения ТПЭ в экосистеме р.Енисей, водная компонента которой относится к кальций-гидрокарбонатному типу [133].

Данные, представленные в **Таблицах 37-38** показывают, что в донных отложениях р.Енисей как америций, так и плутоний обнаружены во всех группах и фракциях органического вещества. Видно, что существует значительное различие в распределении америция и плутония по группам и фракциям, характер которого мало зависит от глубины горизонта. Например, в группе наиболее подвижных соединений, растворимых в разбавленной серной кислоте (декальцинат), содержание америция превышает содержание плутония в среднем в 7,1 раза. Это, по-видимому, связано с менее прочной связью америция с органическими и неорганическими компонентами твердой фазы и переходом его в растворимое состояние по механизму ионного обмена. Для всех образцов в гумусовых кислотах (ФК+ГК), содержание плутония (в процентах к общему содержанию) превышает количество америция; причем в гуминовых кислотах этот эффект существенно больше, чем в фульвокислотах. В негидролизуемом остатке донных отложений доля плутония превышает долю америция в 4.7 раза.

Таблица 36. Распределение ТУЭ между органическими и неорганическими компонентами, %.

Компонент	Плутоний					Америций				
	Номер образца									
	519a	520a	524a	528a	среднее	519a	520a	524a	528a	среднее
Органической природы	42.0	33.8	24.7	20.7	30.3	32.1	47.2	20.7	26.0	31.6
Гидроксиды Fe, Al	40.0	59.0	48.8	59.6	51.9	6.6	25.0	17.9	30.8	20.0
Остаток	18.0	7.2	26.5	19.7	17.8	61.3	27.8	61.4	43.2	48.4

Таблица 37. Распределение трансурановых элементов по группам органического вещества пойменных почв и донных отложений, %

№ образца	Плутоний					Америций				
	Дек.*	ФК*	ГК*	ФК+ГК	Ост.*	Дек.*	ФК*	ГК*	ФК+ГК	Ост.*
Донные отложения										
519а	14.8	13.5	40.1	40.8	31.6	79.8	10.0	2.9	12.9	7.3
520а	16.9	13.9	16.0	29.9	53.2	74.7	9.1	2.0	11.1	14.2
524а	11.1	25.4	19.4	44.8	44.1	75.4	12.0	2.8	14.3	9.8
528а	11.8	13.4	10.0	23.2	64.8	68.9	16.6	2.5	19.1	12.6
Среднее	13.7	17.0	17.5	34.7	51.6	74.6	11.9	2.6	14.4	11.0

* Дек. – декальцинат
 ФК – фульвокислоты
 ГК – гуминовые кислоты
 Ост. – негидролизуемый остаток

Таблица 38. Распределение плутония и америция по фракциям гумусовых кислот донных отложений (в числителе % от содержания в почве, в знаменателе % от содержания во фракциях гумусовых кислот).

Образец	Гуминовые кислоты			Фульвокислоты			Остаток	
	1	2	3	1а	1	2		3
Плутоний								
519а	5.3/13.2	4.9/12.2	29.9/74.6	14.8/52.3	1.9/6.7	4.0/14.2	7.6/26.8	31.6/не обн.
520а	6.9/43.1	0.3/1.9	8.8/55.0	16.9/54.9	3.1/10.1	6.8/22.0	4.0/13.0	53.2/не обн.
524а	2.4/12.4	15.0/77.3	2.0/10.3	11.1/30.4	1.6/4.4	9.5/26.0	14.3/39.2	44.1/не обн.
528а	2.2/21.8	4.2/42.3	3.6/35.9	11.8/47.0	1.3/5.0	9.8/38.9	2.3/9.1	64.8
Среднее	не обн./22.6	не обн./34.3	не обн./44.0	не обн./46.2	не обн./6.5	не обн./25.3	не обн./22.0	не обн.
Америций								
519а	1.7/43.6	Не обн.	2.2/56.4	79.8/88.9	3.7/4.1	0.5/0.6	5.8/6.4	7.3/не обн.

520a	1.8/75.0	Не обн.	0.6/25.0	74.7/88.9	5.6/6.7	Не обн.	3.7/4.4	14.2/не обн.
524a	0.3/10.7	1.6/57.1	0.9/32.2	75.4/86.2	2.8/3.2	3.5/4.0	5.7/6.6	9.8/не обн.
528a	0.2/9.5	1.2/47.6	1.1/42.9	68.6/80.8	2.2/2.6	11.9/14.0	2.2/2.6	12.6/не обн.
Среднее	не обн./34.7	не обн./26.2	не обн./39.1	не обн./86.2	не обн./4.2	не обн./4.7	не обн./5.0	не обн.

Различия в распределении плутония и америция проявляются как между самими фракциями, так между компонентами экосистемы (Табл. 38-39). В группе гуминовых кислот содержание плутония уменьшается в ряду: фракция 1 (гуматы кальция) > фракция 2 (свободные гумусовые кислоты и их соединения с подвижными гидроксидами железа и алюминия) > фракция 3 (гуматы и малоподвижные гидроксиды). В гуминовых кислотах донных отложений плутоний предпочтительнее связан с менее растворимыми соединениями (фракции 2 и 3).

Америций также обнаружен во всех фракциях гуминовых кислот. В донных отложениях он преимущественно связан с их более подвижными соединениями (фракция 1). Следует отметить, что в донных отложениях колебания в распределении америция по фракциям гуминовых кислот в разных образцах выражены резче, чем для плутония. Несмотря на это, в среднем содержание америция в фракции 1 донных отложений ниже, чем в обычно в почвах, а во фракции 3 выше, что по всей вероятности также связано с выносом более растворимых соединений в водную среду.

В группе фульвокислот донных отложений, обнаружено высокое содержание плутония в фракции 1а и практически одинаковая доля в фракциях 2 и 3. Америций в фульвокислотах донных отложений преимущественно находится в фракции 1а.

Таким образом сравнение характера распределения Am и Pu по фракциям гумусовых кислот показывает, что во всех случаях и в пойменной почве и в донных отложениях америций связан с более растворимыми соединениями, чем плутоний.

3.5. Биота и почвы ВУРС вблизи ФГУП ПО Маяк и почвы ВУРС.

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 [134]. 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 [135].

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 Na₂CO₃, 154.3 г NaNO₃, 96.5 г NaNO₂ на кг остатка) входили соли железа, хрома, кальция (3.7 г Fe₂O₃, 11.7 г Cr₂O₃ 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 ⁹⁰Sr+⁹⁰Y и ¹³⁷Cs. Поскольку основным радионуклидом в продуктах выброса был ⁹⁰Sr, 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.

В отличие от промышленной зоны КЧХК и водных экосистем, почвы ВУРС относятся к водоненасыщенным горизонтам, поэтому для них сложно определять степень фиксации радионуклидов (Кс). Однако, содержание радионуклидов в некоторых образцах

столь велико, что можно определять формы нахождения даже малоактивных радионуклидов, например, нептуния.

Коэффициенты накопления радионуклидов в 2 типах подстилки и растительности (описание образцов и содержание радионуклидов в них приведены в **Таблицах 26-27**) представлены на **Рис. 34 и 35**.

Значения коэффициентов накопления практически всех радионуклидов в лесной подстилке меньше или равны 1,0. Это объясняется тем, что основным депо радионуклидов в лесных биогеоценозах является верхний горизонт почвы. Для почв ВУРС глубина проникновения радионуклидов не превышает 15 см [4]. Подстилка 1 покрывает опесчаненную почву и степень вымывания радионуклидов из нее больше, чем в случае серой лесной почвы (Подстилка 2). В образцах береговой растительности Оз. Кызыл-Таш содержание радионуклидов выше, чем в лесной подстилке. Особенно это касается нептуния, для которого значения K_n составили около 100, что однако несколько ниже, по сравнению с водной растительностью реки Енисей.

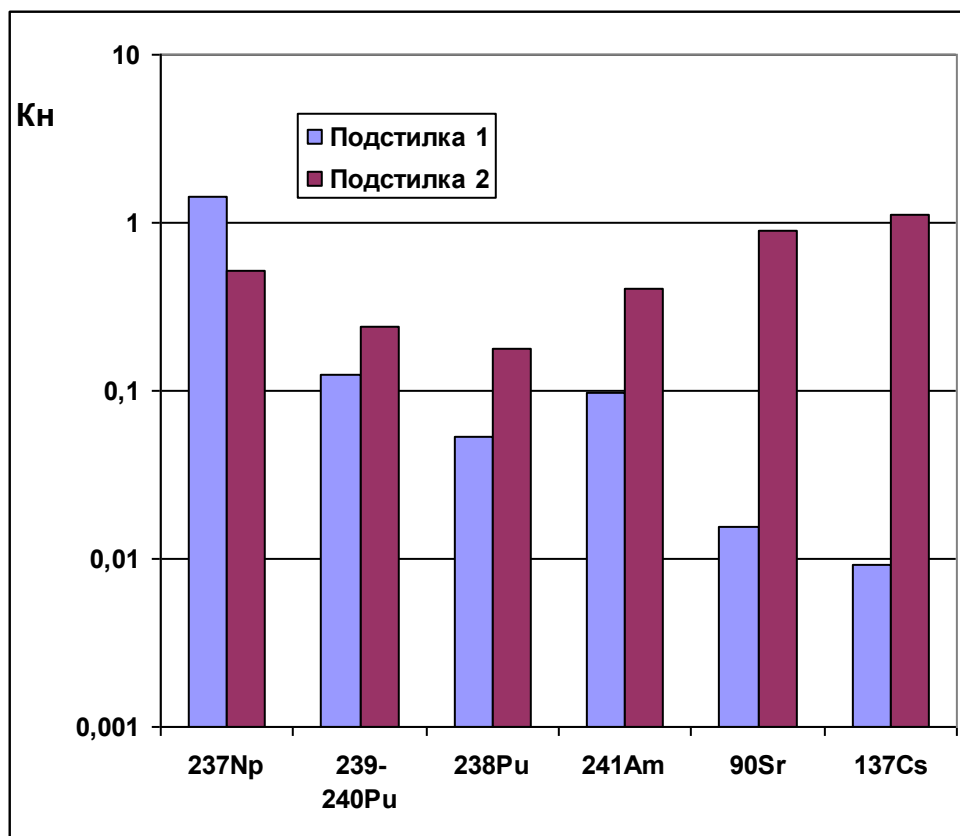


Рис. 34. Коэффициенты накопления радионуклидов в лесной подстилке.

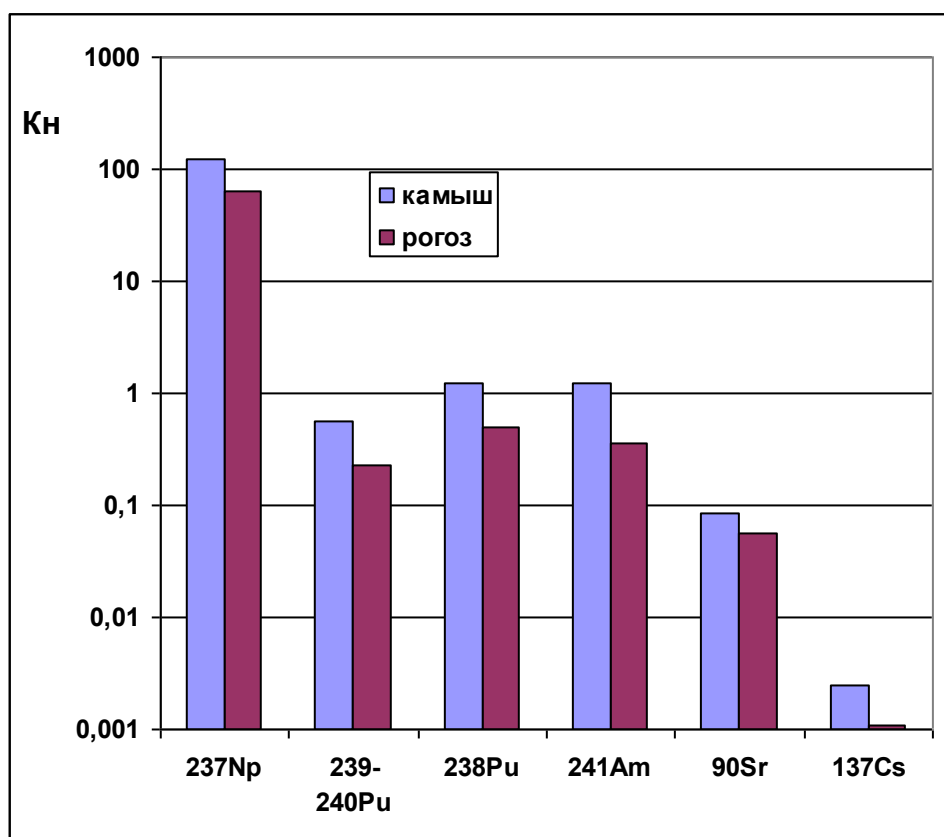


Рис. 35. Коэффициенты накопления радионуклидов в образцах растительности (камыш, рогоз).

В **Табл. 39** приведены результаты, полученные при изучении форм нахождения радионуклидов в разных типах почв зоны ВУРС и для сравнения КЧХК.

Таблица 39. Формы нахождения радионуклидов в почвах, % от содержания в почвах, содержание Сорг-мг/г почвы

Образец	Форма	^{237}Np	^{239}Pu	^{241}Am	Сорг мг/г
Супесчаные (КЧХК)	Водорастворимая	56,7	0,7	2,1	23,9
	Обменная	18,7	3,4	19,6	
	Подвижная	14,0	13,7	58,7	
	Кислоторастворимая	9,0	68,0	14,0	
	Остаток	1,2	14,2	5,6	
Дерново-подзолистая	Водорастворимая	37,6	0,8	0,3	34,3
	Обменная	35,7	19,3	16,4	
	Подвижная	16,3	11,4	55,4	
	Кислоторастворимая	6,5	17,4	24,8	
	Остаток	3,2	51,0	3,2	
Чернозем	Водорастворимая	7,4	0,5	0,2	68,9
	Обменная	31,7	5,3	3,7	
	Подвижная	29,1	9,0	60,1	
	Кислоторастворимая	26,0	16,5	28,4	
	Остаток	5,8	69,2	7,8	

Данные, представленные в Табл. 39 показали, что количественное распределение радионуклидов по формам нахождения зависит как от химических свойств радионуклидов, так и от типов почв.

Найдено, что для всех типов почв содержание различных по своим химическим свойствам радионуклидов в водорастворимой и обменной формах, являющихся наиболее мобильными и определяющими миграционную подвижность химических элементов, уменьшается в ряду: ^{237}Np (39,1-75,4%) > ^{241}Am (3,9-21,7%) \geq ^{239}Pu (4,1-20,1%). В труднорастворимых формах (кислоторастворимая и остаток) независимо от типа почв содержание радионуклидов изменяется в ином порядке: ^{239}Pu (68,4-85,7%) > ^{241}Am (19,6-36,2%) > ^{237}Np (9,7-31,8%).

С другой стороны, тип почвы существенно влияет на распределение радионуклидов по формам их нахождения. Так, содержание ^{237}Np в водорастворимой форме уменьшается в зависимости от увеличения содержания Сорг в образцах: супесчаная почва (56,7%) > дерново-подзолистая (37,6%) > чернозем (7,4%) (Рис. 36).

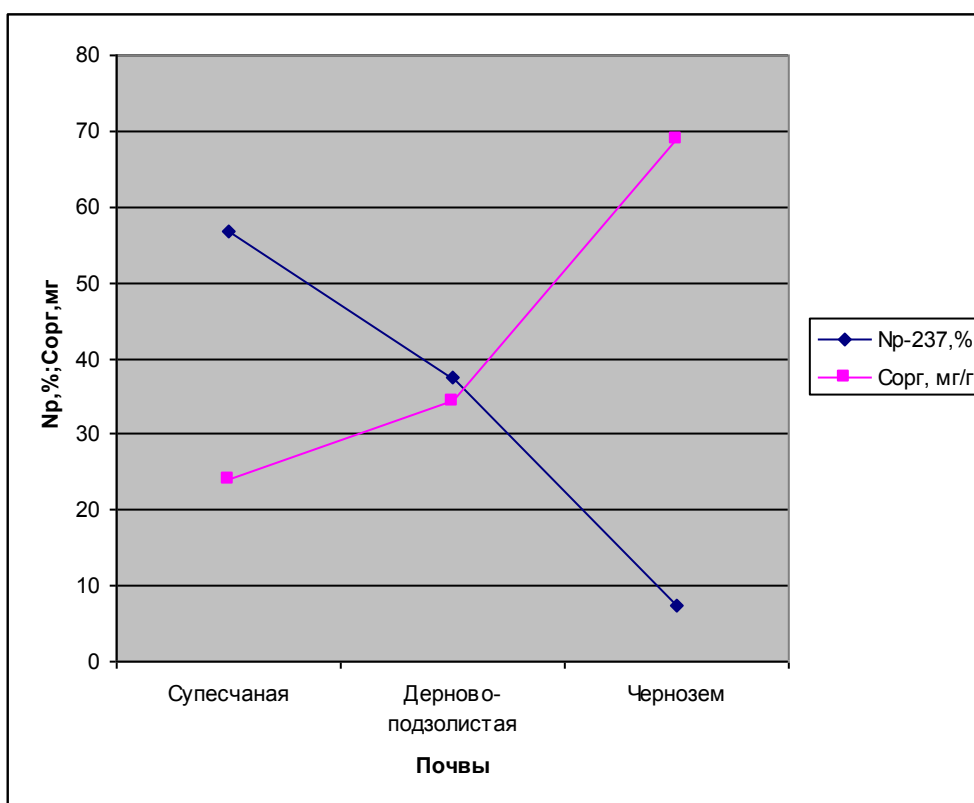


Рис. 36. Содержание Np в водной вытяжке из почв %; Сорг в почвах, мг/г.

По сравнению с Np содержание Pu и Am в водной вытяжке значительно ниже и составляет 0,2-2,1 %. В труднорастворимых формах чернозема найдено более высокое содержание радионуклидов по сравнению с супесчаной и дерново-подзолистой почвой, что связано с аккумулятивной и протекторной функциями гумусовых кислот, входящих в

состав органического вещества этой почвы. В черноземе Np распределяется достаточно равномерно между обменной и кислоторастворимыми формам, в целом на их долю приходится 86,8% Np, это по всей вероятности указывает на роль специфических по своему составу и свойствам гумусовых кислот чернозема, которые способствуют снижению миграционной подвижности Np.

Содержание Np в составе групп и фракций органического вещества почв приведено в **Таблицах 40 и 41**. Для сравнения в указанных таблицах представлены ранее полученные данные по распределению Pu и Am в тех же компонентах органического вещества дерново-подзолистой почвы и чернозема [136].

Таблица 40. Содержание Np, Pu и Am в группах и фракциях органического вещества дерново-подзолистой почвы, в числителе -% от содержания в почве, в знаменателе -% от содержания во фракциях гумусовых кислот.

Элемент	Гуминовые кислоты, фракции				Фульвокислоты, фракции					Остаток
	1	2	3	Сумма	1a	1	2	3	Сумма	
²³⁷ Np	8,1/ 94,2	0,1/ 1,1	0,4/ 4,7	8,6/ 100	57,5/ 63,7	32,4/ 35,9	н/о	0,4/ 0,4	90,3/ 100	1,0
²³⁹ Pu	17,3/ 45,5	12,7/ 33,5	8,0/ 21,0	38,0/ 100	3,7/ 16,1	8,4/ 36,5	3,4/ 14,8	7,5/ 32,6	23,0/ 100	49,0
²⁴¹ Am	4,0/ 100	н/о	н/о	4,0/ 100	57,7/ 67,3	27,0/ 31,5	н/о	1,0/ 1,2	85,7/ 100	10,3

Таблица 41. Содержание Np, Pu и Am в группах и фракциях органического вещества чернозема, в числителе - % от содержания в почве, в знаменателе - % от содержания во фракциях гумусовых кислот.

Элемент	Гуминовые кислоты, фракции				Фульвокислоты, фракции					Остаток
	1	2	3	Сумма	1a	1	2	3	Сумма	
²³⁷ Np	7,5/ 40,1	5,6/ 30,0	5,6/ 29,9	18,7/ 100	39,4/ 55,5	24,3/ 34,2	5,6/ 7,9	1,7/ 2,4	71,0/ 100	10,3
²³⁹ Pu	2,4/ 9,2	18,8/ 71,8	5,0/ 19,0	26,2/ 100	0,4/ 5,1	1,2/ 15,4	2,7/ 34,6	3,5/ 44,9	7,8/ 100	66,0
²⁴¹ Am	6,8/ 18,5	21,5/ 58,4	8,5/ 23,1	36,8/ 100	15,3/ 36,4	2,7/ 6,4	23,0/ 54,8	1,0/ 2,4	42,0/ 100	21,2

Данные, приведенные в **Табл. 40 и 41** показывают, что содержание радионуклидов в группе ФК изменяются в порядке убывания независимо от почв и составляют для дерново-подзолистой почвы: Np (90,3% > Am (85,7%) > Pu (23,0%), для чернозема: Np (71,0%) > Am (42,0%) > Pu (7,8%). Однако в черноземе содержание всех радионуклидов в группе ФК дерново-подзолистой почвы выше, чем в группе ФК чернозема. В том же порядке уменьшается доля радионуклидов в остатке почв, которые представлены гуминами и прочносвязанными с минеральной частью образца органическими веществами. В группе ФК 99,6% Np в дерново-подзолистой почве и 89,7% черноземе

найден в сумме фракции 1а (декальцинат, в составе которого находятся фульво- и неспецифические низкомолекулярные органические кислоты, свободные и связанные с подвижными $R_2O_3 \cdot nH_2O$ и другими элементами, а также легкорастворимые неорганические соединения) и фракции 1 (непосредственная обработка отдельной навески почв 0,1 М NaOH, в кислую вытяжку после отделения ГК переходят ФК и низкомолекулярные органические кислоты, свободные и связанные преимущественно с подвижными $R_2O_3 \cdot nH_2O$ и другими элементами). В фракции 2 (ФК, связанные преимущественно с Ca) дерново-подзолистой почвы Nr и Am не обнаружены, в черноземе в этой фракции найдено 7,9% Nr.

В группе ГК, выделенной из чернозема, доля Nr, Pu и Am составляет 18,7%, 26,2% и 36,8% соответственно от содержания радионуклида в почве, в дерново-подзолистой почве содержание Nr в этой группе меньше Pu. В фракции 1 ГК найдено 94,2% и 40,1% Nr от содержания его в группе ГК в дерново-подзолистой и черноземе соответственно, что значительно выше, чем количество Pu и Am в этой же фракции. В фракции 2 ГК дерново-подзолистой почвы Nr практически отсутствует, однако в черноземе в этой фракции содержание Nr составляет 30%, в этой же фракции находится основное количество Pu и Am (71,8 и 58,4% от содержания радионуклидов в группе ГК), что обусловлено более высоким по сравнению с дерново-подзолистой почвой содержанием Сорг в этой почве.

В **Табл. 42** приведены отношения содержания радионуклидов и Сорг в составе групп ГК и ФК (ГК/ФК). Данные в **Табл. 42** показали, что состав и свойства гумусовых веществ почв, и входящих в их состав низкомолекулярных неспецифических органических соединений, играют определяющую роль в поведении радионуклидов. Так, Pu в большей степени, чем Am и Nr в почвах связан с группой ГК (ГК/ФК>1), которые способствуют сорбции Pu на поверхности органо-минеральных частиц почв, снижая его миграционную способность. Для Nr и Am соотношение в составе гумусовых кислот ГК/ФК<1

Таблица 42. Отношение содержания РН и Сорг в группах ГК к ФК

Элемент	Почва, отношение ГК/ФК	
	Дерново- подзолистая	Чернозем
^{237}Nr	0,10	0,26
^{239}Pu	1,65	3,36
^{241}Am	0,05	0,88
Сорг	1,00	1,47

В процессе разделения компонентов органического на активированном угле БАУ из растворов декальцината и раствора ФК, получаемого после осаждения ГК, было выделено несколько фракций, содержание в которых радионуклидов и органического углерода представлено в **Табл. 43**.

Таблица 43. Распределение $C_{орг}$, Pu и Am в декальциenate и фульвокислотах, выделенных из черноземной и дерново-подзолистой почв по методу Форсита, % от содержания в фракциях

Образец	Фракция	Содержание, %							
		черноземная почва				дерново-подзолистая почва			
		$C_{орг}$	Pu	Am	Np	$C_{орг}$	Pu	Am	Np
Декальцинат	A	40,3	90,1	97,6	52,0	35,3	50,0	94,4	58,0
	B+C	43,8	1,9	1,4	44,0	25,5	1,5	0,5	37,0
	сумма	84,1	92,0	99,0	96,0	60,8	51,5	94,9	95,0
	D (ФК)	15,9	8,0	1,0	4,0	39,2	32,7	4,5	5,0
Фульвокислота	A	59,3	37	97,6	84,2	43,8	35,3	79,6	85,0
	B+C	1,7	н/о	1,4	10,3	18,7	11,8	12,6	8,8
	сумма	61,0	37,0	99,0	94,5	62,5	47,1	92,2	93,8
	D (ФК)	39,0	63	1,0	5,5	37,5	52,9	7,8	6,2

Полученные результаты показали, что $C_{орг}$, Np, Pu и Am неравномерно распределены между фракциями, представленными специфическими и биоактивными неспецифическими веществами. Установлено, что в декальциenate почв основная доля $C_{орг}$, Np, Pu и Am найдена в составе неспецифических соединений (фракции A и B+C). В группе ФК $C_{орг}$ и Pu равномерно распределены между специфическими и неспецифическими ОВ, а Np и Am находятся в основном в составе неспецифических соединений.

Установлено, что тип почв влиял на нахождение радионуклидов в составе неспецифических соединений: содержание $C_{орг}$, Pu и Am в фракциях A и B+C выше в черноземе, чем в дерново-подзолистой почве. Исключение составляет нептуний. Нахождение $C_{орг}$, Pu и Am в составе специфических соединений ФК (фракция D) ниже, чем в составе неспецифических соединений (1.0-39.2%), при этом в дерново-подзолистой почве содержание $C_{орг}$, Pu и Am выше (39.2; 32.7 и 4.5%), чем в черноземе (15.9; 8.0 и 1.0%).

Похожая картина распределения $C_{\text{орг}}$, Pu и Am между специфическими и неспецифическими соединениями наблюдалась и в первично выделенных из почв кислых растворах смеси неспецифических соединений и ФК. Доля собственно ФК (фракция D) составляла 37.5-63.0% для $C_{\text{орг}}$ и Pu , и 1.0-7.8% для Am и 4,0 – 6,2 для Np . Тип почв оказал влияние на нахождение в этой фракции только Am . Содержание в составе низкомолекулярных неспецифических соединений в почвах возрастало в ряду $Am > Np > C_{\text{орг}} > Pu$ как для чернозема, так и для дерново-подзолистой почвы.

Полученные результаты позволяют сделать вывод о том, что состав кислого раствора ФК, получаемого непосредственно после отделения ГК, неоднороден и представляет собой смесь неспецифических и специфических соединений - собственно ФК. Декальцинат в меньшей степени содержит ФК и представляет собой смесь неспецифических низкомолекулярных соединений.

Экспериментальные данные, полученные в результате изучения форм нахождения Np , показали, что определяющую роль в его миграции играют подвижные почвенные низкомолекулярные неспецифические органические вещества разной природы, а так же фульвокислоты, входящие в состав органического вещества почв. На это указывает высокое содержание ^{237}Np в водорастворимой и обменной формах (39% -черноземе и 73% и 75% в дерново-подзолистой и супесчаной почвах соответственно), а также во фракциях 1а и 1 группы ФК (64% в черноземе и 90% в дерново-подзолистой почве от содержания Np в почвах). Известно, что формирование геохимических потоков минеральных и органических веществ происходит преимущественно в водных средах, например в почвенных растворах. При этом образуются устойчивые, но сравнительно легко растворимые комплексные соединения химических элементов, в том числе и радионуклидами, с относительно подвижными низкомолекулярными органическими веществами неспецифической природы и фульвокислотами, в состав которых, по всей вероятности, может входить Np . Невысокое содержание Np в группе ГК почв указывает на достаточно низкую вероятность образования органоминеральных комплексов этого элемента с высокомолекулярными ассоциациями ГК. Из литературных источников известно, что химические элементы поступают в растения через корни не только в ионной форме, но и в составе относительно низкомолекулярных органоминеральных соединений, поэтому следует ожидать, что для растений коэффициенты биологического накопления Np будут достаточно высокими. Поэтому полученные по формам нахождения нептуния данные объясняют наблюдаемые высокие значения K_n для нептуния, по сравнению с другими радионуклидами.

Полученные данные по формам нахождения Nr и других радионуклидов показали, что физико-химические свойства природной среды (климатические условия; тип почв, их механический и химический состав; содержание, состав и свойства органического вещества почв и другие природные факторы), а также химические свойства самих радионуклидов определяют их поведение в почвах, что в свою очередь должно быть учтено при разработке мероприятий по дезактивации загрязненных радионуклидами территорий.

Полученные результаты исследования позволяют сделать следующие выводы.

1. Показано, что физико-химические характеристики почв и химические свойства самих радионуклидов оказывают определяющее влияние на геохимическое поведение их в объектах окружающей среды.
2. Для всех типов почв содержание радионуклидов в водорастворимой и обменной формах, которые являются наиболее мобильными и определяющими миграционную подвижность химических элементов, увеличивается в ряду: ^{237}Nr (39-75%) > ^{241}Am (4-22%) \geq ^{239}Pu (4-20%). В этом же ряду увеличиваются коэффициенты накопления радионуклидов растительностью.
3. Установлено, что физико-химические свойства почв определяют поведение ^{237}Nr в них; по содержанию ^{237}Nr в водорастворимой и обменной формах почвы можно расположить в ряд: супесчаная почва > дерново-подзолистая > чернозем.
4. На распределение ^{237}Nr по формам его нахождения определяющую роль оказывает содержание Сорг в почвах, с увеличением его количества уменьшается доля Nr в водорастворимой и обменной формах, а также в группе ФК, выделенной из почв.
5. Основное количество Nr , в отличие от Pu , но близкое к Am , связано с группой ФК и составляет для дерново-подзолистой почвы и чернозема- 90,3% и 71,0% от содержания в почвах, при этом Nr в группе ФК преимущественно связан с фульво- и неспецифическими низкомолекулярными кислотами, свободными и связанными с подвижными $\text{R}_2\text{O}_3 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ (фракции 1а и 1 ФК).
6. В группе ГК чернозема по сравнению с дерново-подзолистой почвой содержание Nr выше (18,7% и 8,6%, соответственно), что определяется количеством Сорг в них. Основное количество Nr (94,2% от содержания в группе ГК) в дерново-подзолистой почве связано со свободными и связанными преимущественно с подвижными $\text{R}_2\text{O}_3 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ ГК (фракция 1 ГК).
7. Более высокое содержание Nr по сравнению с Pu и Am в составе водорастворимой и подвижной формах, а также в составе фульво- и неспецифических низкомолекулярных органических соединениях, являющихся наиболее мобильной

составляющей почвенного органического вещества, обуславливает и большую его миграционную подвижность в объектах окружающей среды, что и следует учитывать при разработке мероприятий по реабилитации почв, загрязненных радионуклидами.

3.6. Биота, почвы и поверхностные воды зоны воздействия аварийного подземного ядерного взрыва (ПЯВ) «Кратон-3», Якутия.

С 1974 по 1987 годы на территории Якутии было произведено 12 мирных подземных ядерных взрывов, в результате двух из них — «Кристалла» и «Кратона-3» — произошло загрязнение окружающей среды продуктами ядерного деления. ПЯВ «Кратон-3» является самым неудачным из всех взрывов, проведенных в Якутии. Взорван 24 августа 1978 г. на 40 км восточнее от алмазоносной трубки «Айхал» и одноименного п. Айхал на глубине 577 м на берегу реки Марха (левый приток Вилюя), в 120 м от уреза воды. Ядерное устройство мощностью 19 кт. Технологическая скважина пробурена с грубыми нарушениями рабочего проекта: с изменением координат на 50 км (выше по течению), на правом берегу (вместо левого), т.е. совсем в других геологических, тектонических, гидрологических и мерзлотных условиях. Опасная радиационная обстановка сложилась из-за нарушения герметичности затрубного пространства (полного цементаж, как по проекту, не получилось). При проверке на герметичность открытого ствола скважины в интервале 130-585 м было установлено, что скважина не удовлетворяет требованиям технического задания. Кроме того, геофизическими исследованиями был отбит поглощающий горизонт в интервале 165-186 м. Для ликвидации поглощения трижды делались неудачные попытки перекрытия поглощающего интервала цементным мостом. При разбурировании последнего моста буровой инструмент отклонился от ствола скважины и пошел новым стволом, но на глубине 545 м встретился со старым стволом. Таким образом, на интервале 180- 545 м фактически имелись два ствола. Дополнительных мероприятий по герметизации скважины на давление 40 атмосфер не проводилось, тем не менее, ядерное устройство было подорвано. Приблизительно на 5-й секунде после взрыва произошел выброс радиоактивных веществ с образованием облака и следа радиоактивных выпадений. Облако, двигаясь по ветру, накрыло буровую площадку, пункт дистанционного подрыва и жилой поселок с участниками работ с общей численностью 80 человек. Уровень радиации в поселке во время прохождения облака превышала 200 Р/час. Моросящий дождь во время взрыва вызвал вымывание радиоактивности из облака и обусловил заражение местности (на корню погиб лиственный лес на 100 гектарах).

Протяженность ближней зоны (радиационно-опасной) по уровню 0,5 Р составила около 30 км.

В Табл. 28 приведены данные по содержанию радионуклидов в различных объектах окружающей среды этой зоны в 2012-2013 годах. На Рис. 37 и 38 представлены зависимости содержания радионуклидов от содержания радиоцезия в верхнем (0-5 см) и нижнем (5-10 см) горизонтах почв. Радиоцезий был выбран как трассер поскольку его содержание и точность определения последнего максимальны, по сравнению с другими радионуклидами.

Как видно из представленных данных в верхнем горизонте почв содержание изотопов плутония и нептуния линейно коррелирует с содержанием радиоцезия. В то же время для содержания радиостронция такой зависимости не наблюдается. Это объясняется тем, что в почвах радиостронций образует наиболее растворимые, по сравнению с другими радионуклидами, физико-химические формы и в поэтому скорость его перераспределения по компонентам биогеоценозов максимальна.

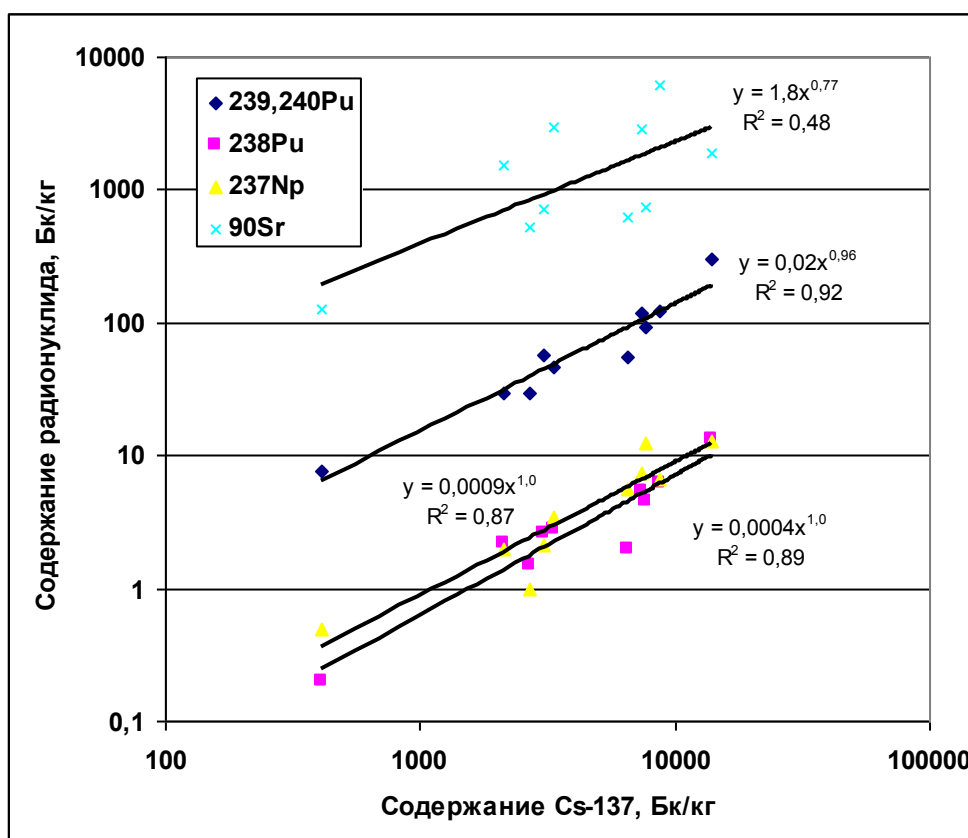


Рис. 37. Содержание радионуклидов в верхнем горизонте почв.

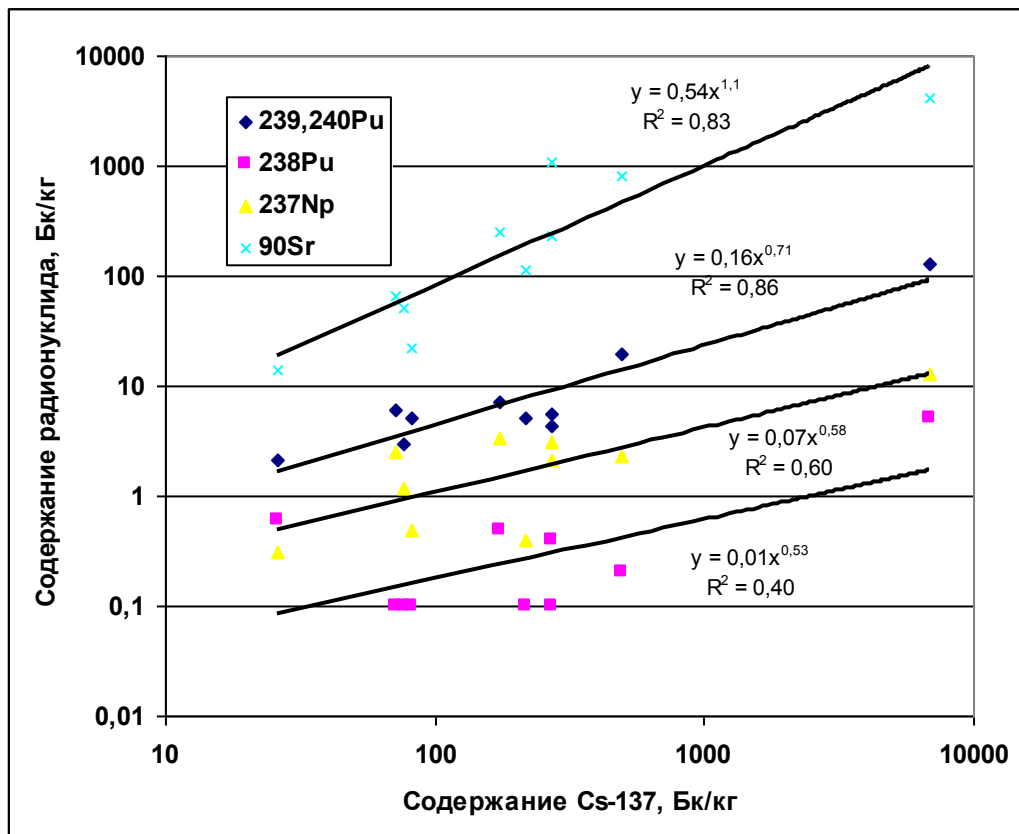


Рис. 38. Содержание радионуклидов в нижнем горизонте почв.

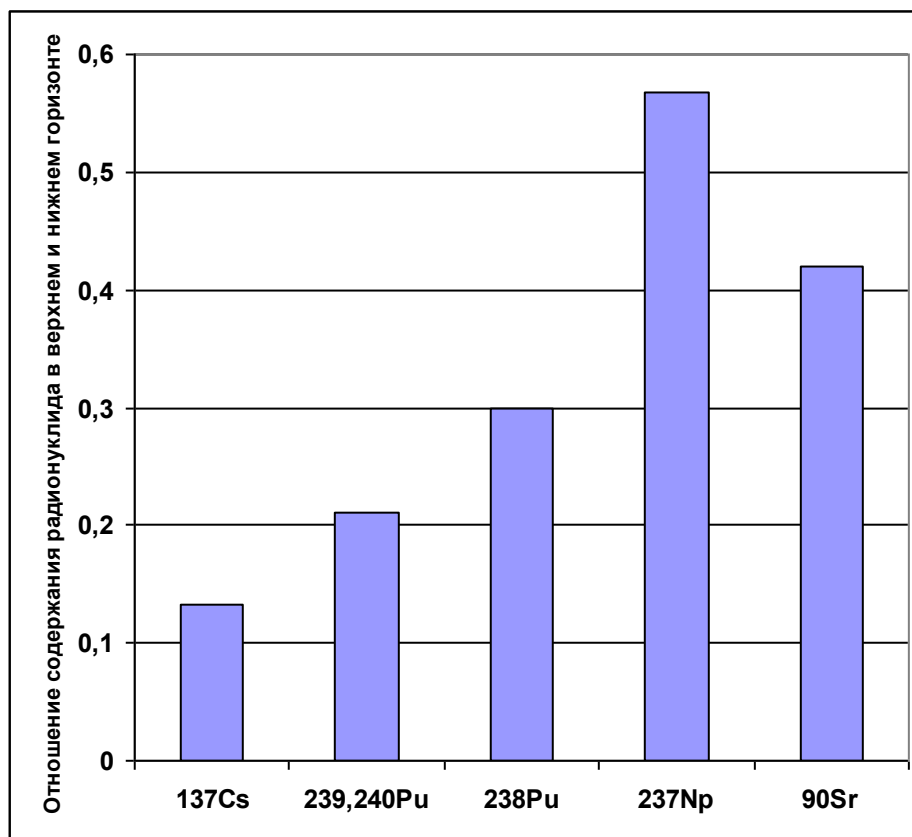


Рис. 39. Отношения между средним содержанием радионуклидов в верхнем и нижнем горизонтах.

В нижнем горизонте наблюдается только тенденция к росту содержания радионуклидов с увеличением содержания радиоцезия. В этом горизонте уже сказываются миграционные различия в поведении различных радионуклидов. На **Рис. 39** представлены отношения между средним содержанием радионуклидов в верхнем и нижнем горизонтах. Максимальный вынос в нижний горизонт наблюдается для нептуния и радиостронция. Минимальный - для радиоцезия. Миграция плутония-238 несколько выше, чем изотопов $^{239-240}\text{Pu}$. Подобные тенденции замечались и ранее [3]. Для того, чтобы оценить закономерности миграции различных радионуклидов в исследуемой зоне был выполнен разрез по почвенному профилю и проанализировано содержание радионуклидов в различных горизонтах (**Рис. 39 – 42**). На рисунках данные представлены в виде зависимости логарифма содержания радионуклида в почвенном горизонте от квадрата глубины этого горизонта. Для разового поверхностного загрязнения тангенс угла наклона этой зависимости пропорционален коэффициенту миграции [3]. Для почв ВУРС подобные зависимости обычно имеют две составляющие быструю и медленную. В данном случае для радионуклидов – нептуния (**Рис. 39**), плутония (**Рис. 40**) и цезия (**Рис. 41**) также наблюдается подобная картина. В то же время для радиостронция (**Рис. 42**) указанная выше зависимость линейна на всем участке почвенного профиля.

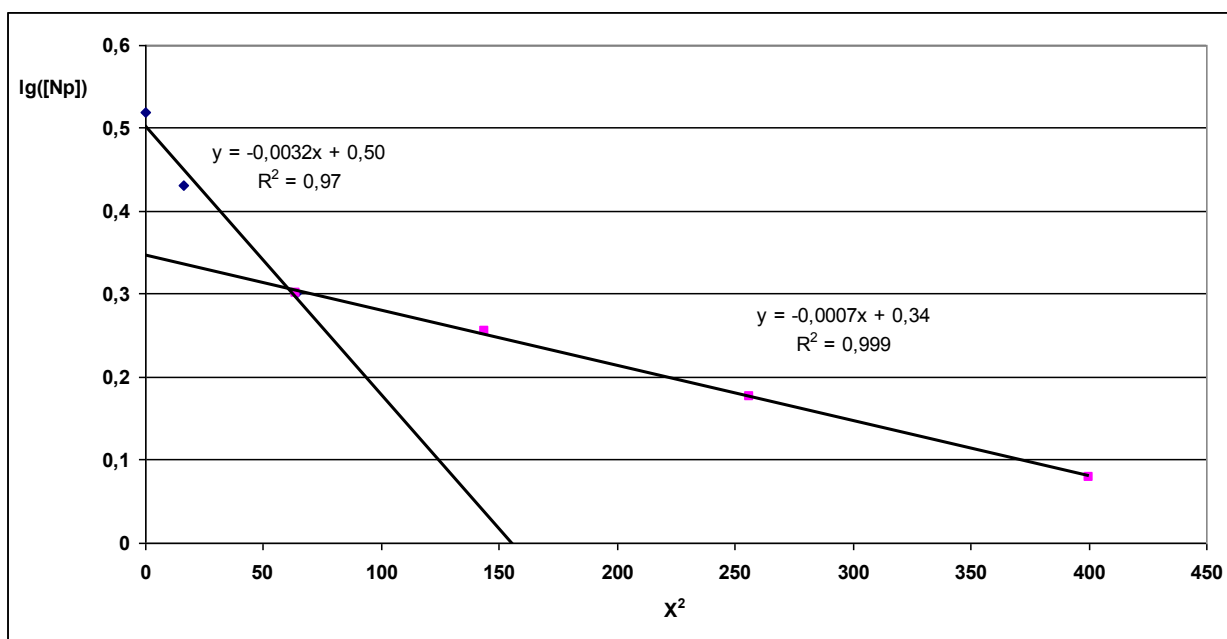


Рис. 39. Динамика миграции нептуния по почвенному профилю.

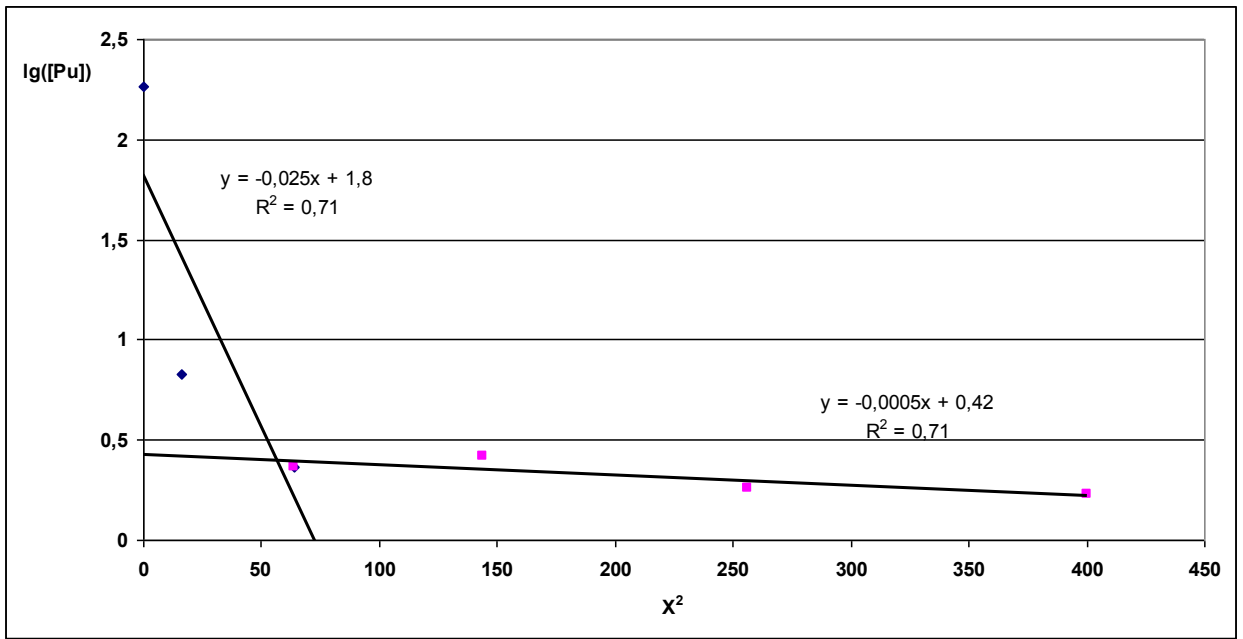


Рис. 40. Динамика миграции плутония по почвенному профилю.

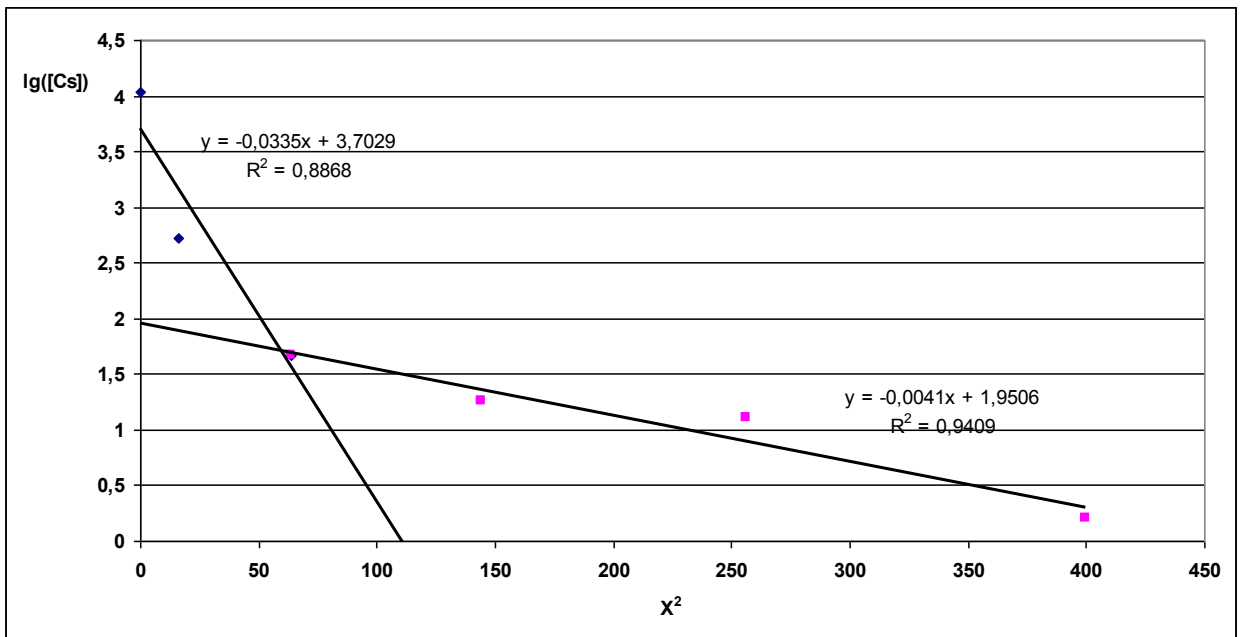


Рис. 41. Динамика миграции радиоцезия по почвенному профилю.

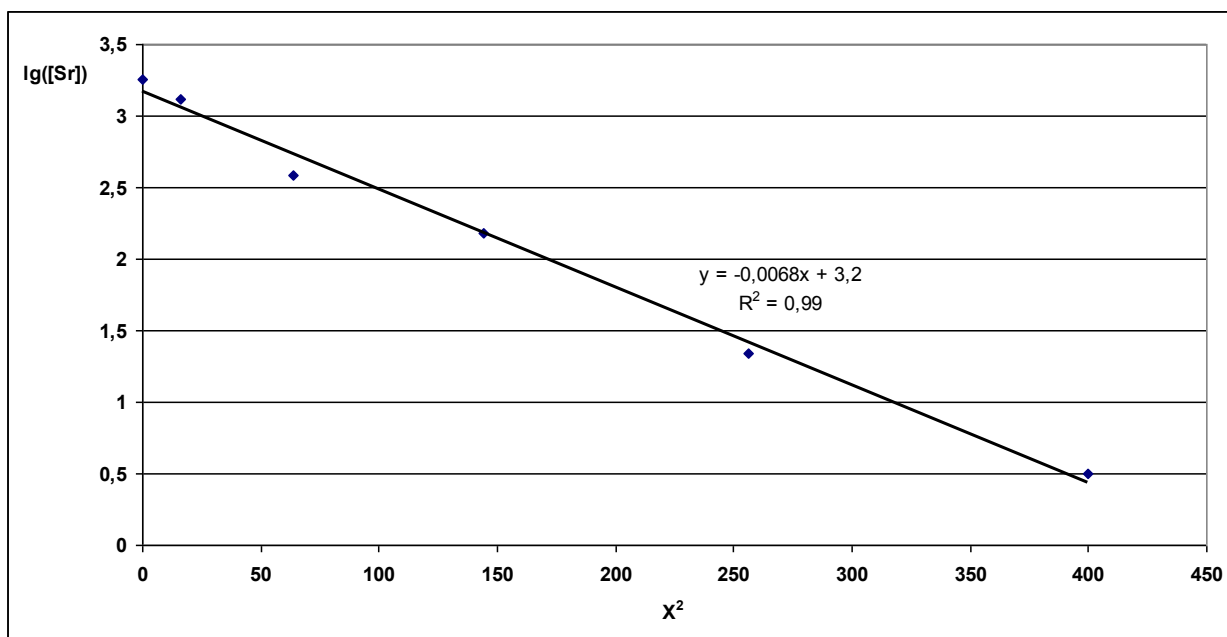


Рис. 42. Динамика миграции радиостронция по почвенному профилю.

Модельные представления о квазистационарной диффузии от поверхности в бесконечность [3] не для всех радионуклидов хорошо согласуются с экспериментом. Так для радиостронция величина достоверности аппроксимации зависимости логарифма содержания от квадрата глубины проникновения высока - 0,99. Для нептуния быстрая составляющая характеризуется удовлетворительной величиной достоверности аппроксимации – 0,97 и очень хорошей для медленной составляющей. Для радиоцезия можно говорить только о тенденции приближения к модельным представлениям. Для плутония они практически не соблюдаются ($R=0,71$). Наиболее высокая динамика миграции наблюдается для радиостронция. Для нептуния скорость миграции на глубинах более 8 см резко снижается. Такой же эффект наблюдается и для радиоцезия.

На **Рис. 43** представлены данные по коэффициентам сорбции радионуклидов донными отложениями двух рек. По величине коэффициента сорбции радионуклиды располагаются в обычном порядке $Cs > Pu > Sr > Np$. Обращает на себя внимание относительно низкие значения K_s для изотопов плутония. В реке Енисей коэффициенты сорбции плутония донными отложениями на один – два порядка выше (**Рис.31**). Но и остальные радионуклиды исследуемой экосистемы также имеют невысокие коэффициенты сорбции. Возможно это объясняется аномально низкими температурами криогенной зоны.

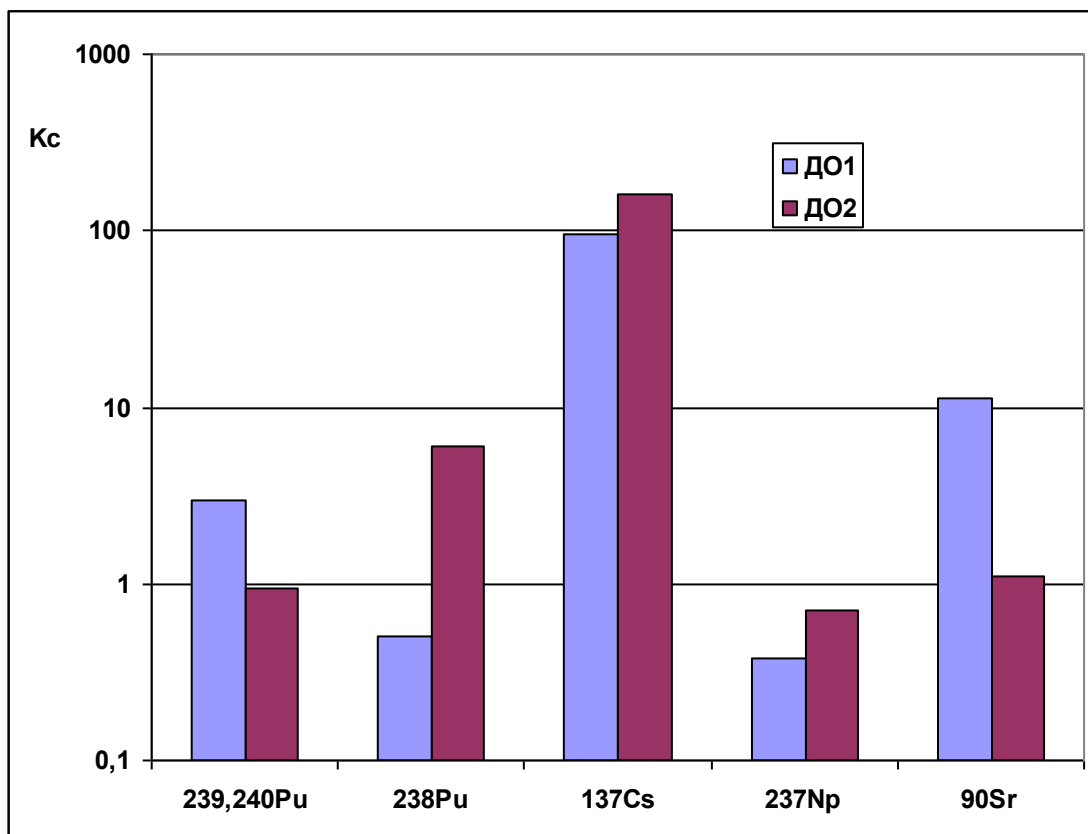


Рис. 43. Коэффициенты сорбции радионуклидов донными отложениями

На **Рис. 44** представлены данные по биологическому накоплению различных радионуклидов в исследуемой зоне. При расчете K_n за содержание в абиотических объектах окружающей среды принимали среднее значение содержаний радионуклидов в верхнем горизонте почв.

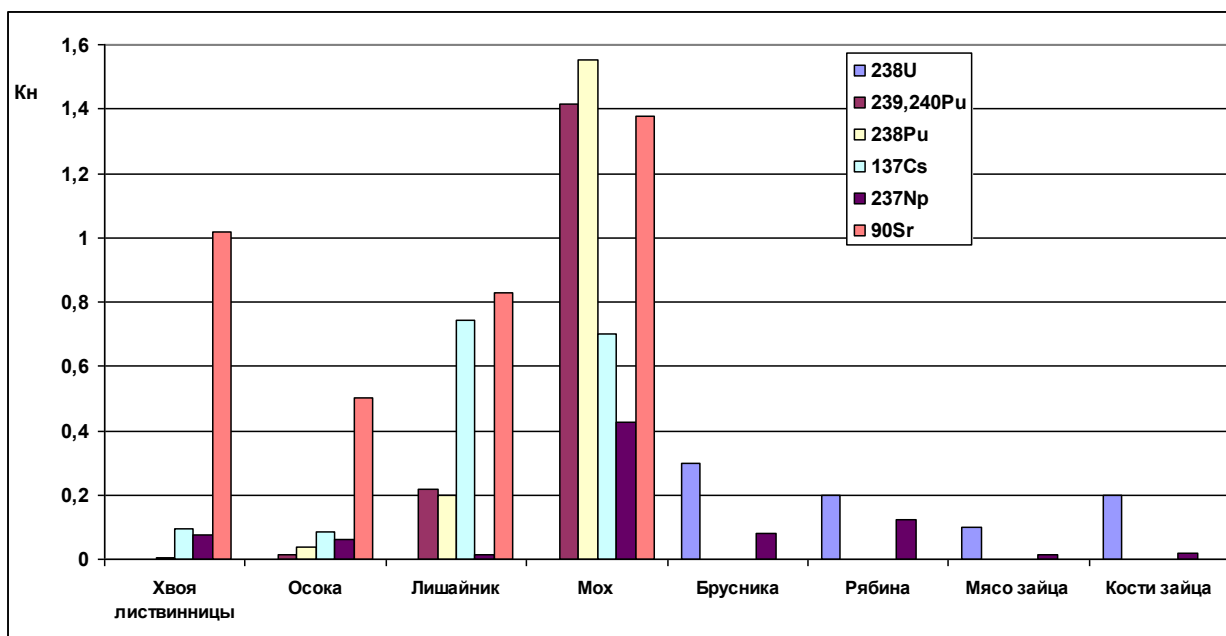


Рис. 44. Коэффициенты биологического накопления радионуклидов.

Как видно из представленных данных растительность в значительной степени накапливает все радионуклиды. Особенно это относится к образцам мха и лишайника. Содержание радионуклидов стронция и плутония в образце мха выше, чем в почве. Коэффициенты накопления радионуклидов растительностью зоны ВУРС (Рис. 35), за исключением нептуния, ниже. Однако и в данном случае нептуний обнаружен не только в стеблях и листьях растений, но и в ягодах, мясе и костях зайцев.

3.7. Морская вода и взвешенное вещество Белого и Карского морей.

Данные по содержанию изотопов плутония в воде Карского моря приведены в **Табл. 30**. Среднее содержание ^{239}Pu составляет 0,1-0,2 Бк/м³. Содержание в коллоидной фракции достигает 30%, что ниже содержания в поверхностных водах реки Енисей [4]. В Белом море содержание плутония в коллоидной фракции несколько выше (**Табл. 32**).

Соотношение $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ в исходных пробах морской воды варьировалось в пределах 0,1 – 0,77, 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 и ОЯТ АПЛ, было бы логичнее предположить наличие локального источника проникновения плутония в морскую среду, например, негерметичность затопленных контейнеров.

В **Таблице 44** приведены результаты определения состояний окисления плутония в коллоидных фракциях воды Белого моря. К сожалению определение окислительных состояний для исходной воды и фильтрата не представляется возможным из-за низкого содержания плутония.

Из полученных данных видно, что во взвешенном веществе всех проб преобладает плутоний (IV). Плутоний (V) в заметных количествах обнаружен только во фракции средних по размеру коллоидных частиц, возможно относящимся к растворенным гуминовым веществам. Плутоний (VI) практически везде обнаружен в пределах ошибки определения. Максимальное содержание плутония в высших состояниях окисления найдено в пробе из эстуарной зоны. Возможно это свидетельствует о том, что высшие валентные формы плутония более устойчивы в речных водах и в море вносятся стоком речных вод.

Таблица 44. Результаты определения состояния окисления плутония во фракциях коллоидного материала морской воды (Белое море)

Фракция	Pu(IV), %	Pu(V), %	Pu(VI), %
Открытое море (4928)			
0.5 мкм – 300 КДа	86	14	4
300 – 50 КДа	45	45	<1
50 – 15 КДа	73	17	<1
Открытое море (4932)			
0.5 мкм – 300 КДа	100	<1	<1
300 – 50 КДа	83	7	<1
50 – 15 КДа	98	<1	<1
Открытое море (4939)			
0.5 мкм – 300 КДа	100	< 1	< 1
300 – 50 КДа	37	41	15
50 – 15 КДа	68	22	9
Эстуарная зона (Двинской залив)			
0.5 мкм – 300 КДа	73	21	6
300 – 50 КДа	59	30	9
50 – 15 КДа	67	13	20

На **Рис. 45** представлены данные по относительному содержанию плутония в коллоидных фракциях и относительному содержанию Pu(IV) в этих фракциях. Как видно во фракции 300 – 50 КДа содержится минимальное количество плутония и, одновременно минимальное количество окислительной формы Pu(IV). По видимому, как и для коллоидного вещества грунтовых вод, чем прочнее плутоний связан с коллоидным веществом, тем он в большей степени стабилизируется в относительно малоподвижных низших состояниях окисления.

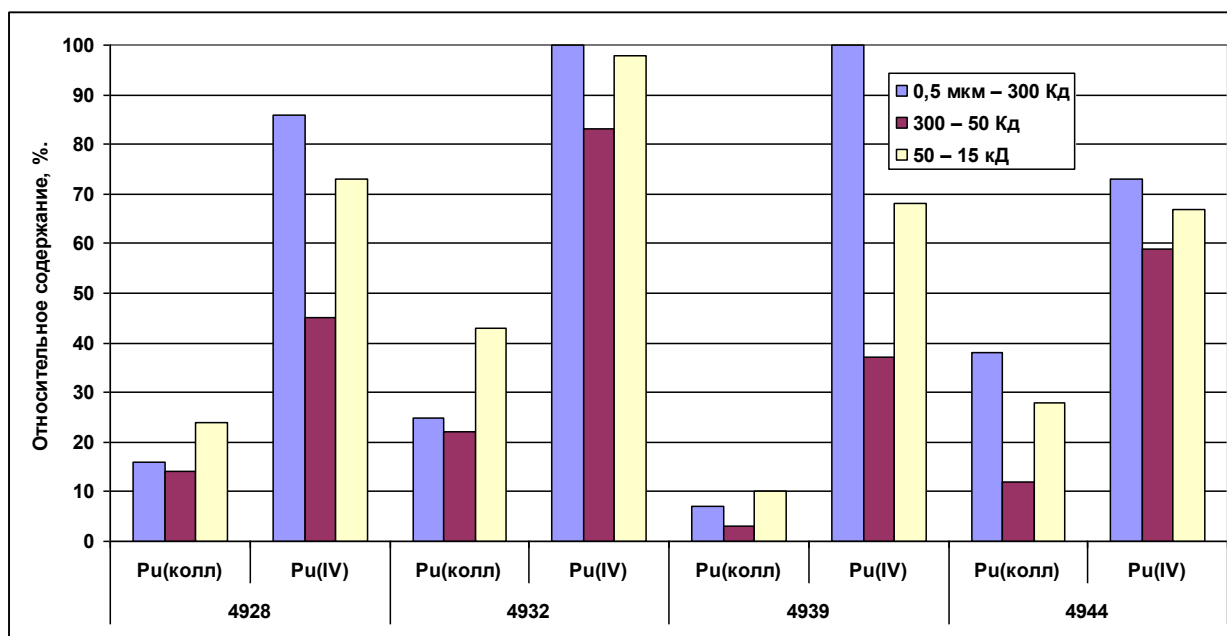


Рис. 45. Относительное содержание плутония в коллоидных фракциях и относительное содержание Pu(IV) в этих фракциях

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

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.

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 на первом этапе работ критический анализ литературы показал, что в целом первоначальные формы радионуклидов быстро изменяются под воздействием

биогеохимических процессов. Поэтому 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.
- Исследование сорбции и коллоидообразования радионуклидов в природных водах.
- Создание банка данных по коэффициентам накопления актинидов различными объектами биогеоценозов.
- Разработка в соответствии с полученными данными способов повышения чувствительности мембранно-люминесцентного определения актинидов.

Объектами исследования были:

1. Поверхностная травянистая растительность, 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 ОАО СХК.
4. Вода, взвеси, донные отложения, пойменные почвы и водная растительность реки Енисей вблизи ФГУП ГХК.
5. Биота и почвы ВУРС вблизи ФГУП ПО Маяк и почвы ВУРС.
6. Биота, почвы и поверхностные воды зоны воздействия аварийного подземного ядерного взрыва (ПЯВ) «Кратон-3», Якутия.
7. Морская вода и взвешенное вещество Белого и Карского морей.

Установлено, что максимальные коэффициенты сорбции почвами и донными отложениями наблюдаются для плутония (до 10^3). Однако если в богатых гумусом донных отложениях и почвах величина этого коэффициента для плутония достигает $10^5 - 10^6$, то для сильно опесчаненных грунтов Кирово-Чепецкого химического комбината только 10^3 . Еще меньше сорбируют радионуклиды вмещающие породы зоны Карачаевского ореола загрязнения (ФГУП ПО Маяк). Установлено, что значения K_s для вмещающих пород не превышают 1,0 и значительно меньше соответствующих величин для почв и донных отложений водоемов. Поэтому латеральная миграция с грунтовыми водами для указанной зоны носит чрезвычайно интенсивный характер. Особенно это касается радионуклидов стронция и нептуния, для которых значения K_s минимальны.

Установлено, что для всех исследуемых зон значение K_s для плутония не коррелирует с содержанием химических элементов, однако линейно возрастает с

увеличением содержания органического углерода в отложениях. Причем величина достоверности аппроксимации составляет 0,998.

Для загрязненных грунтов КЧХК в ряду возрастания средней величины коэффициента сорбции радионуклиды можно расположить в следующем порядке:



Для описания процессов миграции в этой зоне нами была разработана модель квазистационарной диффузии от поверхности в бесконечность при стационарном поступлении радионуклидов [137].

Величины K_n травянистой растительностью для различных радионуклидов возрастают в следующем ряду:



Полученный ряд достаточно хорошо согласуется с литературными данными. Накопление ураном и торием наиболее слабое, но превышает значения коэффициентов накопления для природных зон не загрязненных техногенными радионуклидами.

Коэффициенты накопления травянистой растительностью радиоцезия составляют по литературным данным 1-2. В исследуемой нами экосистеме КЧХК среднее значение K_n для радиоцезия составило 16,9. Для плутония это значение еще выше – 23,0.

Таким образом установлено, что снижение поглощающей способности почв для водонасыщенных горизонтов приводит к повышенной аккумуляции радионуклидов травянистой растительностью.

Для сравнения значения коэффициентов накопления практически всех радионуклидов в лесной подстилке зоны ВУРС меньше или равны 1,0. Это объясняется тем, что основным депо радионуклидов в лесных биогеоценозах является верхний горизонт почвы. 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. Для почв ВУРС глубина проникновения радионуклидов не превышает 15 см. В образцах береговой растительности Оз. Кызыл-Таш содержание радионуклидов выше, чем в лесной подстилке. Особенно это касается нептуния, для которого значения K_n составили около 100, что однако несколько ниже, по сравнению с водной растительностью реки Енисей. Содержание нептуния в биоте, загрязненной в природной среде, а не в лабораторных условиях, измерены впервые.

Коэффициенты накопления радионуклидов водной растительностью этой реки вблизи ГХК зависят как от природы растительности, так и типа почвы. В ряду

радионуклидов средняя величина K_n возрастает в следующем порядке: $^{238}\text{U} < ^{239}\text{Pu} < ^{241}\text{Am} < ^{237}\text{Np}$. Для плутония эта величина составляет 0,1; для америция – 2,0 и для нептуния – 10^3 . Высокие значения коэффициентов накопления нептуния водной растительностью ранее наблюдали в лабораторных экспериментах. По видимому, процессы накопления нептуния биотой, как наиболее растворимого актинида, определяются его связями с низкомолекулярным органическим веществом, что было подтверждено методом селективного выщелачивания и проведением фракционирования органического вещества.

Обращает на себя внимание относительно низкие значения K_s для изотопов плутония зоны воздействия аварийного подземного ядерного взрыва (ПЯВ) «Кратон-3», Якутия. В реке Енисей коэффициенты сорбции плутония донными отложениями на один – два порядка выше. Но и остальные радионуклиды исследуемой экосистемы также имеют невысокие коэффициенты сорбции. Возможно это объясняется аномально низкими температурами криогенной зоны.

Впервые установлено, что растительность указанной зоны тем не менее в значительной степени накапливает все радионуклиды. Особенно это относится к образцам мха и лишайника. Содержание радионуклидов стронция и плутония в образце мха выше, чем в почве. Коэффициенты накопления радионуклидов растительностью зоны ВУРС, за исключением нептуния, ниже. Однако и в данном случае нептуний обнаружен не только в стеблях и листьях растений, но и в ягодах, мясе и костях зайцев.

В настоящей работе впервые были исследовано распределение радионуклидов по почвенным профилям криогенной зоны. Установлено, что модельные представления о квазистационарной диффузии от поверхности в бесконечность при одновременном загрязнении не для всех радионуклидов хорошо согласуются с экспериментом. Так для радиостронция величина достоверности аппроксимации зависимости логарифма содержания от квадрата глубины проникновения высока - 0,99. Для нептуния быстрая составляющая характеризуется удовлетворительной величиной достоверности аппроксимации – 0,97 и очень хорошей для медленной составляющей. Для радиоцезия можно говорить только о тенденции приближения к модельным представлениям. Для плутония они практически не соблюдаются ($R=0,71$). Наиболее высокая динамика миграции наблюдается для радиостронция. Для нептуния скорость миграции на глубинах более 8 см резко снижается. Такой же эффект наблюдается и для радиоцезия.

Для загрязненных природных вод значительным фактором влияющим на миграцию радионуклидов, кроме сорбции, является коллоидообразование.

Установлено, что в грунтовых водах Карачаевского ореола загрязнения, характеризующимся слабокислотными и окислительными свойствами, актиниды находятся преимущественно в мелких фракциях коллоидов (5-50 нм) и фильтрате. Массовая доля включения в коллоидный материал уменьшается в ряду: $Pu > Zr \geq Am \geq Eu \gg Np > U$. По мере разбавления техногенных вод доля урана и плутония, связанных с коллоидным веществом увеличивается, причем уран накапливается во фракции 3-10 нм частиц, а плутоний – во фракции частиц крупнее 10 нм.

Спектральными методами показано, что в ближней к Карачаю загрязненной зоне образование и осаждение ферригидрита ($5Fe_2O_3 \cdot 9H_2O$) и гетита ($FeOOH$) по мере разбавления техногенных веществ природными водами является основным механизмом задержки плутония и ТПЭ.

Для указанных грунтовых вод было проведено фракционирование по окислительным формам плутония и впервые показана связь между параметрами pH, Eh, $[CO_3]$ и степенью окисления.

В других природных водах – пластах-коллекторах радиоактивных отходов ОАО СХК, характеризующихся восстановительными условиями радионуклиды (включая уран и нептуний – наиболее слабосорбируемые на коллоидных частицах актиниды) удерживаются на фильтрах достаточно эффективно. Это свидетельствует о том, что они связаны с крупными коллоидными частицами. В то же время поведение природного урана (С-15) сильно отличается от техногенного и природный уран в незагрязненной пластовой воде находится практически в истинно-растворимом состоянии.

Как показали микроскопические исследования основную часть коллоидных частиц из загрязненной зоны составляет оксид или оксигидроксид железа. Среди других фаз идентифицированы глины, карбонат кальция (кальцит), барит (сульфат бария) и сульфат свинца.

В восстановительных условиях пластовых вод теоретически не только плутоний, но и нептуний и в значительной степени уран, могут существовать в форме $An(IV)$. Но восстановление актинидов должно происходить или в источнике поступления, или в ближайшей зоне разбавления закачиваемых пульп, для которой характерно высокое содержание нитритов и, собственно, урана. Нахождение урана и нептуния в низших состояниях окисления косвенно подтверждается данными по фильтрации вод из которых видно, что распределение урана, нептуния и плутония по коллоидным фракциям практически одинаковое. Более того в образцах коллоидных частиц нами были обнаружены истинные коллоиды урана. Их существование доказывало элементное

распределение по коллоидному веществу на фильтре, полученное методом масс-спектрометрии вторичных ионов и альфа-трековой радиографии.

Для морских вод установлено, что во взвешенном веществе всех проб преобладает плутоний (IV). Плутоний (V) в заметных количествах обнаружен только во фракции средних по размеру коллоидных частиц, возможно относящимся к растворенным гуминовым веществам. Плутоний (VI) практически везде обнаружен в пределах ошибки определения. Максимальное содержание плутония в высших состояниях окисления найдено в пробе из эстуарной зоны. Это свидетельствует о том, что высшие валентные формы плутония более устойчивы в речных водах и в море вносятся стоком речных вод.

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.

Объяснить установленные закономерности перераспределения радионуклидов в различных биогеоценозах позволили полученные данные по формам нахождения радионуклидов.

Сравнение характера распределения Am и Pu по фракциям гумусовых кислот показывает, что во всех случаях и в пойменной почве и в донных отложениях америций связан с более растворимыми соединениями, чем плутоний.

Найдено, что для всех типов почв содержание различных по своим химическим свойствам радионуклидов в водорастворимой и обменной формах, являющихся наиболее мобильными и определяющими миграционную подвижность химических элементов, уменьшается в ряду: $^{237}\text{Np} > ^{241}\text{Am} \geq ^{239}\text{Pu}$. В труднорастворимых формах (кислоторастворимая и остаток) независимо от типа почв содержание радионуклидов изменяется в ином порядке: $^{239}\text{Pu} > ^{241}\text{Am} > ^{237}\text{Np}$.

С другой стороны, тип почвы существенно влияет на распределение радионуклидов по формам их нахождения. Так, содержание ^{237}Np в водорастворимой форме уменьшается в зависимости от увеличения содержания Сорг в образцах: супесчаная почва > дерново-подзолистая > чернозем.

Особенности поведения радионуклидов в загрязненных почвах различного генезиса необходимо учитывать при разработке реабилитационных мероприятий на территориях вокруг предприятий ЯТЦ.

По результатам радиохимического анализа объектов окружающей среды создан банк данных (файл прилагается).

При проведении анализа природных образцов на содержание нептуния был разработан и опробован новый вариант люминесцентного фотометра ЛФФ-5 (статья с описанием прилагаются).

По результатам проведенной НИР разработаны рекомендации «Разработка способов создания инженерных противомиграционных барьеров для плутония на основе применения прогнозной модели его миграции в почвах» по возможности их использования в реальном секторе экономики. Рекомендации согласованы в ФГУП «НПО «Радиевый институт им. В.Г. Хлопина».

Экономический эффект от внедрения полученных разработок, также как и других работ, направленных на решение актуальных экологических проблем, не поддается строгой количественной оценке. Главный результат проведенных работ связан с социальным эффектом и определяется повышением безопасности объектов атомной энергетики и обеспечением надёжного контроля радиационной обстановки в зонах их воздействия.

В рамках проекта проводится сотрудничество с различными организациям, работающими в данном направлении: Химический факультет МГУ им. М.В. Ломоносова, ФГУП НПО «Радиевый институт им. В.Г. Хлопина», ФГУП Филиал института биофизики (г. Озерск) и другие.

Полученные по проекту результаты включены в образовательные курсы "Актиниды в окружающей среде" на кафедре радиохимии МГУ им. М.В. Ломоносова.

Закреплены следующие специалисты:

Рылеева Валерия Сергеевна, 09.06.1990 года рождения, зачислена в очную аспирантуру ГЕОХИ РАН;

Абрамова Анна Владимировна, 23.11.1989 года рождения, зачислена в очную аспирантуру ГЕОХИ РАН;

Горбачева Светлана Юрьевна, 02.06.1993 года рождения, принята на работу в ГЕОХИ РАН на 0,5 ставки.

Трое студентов Химического факультета МГУ им. М.В. Ломоносова Горбачева С.Ю., Бабешкин К.А. и Лапин А. В. выполнили курсовые работы по теме проекта.

ИСПОЛЬЗОВАННЫЕ ЛИТЕРАТУРНЫЕ ИСТОЧНИКИ

- 1 Новиков Ю.П., Павлоцкая Ф.И. Нептуний в окружающей среде и методы его определения. //Радиохимия. 1989. Т. №6. С.134-139.
- 2 Крышев И.И., Рязанцев Е.П. Экологическая безопасность ядерно-энергетического комплекса России. М.: Издат. 2000, 383С.
- 3 Павлоцкая Ф.И. Миграция радиоактивных продуктов глобальных выпадений в почвах. М.: Атомиздат, 1974., 215 С.
- 4 Novikov A.P. Migration of Radionuclides in the Environment. // Geochemistry International, 2010. V.48. N13. P. 1-125.
- 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 ^{60}Co 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 V.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 $^{239,240}\text{Pu}$ 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. $^{239,240}\text{Pu}$ 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 ^{90}Sr 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: Гидрометеиздат, 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., Черкезьян 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., Nitche 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 радиогеохимии 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 радиозэкологии и пограничных дисциплин». Екатеринбург. 7, 97-118 (2005).
- 78 Смагин А.И. Радиозэкологические 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.Енисея. // Метеорология и гидрология. 2, 84-91 (1997).
- 82 Кузнецов Ю.В., Легин В.К., Шишлов А.Е. Изучение поведения $^{239,240}\text{Pu}$ и ^{137}Cs 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. Радиозэкология пресноводных биосистем. (Свердловск: УрО АН СССР. 1988)
- 88 Болсуновский А.Я., Косиненко С.В. Экспериментальные исследования интенсивности поглощения ^{32}P пробами альгобактериального сообщества реки Енисей. //Радиационная биология. Радиозэкология. 41 (1), 119-123 (2001).
- 89 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).
- 90 Гусев Б.А., Епимахов Б.Н., Ефимов А.А. и др. Комплексное решение проблем радиозэкологической 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).
- 103 Ковалевский, А.Л. Биогеохимия растений / А.Л. Ковалевский – Новосибирск: Наука, 1991. – 294 с.
- 104 Тяжелые естественные радионуклиды в биосфере: Миграция и биологическое действие на популяции и биогеоценозы / Р.М. Алексахин, Н.П. Архипов, Р.М. Бархударов и др. М.: Наука, 1990.- 368с.
- 105 Дрожко Е.Г., Иванов И.А., Алексахин А.И. и др. Современное состояние подземной гидросферы в районе ПО «Маяк» // Вопросы радиационной безопасности. 1996. №1. С.11-19
- 106 Кац Дж., Сиборг Г., Морсс Л., Химия актинидов, Москва, «Мир», 1991, Т.1. С.522.
- 107 Costanzo D.A., Biggers R.E., Bell J.T., // J.Inorg.Nucl. Chem., 1973, V.34, P.609-622
- 108 Ichikawa F., Sato T. // J.Inorg.Nucl. Chem., 1984, V.84, P.269-275
- 109 Triay I.R., Hobart D.E., et al // Radiochim. Acta, 1991, V.52-53, P.127-131
- 110 Kraus K.A. Hydrolytic Behavior of Heavy Element. Proc. Intern. Conf. On Peaceful Using of Atomic Energy, Geneva, Switzerland, 1956, 7, P.245-257

-
- 111 Hobart, D.E. Actinides in the Environment. Proc. Foundation Conf. on Chem. Research, Houston, Texas, October 22-23, 1990.
- 112 Alexander P. Novikov, Stepan N. Kalmykov, Satoshi Utsunomiya, Rodney C. Ewing, François Horreard, Alex Merkulov, Sue B. Clark, Vladimir V. Tkachev, Boris F. Myasoedov Science 27 October 2006:Vol. 314. no. 5799, pp. 638 – 641
- 113 Yamamoto M., Yamaushi Y., Komura K. et al.// J. Radioanal. Nucl. Chem., Letters. 1991. V.154. N5. P.299-308
- 114 Matkar V.M., Narayanani U., Bhat T.S. et al.// J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles. 1992. V.156. N11. P.119-127.
- 115 Baes C.F., Mesner R.E., The hydrolysis of cations. Chapter 9, John Wiley and Sons, NY, 1976
- 116 Giblett F.G.R., Inorganic Polymer Chemistry, Chapter 3, Butter-worths, London 1963
- 117 Ilard B., Kipatsi H., Liljenzin J.O. // J. Inorg. Nucl. Chem., 1980,V.42. P.1015-1027.
- 118 Kim J.I. Nanoscopic speciation of aquatic actinide ions by lazer spectrtoscopy. Proceedings of Speciation Work Shop, October 25-28, 1999, Tokai-Mura, Japan, P.39-47.
- 119 Myasoedov B.F., Novikov A.P. Radiochemical procedures for speciation of actinides in the environment. Methodology and data obtained in contaminated by radionuclides regions of Russia. Proceedings of Speciation Work Shop, October 25-28, 1999, Tokai-Mura, Japan, P.3-21.
- 120 Saito A., Choppin, G.R., // Anal. Chem., 1983, V.55, P. 2454-2560.
- 121 Molochnikova N.M., Scherbinina N.I., Myasoedova G.V., Myasoedov B.F. // Радиохимия, 1997, Т.39, С.280-291.
- 122 Чоппин Дж.Р., Бонд А.Ч. // Аналитическая химия, 1996, Т.51, С.1240-12-50.
- 123 Novikov, A.P., Shkinev, V.M., Spivakov, B.Ya., et al, // Radiochemica Acta. 1989, V.45, P.35-41.
- 124 Sollner K., Shean G. Liquid ion exchange membranes of extreme selectivity and high permeability for anion. //J.Amer.Chem.Soc.-1964.-V.86-P.1901-1902.
- 125 Geckeler K.E., Bayer E., Spivakov B.Ya. et al, Liquid-phase polymer-based retention, a new method for separation and preconcentration of elements // Analytica Chimica Acta, 1986. V.189. P.285-292.
- 126 Плутоний. Под редакцией О.Вика, М.: Атомиздат, 1971, С.138.
- 127 Павлоцкая Ф.И., Горяченкова Т.А. Распределение плутония по компонентам природных органических веществ и их роль в его миграции в почвах. // Радиохимия. 1987. Т. 29. N 1. С.99-106.
- 128 Павлоцкая Ф.И. Геохимия искусственных радионуклидов. // Современные проблемы радиогеохимии и космохимии. М.: Наука, 1993. С.148-179.
- 129 Matkar V.M., Narayanan U., bhat I.S. et al. Chemical Association of plutonium in sediments of the Trombay coastal Environment. // J.Radioanal.Nucl.Chem., Articles. 1992. V.156. N 1. P.119-127.
- 130 Легин Е.К., Суглобов Д. Н., Трифонов Ю.И., Хохлов М. Л., Легина Е.Е., Кузнецов Ю.В. Радиохимия. 2001, Т. 43, N. 2, С. 179-184.
- 131 Легин Е.К., Трифонов Ю.И., Хохлов М.Л., Суглобов Д.Н. Радиохимия. 1998, Т. 40, № 2, С. 183-188.

132 Легин Е.К., Трифонов Ю.И., Хохлов М.Л., Суглобов Д.Н., Радиохимия. 2000. Т. 42, N. 3, С. 260-263.

133 Алекин О.А. Основы гидрохимии. Ленинград: Гидрометеиздат, 1970.

134 Myasoedov V.F., Drozko E.G., Up-to-date radioecological situation around the 'Mayak' nuclear facility, J. of Alloys and Compounds. 1998. V. 271/273, P.216-220.

135 Алексахин Р.М., Булдаков Л.А., Губанов В.А., Дрожко Е.Г. Радиационные аварии. М. Изд-во АТ. 2001. 124С.

136 Горяченкова Т.А., Казинская И.Е., Кузовкина Е.В. и др.//Радиохимия. 2009. Т.51. N 2. С. 178-186.

137 А. П. Новиков, В. В. Ткачев, А. А. Шутов, Т. А. Горяченкова, И. Е. Казинская, Е. В. Кузовкина, Е. А. Лавринович Модель миграции плутония в почвах. // Геохимия, 2013, № 6, с. 570-576.