

На правах рукописи



Чугуевский Алексей Викторович

**ФОРМЫ НАХОЖДЕНИЯ И ПОДВИЖНОСТЬ
ТЕХНОГЕННЫХ ГАММА-ИЗЛУЧАЮЩИХ
РАДИОНУКЛИДОВ В ПОЙМЕ РЕКИ ЕНИСЕЙ (БЛИЖНЯЯ
ЗОНА ВЛИЯНИЯ КРАСНОЯРСКОГО ГХК)**

Специальность 25.00.09 — геохимия, геохимические методы
поисков полезных ископаемых

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени
кандидата геолого-минералогических наук

Новосибирск — 2019

Работа выполнена в Федеральном государственном бюджетном учреждении науки Институте геологии и минералогии имени В.С. Соболева Сибирского отделения Российской академии наук (ИГМ СО РАН).

Научный руководитель:

Мельгунов Михаил Сергеевич, кандидат геолого-минералогических наук, старший научный сотрудник Институт геологии и минералогии им. В.С. Соболева СО РАН

Официальные оппоненты:

Рихванов Леонид Петрович, доктор геолого-минералогических наук, профессор, Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего образования «Национальный исследовательский Томский политехнический университет»

Юркевич Наталия Викторовна, кандидат геолого-минералогических наук, Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Институт нефтегазовой геологии и геофизики имени А.А.Трофимука СО РАН

Ведущая организация:

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Институт геохимии им. А.П. Виноградова СО РАН

Защита состоится 17 декабря 2019 г. в 14-00 на заседании диссертационного совета Д 003.067.02, созданного на базе Федерального государственного бюджетного учреждения науки Институте геологии и минералогии имени В.С. Соболева Сибирского отделения Российской академии наук, в конференц-зале.

Адрес: 630090, г. Новосибирск, проспект академика Коптюга, 3.

Факс: (383) 333-21-30, e-mail: gaskova@igm.nsc.ru

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке ИГМ СО РАН и на сайте <http://www.igm.nsc.ru> в разделе «Образование»

Автореферат разослан 29 октября 2019 г.

Ученый секретарь
диссертационного совета
доктор геол.-мин. наук



О.Л. Гаскова

Общая характеристика работы

Актуальность работы. Вторая половина XX столетия ознаменовалась поступлением в окружающую среду огромного количества техногенных радионуклидов (ТРН). Они появились в биосфере как результат создания, испытаний и применения ядерного оружия, аварий на АЭС и других объектах ядерного производства. Значительному загрязнению подверглись крупные речные системы Сибири (Обь и Енисей), в бассейнах которых находятся все три отечественных комбината по переработке плутония, одним из которых является Красноярский Горно-химический комбинат (ГХК, г. Железногорск).

В течение более 30 лет комбинат был источником радиоактивного загрязнения поймы реки Енисей такими долгоживущими техногенными радионуклидами, как ^{152}Eu , ^{154}Eu , ^{155}Eu , ^{137}Cs , ^{60}Co , ^{241}Am , ^{90}Sr и изотопы плутония (Носов и др., 1993, 1997; Тимофеев, 1995; Кузнецов и др., 1994; Болсуновский, 2002, Сухоруков и др., 2004 и др.). ^{137}Cs и ^{90}Sr фиксируются в донных отложениях вплоть до Карского моря (Vakulovsky et al., 1993, Semizhon et al., 2010). В воде и водных растениях, наряду с перечисленными долгоживущими изотопами, до 2010 года (остановки последнего прамоточного реактора) фиксировались короткоживущие $^{141,144}\text{Ce}$, ^{51}Cr , ^{54}Mn , ^{58}Co , ^{65}Zn и др. (Болсуновский и др., 2002, 2007, Зотина, 2009).

Хотя сброс радиоактивных отходов в последние полтора десятилетия существенно (в сотни – тысячи раз) сократился, в отстойниках, расположенных на территории комбината и в аллювиальных отложениях поймы (особенно в ближней зоне влияния ГХК, представляющей собой участок поймы протяженностью ≈ 18 км от места сброса радиоактивных отходов) уже накоплены значительные количества ТРН. Особый интерес вызывает возможность вовлечения их во вторичную миграцию.

В работах, опубликованных в 90-х годах, рассматривается, главным образом, степень загрязненности поймы, характер распределения загрязнения и изотопный состав ТРН в аллювиальных отложениях. С начала 2000-х более пристальное внимание начинает уделяться определению форм нахождения радионуклидов в аллювиальных отложениях и изучению

вторичного перераспределения депонированных ТРН (Pavlotskaya et al., 2003, Сухоруков и др.2004, Бондарева, Болсуновский, 2008, Вакуловский и др., 2008, Bondareva, 2012, Bolsunovsky, Melgunov, 2014, Korobova et al., 2016, Линник, 2018). Показано, что большая часть ТРН приурочена к неподвижным и слабо-подвижным формам нахождения, что препятствует их переходу в водные растворы.

Вместе с тем, остается ряд нерешенных вопросов. Так, в частности, по данным некоторых исследователей (Vakulovskii et al., 2008), в пробах воды Енисея даже в дальней зоне влияния ГХК, присутствует ^{137}Cs . Этот факт может быть обусловлен либо продолжающимся сбросом ГХК, либо миграцией ^{137}Cs из аллювиальных отложений. Еще одним источником его в воде может быть растительность, произрастающая на загрязненной территории. В сходных по проблематике регионах (территории, подвергшиеся загрязнению в результате аварии на ЧАЭС, зона влияния комбината «Маяк») отмечается значительное накопление ^{137}Cs в высших наземных растениях (Malek et al., 2002, Korobova et al., 2008, Pozolotina et al., 2010). В то же время, в зоне влияния ГХК работы по изучению растений береговой зоны, которые подвергаются затоплению во время паводков, к настоящему времени проведены недостаточно полно (Кропачева и др., 2011, Kropacheva et al., 2017).

Кроме того, в опубликованных ранее работах, при изучении миграционной способности ТРН, накопленных в пойме реки Енисей, рассматривается, главным образом, их рассеянная форма нахождения. Степень же вовлечения во вторичную миграцию ТРН, содержащихся в форме «горячих» частиц (ГЧ), к настоящему времени изучена слабо.

Объектом исследования является пойма реки Енисей в ближней зоне влияния Красноярского Горно-химического комбината (0 – 18 км от места поступления охлаждающих вод реакторов) (Рис.1).

Предметом исследования являются «горячие» частицы разрезы аллювиальных почв, , пробы растений прибрежной зоны.

Цель работы — оценка возможности вовлечения во вторичную миграцию техногенных радионуклидов, депонированных в аллювиальных отложениях поймы р. Енисей.



Рис.1. Ближняя зона влияния Красноярского ГХК.

Задачи исследования:

1. Выявить основные формы нахождения техногенных радионуклидов в загрязненных аллювиальных отложениях р. Енисей, включая химическую и физическую составляющие.
2. Определить природу и оценить вклад «горячих» частиц в общее загрязнение периодически затопляемых почв в ближней зоне влияния Красноярского ГХК.
3. Оценить вклад наземной растительности, произрастающей на загрязненной территории, в процессы вторичной миграции техногенных радионуклидов.

Научная новизна. Впервые для аллювиальных почв ближней зоны влияния Красноярского ГХК определено наличие водорастворимой формы ^{137}Cs . Установлен многостадийный характер вовлечения её во вторичное перераспределение.

В ходе лабораторных и натурных экспериментов изучена растворимость енисейских «горячих» частиц. Показано, что содержащиеся в них ТРН могут вовлекаться во вторичную миграцию в естественных условиях.

Изучено распределение ТРН в растительности, произрастающей на периодически затопляемых участках береговой линии в ближней зоне влияния Красноярского ГХК.

Впервые проведена количественная оценка вклада наземной растительности в процессы вторичного перераспределения радиоцезия.

Практическая значимость. Установлено регулярное поступление в экосистему реки Енисей «горячих» частиц. Несмотря на общее снижение уровня загрязнения, после выведения из эксплуатации прямоточных реакторов, вследствие перекрытия загрязненных участков поймы незагрязненным материалом, происходит постоянное поступление локальных источников ТРН в верхние горизонты аллювиальных почв и донных отложений, что указывает на необходимость проведения дополнительных мероприятий по изолированию накопленных на территории комбината радиоактивных отходов от окружающей среды.

Выявлены высокие уровни накопления ТРН наземной растительностью прибрежной полосы, которая широко используется местным населением в сельскохозяйственных целях.

Полученные результаты могут быть использованы соответствующими специалистами (медицинского, юридического профиля) при принятии решения о целесообразности ограничения хозяйственной деятельности на рассматриваемых участках поймы.

Фактический материал и методы исследования. В основу диссертационной работы положены материалы, полученные автором лично при проведении полевых работ в составе экспедиционных отрядов ИГМ СО РАН в период с 2003 по 2016 гг. В лабораторных условиях автором проведено определение содержания гамма-излучающих ТРН в почвах, донных отложениях и растительных пробах. Подготовлены колонки осадков для проведения лабораторных и натуральных экспериментов по растворению «горячих» частиц. Количество изученных проб: донных отложений — 80, почв — 110; проб растений — 55.

Определение радиоизотопного состава почв, донных отложений, «горячих» частиц, наземных растений проводилось автором лично различными вариантами метода полупроводниковой гамма-спектрометрии. Минеральный состав осадков исследован рентгенофазовым анализом на рентгеновском дифрактометре «ARL X'TRA». (лаборатория геологии кайнозоя, палеоклиматологии и минералогических индикаторов климата ИГМ СО РАН, аналитик — н.с. Мирошниченко Л.В.). Определение форм нахождения ТРН в

почвах и донных отложениях проводилось методами селективного выщелачивания и фракционного разделения (лаборатория геохимии радиоактивных элементов и экогеохимии ИГМ СО РАН, аналитик: вед. инж. Макарова И.В.). Изучение морфологии, фазового и химического состава «горячих» частиц проведен методом сканирующей электронной микроскопии (СЭМ) на электронном сканирующем микроскопе LEO1430VP с энерго-дисперсионным спектрометром «OXFORD» (лаборатория рентгеноспектральных методов анализа ИГМ СО РАН, аналитик: к.г.-м.н. Титов А.Т.).

Достоверность защищаемых положений обеспечена статистически значимым количеством проб почв, донных осадков, биологических объектов, современной методикой их отбора и пробоподготовки, применением комплекса высокочувствительных аналитических методов, в том числе по определению форм нахождения ТНР по общепринятой методике последовательной химической экстракции (Tessier et al., 1979), использованием современного программного обеспечения, глубиной проработки полученного материала и литературы по теме исследований, а также апробацией результатов исследований на российских и зарубежных конференциях.

Апробация полученных результатов. Основные положения диссертационной работы доложены и обсуждены на Международных и Всероссийских конференциях, Представленная работа выполнялась в лаборатории геохимии благородных и редких элементов и экогеохимии ИГМ СО РАН в соответствии с планами научно-исследовательских работ в рамках государственного задания – проект № 0330-2016-0011. Результаты исследований по теме диссертаций были представлены на: Международной конференции «Радиоактивность после ядерных взрывов и аварий», (Москва, Россия, 5–6 декабря 2005 г.), IV Международной научно-практической конференции "Тяжелые металлы и радионуклиды в окружающей среде" (Семипалатинск, Казахстан, 19–21 октября 2006 г.), XI Международном научном симпозиуме имени академика М.А. Усова студентов и молодых учёных "Проблемы геологии и освоения недр", (Томск, Россия, 9–14 апреля 2007 г.), Международной конференции по радиэкологии и радиоактивности окружающей среды «ECORAD 2008», (Берген, Норвегия, 15–19 июня 2008 г.), V Международной научно-практической

конференции "Тяжелые металлы и радионуклиды в окружающей среде" (Семипалатинск, Казахстан, 15–18 октября 2008 г.), III Международной конференции «Радиоактивность и радиоактивные элементы в среде обитания человека», (Томск, Россия, 23–27 июня 2009 г.), 3-й Международной научной конференции «Геоэкологические проблемы современности». (Владимир, Россия, 23–25 сентября 2010 г.), Международной конференции по радиоэкологии и радиоактивности окружающей среды «Environment Nuclear Renaissance» (Гамильтон, Канада, 19–24 июня 2011 г.), V «Радиоактивность и радиоактивные элементы в среде обитания человека», (Томск, Россия, 13 – 16 сентября 2016 г.).

Основное содержание и научные положения диссертационной работы опубликованы в 9 статьях (из них 3 под первым авторством) в научных рецензируемых журналах, входящих в перечень ВАК, материалах и тезисах конференций.

Объем и структура работы. Диссертация объемом 149 страниц состоит из введения, обзора литературы (1 глава), объектов и методов исследования (2 глава), результатов и их обсуждения (главы 3, 4, 5), заключения, списка литературы. Работа включает 36 рисунков и 35 таблиц. Список литературы содержит 101 источник, из которых 31 на иностранных языках.

Во введении обоснована актуальность выбранной темы, определены цель и задачи исследований, формулируются положения, выносимые на защиту, обозначена представлена новизна и практическая значимость полученных результатов, показан личный вклад автора.

В первой главе представлен обзор литературных данных по современному состоянию изученности миграционной способности искусственных техногенных радионуклидов, попавших в окружающую среду в результате деятельности предприятий ядерно-топливного цикла.

Во второй главе дана геолого-геоморфологическая и гидрологическая характеристика района проведения работ. Описаны пробоотбор, полевая и лабораторная пробоподготовка, применяемые аналитические методы (различные варианты полупроводниковой гамма-спектрометрии, методики определения форм нахождения техногенных радионуклидов, рентгенофазового анализа и электронной микроскопии).

В третьей главе изложены результаты исследований «горячих» частиц, обнаруженных в ближней зоне влияния Красноярского ГХК (морфология, радиоизотопный и элементный состав)

В четвертой главе представлен минеральный состав донных отложений, показано содержание в них техногенных радионуклидов и распределение их по химическим фракциям. Описаны лабораторный и натурный эксперименты по растворению «горячих» частиц.

Пятая глава посвящена исследованию накопления техногенных радионуклидов растениями береговой зоны в зависимости от гидродинамического режима. Проведена количественная оценка вклада наземной растительности во вторичное перераспределение радионуклидов.

В заключении кратко изложены основные результаты исследований

Личный вклад. Диссертационная работа является самостоятельно выполненным научным исследованием. Автор лично участвовал в полевых работах в составе экспедиционных отрядов ИГМ СО РАН в период с 2003 по 2016 гг. Автор самостоятельно провел пробоподготовку полевого материала, натурные и лабораторные эксперименты. Автором проведена статистическая обработка данных, дана интерпретация полученных результатов и сформулированы защищаемые положения. Диссертационная работа является самостоятельно выполненным научным исследованием.

Благодарности. Автор выражает признательность научному руководителю к.г.-м.н. М.С. Мельгунову за методическую помощь и ценные советы на всем протяжении выполнения работы. Искренняя благодарность д.г.-м.н. Г.А. Леоновой за обсуждение результатов подготовленной диссертации и рецензирование статей, подготовленных в 2018 г., к.г.-м.н. М.Ю. Кропачевой, к.г.-м.н. Ю.С. Восель и вед. инж. И.В. Макаровой за сотрудничество в исследовании форм нахождения химических элементов в почвах и донных отложениях, н.с. Л.В. Мирошниченко за выполнение рентгенофазового анализа по исследованию минерального состава донных отложений. Автор выражает искреннюю признательность

всем коллегам лаборатории за поддержку и обсуждение результатов подготовленной диссертационной работы.

Защищаемые положения

Первое защищаемое положение. «Горячие» частицы являются одной из основных форм нахождения техногенных радионуклидов в загрязненных аллювиальных почвах реки Енисей, на отдельных участках поймы в ближней зоне влияния Красноярского ГХК их распространенность может достигать нескольких сотен частиц на км². По составу гамма-излучающих радионуклидов «горячие» частицы делятся на два основных типа: моноизотопные (¹³⁷Cs либо ⁶⁰Co), и полиизотопные (¹³⁷Cs, ¹³⁴Cs, ¹⁵⁴Eu, ⁶⁰Co, ²⁴¹Am). Отсутствие активационного изотопа ¹⁵²Eu, и наличие включений, имеющих урановую матрицу, указывает на их топливное происхождение.

Наряду с рассеянной формой, значительная часть радионуклидов, поступивших в окружающую среду, связана с «горячими» частицами. К «горячим» частицам относят «... частицы, имеющие микрометровые и субмикрометровые размеры, обладающие на несколько порядков большей активностью, чем средняя активность почвы тех же размеров» (Быховский, Зараев, 1974). По определению МАГАТЭ (Salbu, 2007) радиоактивные частицы в окружающей среде определяются как локализованные агрегаты радиоактивных атомов, которые дают повышение неоднородности распределения радионуклидов, существенно отличную от таковой в фоновой матрице. Как правило, к частицам относят образования, превышающие по размерам 0.45 мкм (Salbu, 2007).

История изучения «горячих» частиц, связанных с деятельностью Красноярского ГХК, начинается с 1994 года, когда они впервые были обнаружены В.А. Тимофеевым в пойме реки Енисей в районе г. Енисейска (330 км от места сброса) (Тимофеев, 1995). Гамма-спектрометрический анализ найденных им частиц показал наличие большого числа радионуклидов как с коротким периодом полураспада (⁵¹Cr, ⁵⁴Mn, ⁵⁹Fe, изотопы рутения и церия, и др.), так и долгоживущие – ¹³⁷Cs и изотопы европия.

Впоследствии, в 1997–2011 гг., разными исследователями в ближней зоне влияния ГХК «горячие» частицы обнаруживались ежегодно (Болсуновский и др. 1997, 1999, 2000, 2001, 2011;

Сухоруков и др., 2004; Гритченко и др., 2001). По составу гамма-излучающих радионуклидов все «горячие» частицы, данные по которым приведены в указанных работах, можно условно разбить на три группы: моноизотопные – содержат только ^{137}Cs с активностью до 2×10^6 Бк на частицу; двухизотопные, содержащие ^{137}Cs и ^{134}Cs с активностями в диапазоне $2,7 \times 10^4 - 30 \times 10^6$ Бк и 10–7500 Бк соответственно; полиизотопные – ^{137}Cs ($4 \times 10^4 - 7 \times 10^5$ Бк), ^{134}Cs (180–1250 Бк), ^{154}Eu (1000–5000 Бк), ^{155}Eu (300–1400 Бк), ^{60}Co (20–30 Бк), ^{241}Am (20–75 Бк). Следует отметить доминирующую роль ^{137}Cs . Распространенность «горячих» частиц оценивалась в 60 – 70 частиц на км^2 (Болсуновский и др., 2000; Гритченко и др., 2001).

С 2003 года в ближней зоне влияния ГХК автором было отобрано свыше 100 ГЧ, причем часть из них на территории, где ранее частицы не обнаруживались. Изотопный состав некоторых из них представлен в табл. 1.

Табл. 1. Радионуклидный состав «горячих» частиц

Тип частицы	Активность, Бк на частицу						
	^{154}Eu	^{155}Eu	^{134}Cs	^{137}Cs	^{60}Co	^{241}Am	^{239}Np
Моно-цезиевые	8500000						
	2324000						
	242000						
	217000						
	135500						
Моно-кобальтовые	32300						
	46440						
Поли-изотопные	465	160	30	22170	10	1115	135
	3080	850	150	102600	88	90	
	170	50	10	14070	10	810	90
	1400	415	65	45100	50	35	
	65			49930	10		
	1305	620	40	36880	30		
	140			425900	105	1570	
	2040	590	110	79130	50		
	860	230	50	36180	35	20	
	230	125		29210	10	2650	190

Все частицы делятся на два типа моноизотопные, в которых фиксируется только ^{137}Cs или ^{60}Co и полиизотопные, в состав которых в разных входят, в разных соотношениях (^{137}Cs , ^{134}Cs , ^{154}Eu , ^{60}Co , ^{241}Am). При этом больше 95% их суммарной активности полиизотопных частиц связано с ^{137}Cs , активность которого может составлять до нескольких миллионов Бк на частицу. Активационный изотоп ^{152}Eu , доминирующий во вмещающих почвах ни в одной частице не фиксируется. Кобальтовые частицы обнаружены впервые за все время проведения исследований, активность ^{60}Co составила 32300 и 46440 Бк на частицу.

Некоторые частицы были исследованы методами сканирующей электронной микроскопии (рис. 2).

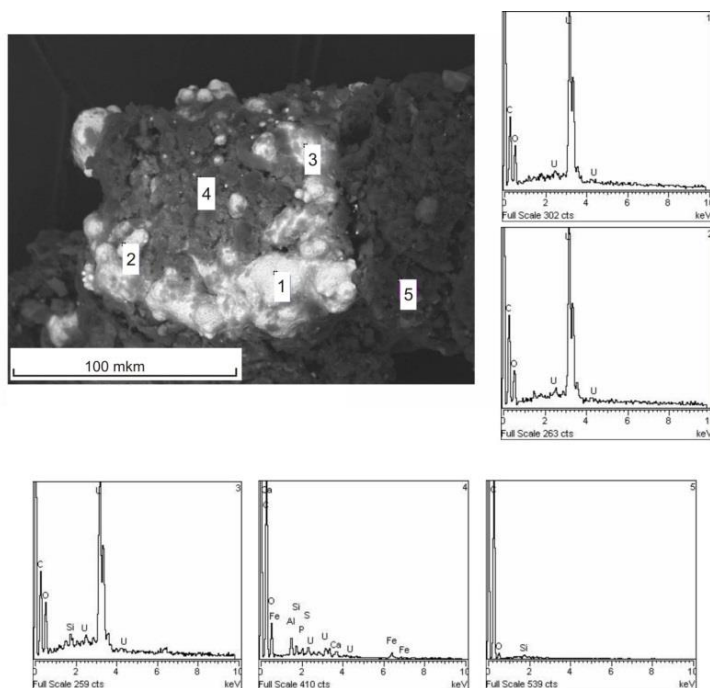


Рис. 2. Образ выделенной области «горячей» частицы, полученный в режиме обратно-рассеянных электронов и энерго-дисперсионные спектры, характеризующие элементный состав материала частицы в выбранных точках.

На рисунке представлена фотография одной из них, снятой в режиме обратно-рассеянных электронов, пространственного распределения и приведены энерго-дисперсионные спектры, характеризующие элементный состав материала частицы в выбранных точках.

В точках 1-3 (светлые участки) состав материала частицы определяется в основном ураном и представляет собой, по-видимому, окись урана. В точках 4 и 5 (темные области) основным элементом матрицы является углерод, что говорит о графитовой природе «горячей» частицы. (Табл. 2)

Табл.2 Элементный состав (в %) материала «горячей» частицы в выбранных точках по данным микронзондового анализа

	C	O	Al	Si	P	S	Ca	Fe	U	Total
1	5,22	19,62							75,16	100
2	7,43	17,53							75,04	100
3	7,72	22,41		1,04					68,83	100
4	65,34	25,33	1,52	0,59	0,52	0,67	0,66	1,65	3,73	100
5	88,23	11,4		0,37						100

Второе защищаемое положение. В естественных условиях под воздействием поровых вод происходит постепенное растворение «горячих» частиц, и входящие в их состав радионуклиды могут вовлекаться во вторичную миграцию. Полиизотопные частицы растворяются интенсивнее, чем моноцезиевые – за год в естественных условиях во вмещающую почву выносятся до 3,6 и 0,64% исходного количества ^{137}Cs соответственно. В высокоактивных почвах, загрязненных в результате растворения «горячих» частиц, установлена водорастворимая форма ^{137}Cs , вынос которой происходит многостадийно.

С учетом очень высокой активности «горячих» частиц важным вопросом является возможность вовлечения входящих в их состав радионуклидов во вторичную миграцию.

Для выявления возможности растворения енисейских «горячих» частиц в природных условиях был проведен лабораторный эксперимент с двумя частицами: цезиевой и полиизотопной. Частицы помещались в вертикально

расположенные колонки, заполненные образцами типичных енисейских аллювиальных почв, отобранных в фоновых районах. В течение 11 дней колонки подвергались воздействию дистиллированной воды. После этого их послойно разрезали, материал высушивался и анализировался на содержание ^{137}Cs . Результаты эксперимента представлены на рис. 3.

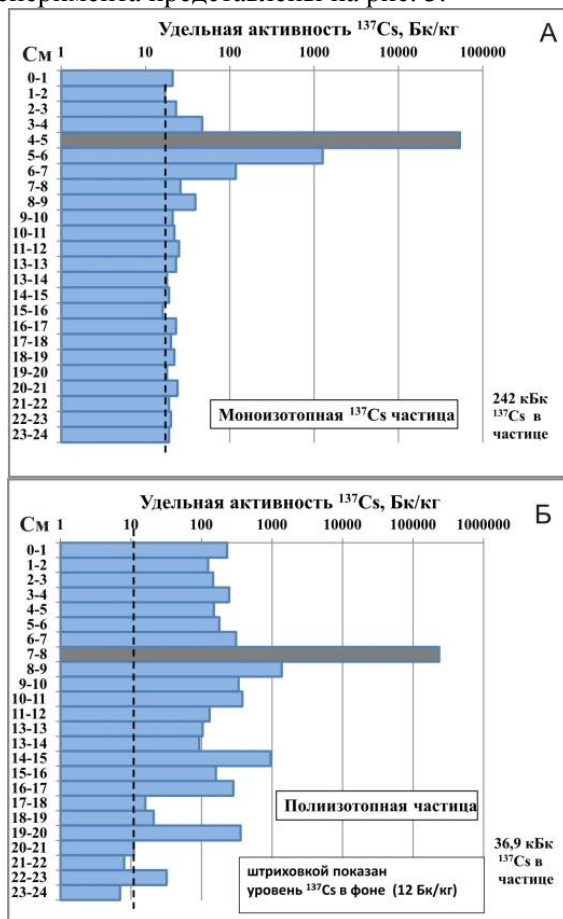


Рис. 3. Результаты лабораторного эксперимента по растворению «горячих» частиц (А — моноизотопная, Б - полиизотопная). Серым цветом выделены слои, в которые были помещены частицы.

Анализ результатов эксперимента показывает значительный вынос ^{137}Cs за пределы областей локализации частиц. В случае полиизотопной частицы вынос ^{137}Cs идет более активно, а его проникновение происходит на большую глубину. Наибольшие концентрации вынесенного из частиц ^{137}Cs приурочены к горизонтам, в которых находились «горячие» частицы (отмечены серым цветом). Значимые концентрации ^{137}Cs наблюдаются и в вышележащих горизонтах. Это указывает на наличие процессов диффузии ^{137}Cs от места локализации частиц в окружающий материал. Было рассчитано, что в ходе эксперимента из частиц было вынесено 0,02 и 0,43% содержащегося в них ^{137}Cs .

Для выявления возможности миграции сорбированного ^{137}Cs , со слоями, из которых извлекались частицы, был проведен эксперимент по фракционному разделению по методике (Tessier et al., 1979; Бондарева и др., 2005) (Рис.4). Было установлено, что в подвижных формах (обменная и карбонатная формы) содержится 40 и 50% ^{137}Cs , что значительно превышает содержание подвижных форм в донных отложениях ближней зоны влияния ГХК. (Сухоруков и др., 2004; Бондарева и др., 2005).

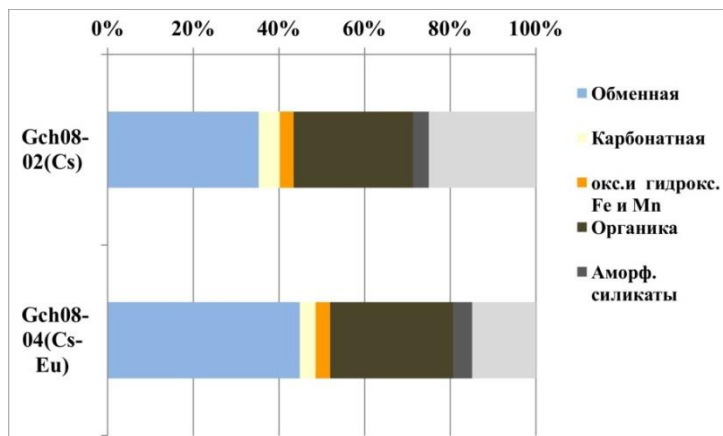


Рис. 4. Результаты эксперимента по фракционному разделению ^{137}Cs в загрязненном в ходе эксперимента материале.

После этого был проведен натурный эксперимент. Аналогичным образом подготовленные колонки с двумя моноцеиевыми и одной полиизотопной частицами помещались в почву на затопляемом участке левого берега реки Енисей, расположенном в фоновом районе. Две колонки располагались вертикально, одна – горизонтально. Через год колонки были извлечены, разрезаны, материал проанализирован. Результат представлен на рис.5.

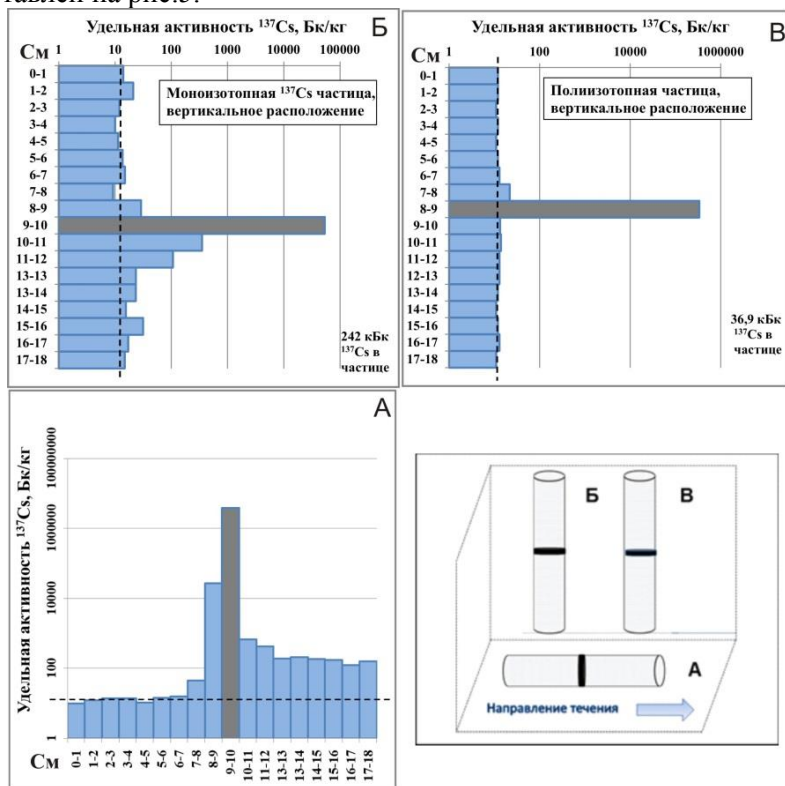


Рис. 5. Схема проведения и результаты натурального эксперимента по растворению «горячих» частиц. (А и Б – моноизотопные, В – полиизотопная). Серым цветом выделены слои, в которые были помещены частицы.

В колонке с моноцезиевой частицей (А), располагавшейся горизонтально, параллельно течению реки, ^{137}Cs прослеживается во всех горизонтах вниз по течению от слоя, из которого была извлечена ГЧ, в постепенно убывающих количествах. Также повышены его концентрации в двух вышерасположенных слоях. В колонке с моноцезиевой частицей, располагавшейся вертикально (Б), вынос ^{137}Cs происходит на меньшее расстояние. В колонке с полиизотопной частицей, расположенной вертикально (В), высокие содержания ^{137}Cs отмечены только в слое, в который была помещена частица. В ходе эксперимента из частиц было вынесено 0,64, 0,09, и 3,6% содержавшегося в них ^{137}Cs соответственно.

В ходе экспериментов было показано, что частицы, находясь в естественных условиях, подвергаются постепенному растворению, при этом полиизотопные частицы растворяются быстрее моноцезиевых. При более активном гидродинамическом режиме вынос ^{137}Cs происходит более интенсивно и на большее расстояние.

На правом берегу реки Енисей была отобрана высокоактивная почвенная проба. Первоначально ожидалось, что высокая активность ее обусловлена присутствием «горячей» частицы, однако лабораторные исследования показали, что активность распределена по пробе примерно равномерно и обусловлена только ^{137}Cs (от $5,53 \cdot 10^6$ Бк/кг во фракции >1 мм до $1,6 \cdot 10^7$ Бк/кг во фракции $<0,1$ мм). Было установлено наличие водорастворимой формы. Причем вынос ^{137}Cs в водный раствор происходит многостадийно – после последовательного высушивания и повторного воздействия водой на одну и ту же навеску, на каждом этапе выносятся около 0,5% ^{137}Cs .

Таким образом, рассмотренная высокоактивная проба представляет собой конечный вариант растворения ГЧ, длительное время находившейся в аллювиальных отложениях р. Енисей.

Третье защищаемое положение. Установлено, что из всех техногенных радионуклидов, депонированных в загрязненных аллювиальных почвах реки Енисей, в растениях береговой зоны в значимых количествах накапливается только ^{137}Cs . После завершения цикла развития растений, при попадании отмерших остатков в водную среду происходит быстрый вынос

(до 70% — в первые сутки) накопленного ^{137}Cs из внутренних клеточных структур растения. Показано, что для модельного участка поймы, расположенного в ближней зоне влияния Красноярского ГХК, ежегодно в повторную миграцию за счет жизнедеятельности наземных растений может вовлекаться от $3,8 \cdot 10^5$ до $1,87 \cdot 10^6$ Бк ^{137}Cs .

В сходных по проблематике регионах (территории, подвергшиеся загрязнению в результате аварии на ЧАЭС, зона влияния комбината «Маяк») отмечается значительное накопление ^{137}Cs в растениях (Korobova et al., 1998; Malek et al., 2002; Pozolotina et al., 2008). В зоне влияния ГХК, с начала 2000-х годов ведется интенсивное изучение накопления радионуклидов водными растениями и животными (Сухоруков и др., 2004; Болсуновский и др., 2007; Зотина, 2009; Зотина и др., 2014, 2016). Работы по изучению растений береговой зоны, которые подвергаются затоплению во время паводков, начались позже и в настоящее время находятся в стадии активного изучения (Кропачева и др., 2011, Kropacheva et al., 2017). Данная работа является частью комплексных исследований распределения радионуклидов в системе «субстрат – наземное растение». Задачей автора было изучение поведения накопленных радионуклидов после отмирания растений.

В табл. 3 показано содержание техногенных радионуклидов в пробах осоки, отобранной в 2004 году на участках, подвергшихся 10-дневному затоплению. В золе осоки присутствуют практически все изотопы, характерные для ближней зоны влияния ГХК, в соотношениях, типичных для данной территории (что обусловлено, по всей видимости, осаждением взвеси на всем теле растения). Интересно, что в двух пробах также присутствует короткоживущий изотоп ^{65}Zn .

В табл. 4 приведены результаты измерений проб осоки, отобранной в 2005 году на территории, не подвергавшейся затоплению. Из всех характерных для ближней зоны влияния ГХК ТРН в них в достоверных количествах присутствует только ^{137}Cs . Удельная активность его в золе более чем на порядок превышает значения, приведенные в табл. 3, и достигает 3700 Бк/кг.

В случаях, когда осока разделялась на отдельные части, было установлено увеличение удельной активности ^{137}Cs в ряду опад–старые листья–стебли–молодые листья–колосья.

Таким образом, при стабильном состоянии окружающей среды, происходит избирательное накопление ^{137}Cs осокой. При нарушении нормального цикла развития растения и его отмирании во время паводковых затоплений происходит вынос накопленного ^{137}Cs из их структуры. Такой вынос, по-видимому, происходит и при стоке дождевых и талых вод.

Табл.3 Содержание ТРН (Бк/кг) в осоке, собранной на территории, подвергшейся воздействию паводка (2004 г.)

Проба	зола				сухой вес			
	^{152}Eu	^{137}Cs	^{65}Zn	^{60}Co	^{152}Eu	^{137}Cs	^{65}Zn	^{60}Co
M1(стебли)	310	140	330	620	25	12	28	52
M2(стебли)	230	270		300	55	65		70
M2(опад)	170	195	75	290	45	55	20	80
M3(опад)	1450	790		1010	230	125		160

Табл. 4 Содержание ^{137}Cs (Бк/кг) в осоке, собранной на территории, не подвергавшейся воздействию паводка (2005 г.)

Проба	зола	сухой вес
E1 (стебли)	3740	140
E1 (молодые листья)	3010	270
E1 (старые листья)	1335	110
E2 (стебли)	1290	130
E2 (молодые листья)	802	270
E3 (опад)	750	75
E4 (стебли)	895	40
E4 (молодые листья)	438	46
E4 (старые листья)	274	32
E4 (колосья)	2680	88
E5 (стебли)	1468	68
E5 (молодые листья)	1613	127
E6 (опад)	193	51

Это говорит о возможности повторного вовлечения ^{137}Cs в миграционные процессы из аллювиальных почв за счет жизнедеятельности растений на загрязненных территориях. Возможно, именно этим отчасти обусловлена одна из основных особенностей распределения техногенных радионуклидов, как в целом для всего района влияния ГХК, так и для ближней его зоны: вклад ^{137}Cs в общий уровень загрязнения увеличивается по мере удаления от комбината. В то время как изотопы европия и ^{60}Co сравнительно прочно фиксируются в аллювиальных отложениях и не переходят в растительный материал, ^{137}Cs подвергается постоянному биогенному перераспределению.

После установления возможности вовлечения ^{137}Cs во вторичную миграцию за счет жизнедеятельности наземных растений, была проведена попытка количественной оценки этого процесса. На модельном участке поймы (коса Атамановская) был произведен расчет объема вырастающей в течение летнего сезона осоки и накапливаемого ею количества ^{137}Cs . Пробы осоки отбирались на двух участках, в голове и центральной части косы (табл. 5). Площадь косы составляет 14300 м^2 . Затоплению (во время весенне-летнего паводка) подвергается вся эта территория.

Табл. 5 Расчет количества ^{137}Cs , накапливаемого осокой в течение летнего сезона (модельный участок, коса Атамановская)

Проба	^{137}Cs , Бк/кг сухого веса	Масса на м^2 , кг	Масса по всей косе, кг	Активность по косе в сезон, Бк
1	682	0,192	2746	$1,87 \cdot 10^6$
2	254	0,229	3275	$3,8 \cdot 10^5$

По причине различия удельных активностей, разнятся и оценки для количеств накапливаемого ^{137}Cs . При пересчете на точку E286 она составляет – 390 тыс. Бк. При расчете по данным для точки E283 – достигает 1,87 млн. Бк.

С целью оценки скорости выноса накопленного растениями ^{137}Cs , был проведен лабораторный эксперимент, в ходе которого 19 неозоленных навесок проб осоки на различные сроки (от 0,5 часа до 19 суток) помещались в дистиллированную воду. По окончании эксперимента вода сливалась. Полученные растворы

фильтровались, упаривались и анализировались на содержание ^{137}Cs . Концентрации ^{137}Cs определялись также в высушенных остатках растений. Результаты эксперимента приведены на рис. 6.

Уже после получасовой выдержки в раствор переходит около 30% ^{137}Cs , судя по всему, связанного на поверхности растительности в легкомигрирующих формах. В течение первых суток эти значения достигают 60 – 70 % и далее сохраняются на этом уровне на протяжении следующих нескольких суток эксперимента. В данный период времени происходит вымывание изотопа из внутренних клеточных структур растения. И лишь в случае последней пробы (выдержка 19 суток) выход изотопа возрастает до 80 %, что может быть вызвано началом деградации целлюлозы в составе клеточных стенок и высвобождением прочно связанного с ней изотопа.

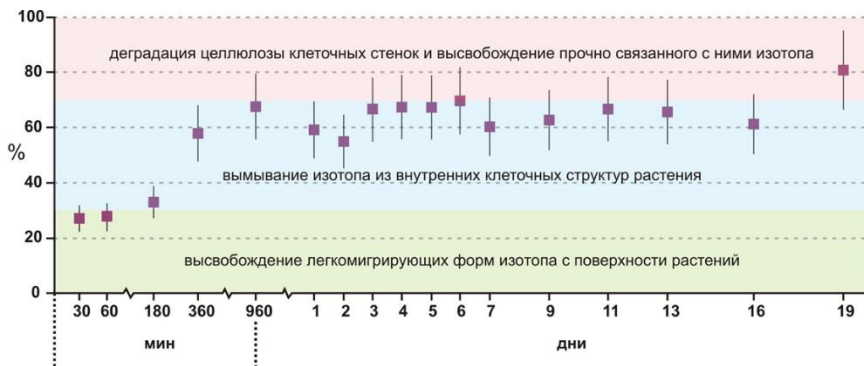


Рис. 6. Динамика перехода ^{137}Cs в водный раствор. Результаты лабораторного эксперимента.

Заключение

Установлено, что отсутствие активационного изотопа ^{152}Eu и обнаружение соединений урана (UO_2) свидетельствуют о реакторном (топливном) происхождении, по крайней мере, части «горячих» частиц.

Нахождение «горячих» частиц в верхнем слое почв, массовое их появление после сильных паводков 2006-2007 гг., обнаружение частиц в местах, где их не находили ранее, появление

монокобальтовых частиц, которые ранее также не обнаруживались, свидетельствует о продолжающемся поступлении «горячих» частиц в экосистему Енисея.

В ходе проведенных лабораторного и натурального экспериментов показано, что, находясь в естественных условиях залегания в затопляемых почвах пойменной части р. Енисей, «горячие» частицы под действием фильтрующейся воды и влаги поровых растворов постепенно растворяются, а входящий в их состав ^{137}Cs вовлекается в повторную миграцию.

Присутствие в пробах осоки, подвергавшихся затоплению во время паводка, всех изотопов, характерных для ближней зоны влияния ГХК, в соотношении, типичном для вмещающих почв, говорит о связи этого загрязнения с тонкодисперсной взвесью, принесенной паводковыми водами и осажденной на поверхности растений. На это же указывает повышенная зольность этих образцов. Обнаружение же в них короткоживущего изотопа ^{65}Zn говорит о продолжавшемся на время отбора (2004 г.) поступлении ТРН в экосистему реки Енисей.

Осока накапливает в значимых количествах только ^{137}Cs . При нарушении нормального цикла развития растений и их отмирании, во время паводковых затоплений происходит вынос накопленного ими ^{137}Cs . Такой же вынос, по-видимому, происходит и при стоке дождевых и талых вод. Это говорит о возможности повторного вовлечения ^{137}Cs в миграционные процессы из аллювиальных почв за счет жизнедеятельности растений, произрастающих на загрязненных территориях.

Для изученного модельного участка рассчитано минимальное количество ^{137}Cs , вовлекаемого наземными растениями в повторную миграцию только за счет паводковых явлений. Ежегодно эта величина составляет от $3,8 \times 10^5$ до $1,87 \times 10^6$ Бк.

Список основных опубликованных работ по теме диссертации

Sukhorukov F.V., Melgunov M.S., Chuguevsky A.V. "Hot" and active particles in alluvial soils and sediments of the Yenisei River: radioisotope composition // Radioprotection. 2009. Т. 44. № 5. P. 227–231.

Чугуевский А.В., Сухоруков Ф.В., Мельгунов М.С., Макарова И.В., Титов А.Т. “Горячие” частицы реки Енисей: радиоизотопный состав, структура, поведение в естественных условиях // Доклады Академии наук. 2010. Т. 430. № 1. С. 102–104.

Кропачева М.Ю., **Чугуевский А.В.**, Мельгунов М.С., Богуш А.А. Поведение ^{137}Cs в системе почва – ризосфера - растение на примере поймы реки Енисей // Сибирский экологический журнал. 2011. Т. 18. № 5. С. 719–727.

Sukhorukov F.V., Melgunov M.S., **Chuguevskii A.V.** The pebble fines contribution into radiation environment of the river Yenisei floodplain in an influence zone of the Krasnoyarsk mining and chemical combine (KMCC) // Radioprotection. 2011. Т. 46. № 6 SUPPL. P. S17-S23.

Kropatcheva M., **Chuguevsky A.**, Melgunov M. distribution of ^{152}Eu and ^{154}Eu in the 'alluvial soil-rhizosphere-plant roots' system // Journal of Environmental Radioactivity. 2012. Т. 106. P. 58–64.

Melgunov M.S., Pokhilenko N.P., Strakhovenko V.D., Sukhorukov F.V., **Chuguevskii A.V.** Fallout traces of the Fukushima NPP accident in southern west Siberia (Novosibirsk, Russia) // Environmental Science and Pollution Research. 2012. Т. 19. № 4. P. 1323–1325.

Bolsunovsky A., Melgunov M., **Chuguevskii A.**, Lind O.C., Salbu B. Unique diversity of radioactive particles found in the Yenisei River floodplane // Scientific Reports. 2017. Т. 7. № 1. P. 11132.

Чугуевский А.В. М.С. Мельгунов, И.В. Макарова РОЛЬ «горячих» частиц реки Енисей во вторичном перераспределении техногенных радионуклидов // Экология промышленного производства. 2018. 4(104). С. 7–12.

Чугуевский А.В., Мельгунов М.С., Макарова И.В., Кропачева М.Ю. К вопросу о роли растительности в перераспределении техногенных радионуклидов в аллювиальных отложениях островов реки Енисей (ближняя зона влияния Красноярского ГХК). // Вестник Забайкальского государственного университета. 2019. Т. 25. № 2. С. 54–62.