

На правах рукописи

Мельников Виктор Сергеевич

СОВРЕМЕННАЯ РАДИОЭКОЛОГИЧЕСКАЯ ОБСТАНОВКА НА РЕКЕ
ТЕЧА

03.01.01- радиобиология

Автореферат

диссертации на соискание ученой степени
кандидата биологических наук

Москва 2015

Работа выполнена на базе Федерального государственного учреждения науки «Уральского научно-практического центра радиационной медицины» Федерального медико-биологического агентства Российской Федерации.

Научный руководитель:

Аклев Александр Васильевич, доктор медицинских наук, профессор, заслуженный деятель науки РФ, директор ФГБУН УНПЦ РМ ФМБА РФ

Официальные оппоненты:

Левина Сима Гершивна, доктор биологических наук, декан естественно-технологического факультета ФГБОУ ВПО Челябинский государственный педагогический университет

Гераськин Станислав Алексеевич, доктор биологических наук, профессор, заведующий лабораторией радиобиологии и экотоксикологии растений Федеральное государственное бюджетное научное учреждение Всероссийский научно-исследовательский институт радиологии и агроэкологии

Ведущая организация: ФГБУН Институт экологии растений и животных УрО РАН, г. Екатеринбург

Защита диссертации состоится «**16**» **апреля** 2015 г. в **15.00** на заседании диссертационного совета Д 501.001.65 при Московском государственном университете имени М.В. Ломоносова по адресу: 119991, г. Москва, Ленинские горы, д.1, стр. 12, МГУ им. М.В. Ломоносова, биологический факультет, ауд. 389.

С диссертацией можно ознакомиться в Фундаментальной библиотеке МГУ имени М.В. Ломоносова, Ломоносовский пр. 27, сектор А, к. 812. Отзывы просим присылать Веселовой Т.В. по адресу: 119991, Москва, Ленинские горы, д. 1, стр. 12, МГУ им. М.В. Ломоносова, кафедра биофизики биологического факультета.

Автореферат разослан « ___ » _____ 2015 г.

Ученый секретарь диссертационного совета,
доктор биологических наук

Веселова Татьяна Владимировна

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность работы.

Деятельность предприятий ядерно-топливного цикла на современной технической основе приводит к накоплению твердых и жидких радиоактивных отходов, росту масштабов поступления радионуклидов в окружающую среду, в том числе и в поверхностные воды. Поступление радионуклидов в водную среду может происходить за счет выпадений из атмосферы, смыва радионуклидов с водосборов и непосредственного сброса радиоактивных отходов предприятиями ядерно-топливного цикла (Fabre H. et.al., 1980; Gallop et.al., 1988; Granby, 1978; Hunt G. J., 1979; Jones et al., 1975; Parker F. L. et.al., 1966; Брежнева Н. Е. и др., 1963; Булатов, В. И., 1999; Носов, А. В., 1996; Эйзенбад М., 1967).

Опасность попадания радиоактивных веществ в поверхностные воды связана с возможностью миграции загрязнителей по длине водотока, что может приводить к загрязнению территорий, расположенных на значительном расстоянии от места поступления радиоактивных веществ. Радиоактивные вещества при контакте раствора с твердой фазой могут сорбироваться грунтами, что приводит к загрязнению донных отложений водных объектов и прилегающих к ним земель (Fazah M. J. et.al., 1982; Kavabata T., 1967; Стародомский В. В., 1971; Трапезников А. В., 2006). После прекращения первичного поступления, загрязнитель способен вымываться из грунта и поступать обратно в водоток (Носов, А. В., 1997; Перемыслова, Л. М., 1999). В результате значимые концентрации радиоактивных веществ в воде могут сохраняться на протяжении длительного времени после прекращения первичного загрязнения. Поэтому изучение поведения радионуклидов в водных объектах является одной из актуальных задач радиоэкологических исследований. Различные аспекты поведения радионуклидов в пресных водных системах изучались многими авторами, начиная с 1950-х годов (Fix J.J., 1977; Gloyna E.F. et.al., 1966; Nelson J.L. et.al., 1966; Pickering R.J. et.al., 1966; Robetson D.E. et.al., 1973; Агафонов Б. М., 1957; Жадин В.И. и др., 1959; Израэль Ю.А. и др., 1970).

Изучение поведения радионуклидов в реальных полномасштабных природных экосистемах позволяет сделать прогноз и оценить радиационную значимость поступления радиоактивных веществ в окружающую среду и в

конечном счете минимизировать облучение биоты и населения, проживающего на загрязненной территории, при ликвидации последствий аварийных ситуаций (Мамихин С.В., 2003; Санжарова Н. И., 2009; Ильин Л. А., 2010).

Исследование радиоэкологических последствий поступления радиоактивных веществ в поверхностные воды имеет особую актуальность в Уральском регионе. Это связано с деятельностью одного из крупнейших предприятий Госкорпорации «Росатом», производственного объединения «Маяк».

В начальный период работы предприятия произошло значительное загрязнение окружающей среды техногенными радионуклидами. Причиной послужили как работа предприятия, в особенности радиохимического завода на первых этапах его функционирования в условиях неотработанных технологий производства оружейного плутония, так и ряд аварийных ситуаций. Так в период с 1949 по 1956 гг. жидкие радиоактивные отходы сбрасывались в р. Теча (более 100 ПБк суммарной активности β -излучающих нуклидов), вследствие чего пойма и донные отложения р. Течи до настоящего времени загрязнены радионуклидами (Круглов А.К., 1994; Фетисов В.И., 1996; Глаголенко Ю.В. и др., 2007), а иловые отложения в верхней части реки могут рассматриваться как твердые радиоактивные отходы (Мокров Ю.Г., 2004).

Получение натуральных данных о параметрах радиоактивного загрязнения р. Теча в современный период является необходимым условием для оценки доз облучения и, в конечном итоге, радиационных рисков для биоты и населения, проживающего на прибрежных территориях.

Цель исследования: изучить закономерности миграции, накопления и распределения ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^3H между основными компонентами гидрологической системы реки Теча (почва водосборных территорий - вода - донные отложения), по всей длине реки в отдаленный период.

Задачи исследования:

1. Исследовать содержание техногенных радионуклидов в объектах экотопа (вода, донные отложения и пойменные почвы), и отношения концентраций техногенных (^3H , ^{90}Sr , ^{137}Cs) и естественных

радионуклидов ($^{234,238}\text{U}$, ^{232}Th , ^{40}K , ^{226}Ra) в воде и донных отложениях и пойменных почвах.

2. Оценить вертикальное распределение и запас ^{90}Sr и ^{137}Cs в донных отложениях и пойменных почвах водосборной территории верхнего течения реки Теча.
3. Изучить физико-химические формы нахождения ^{90}Sr и ^{137}Cs в донных отложениях реки и почвах водосборных территорий и возможность перехода радионуклидов в подвижные формы в почвенно-растительном комплексе пойменных почв.
4. Исследовать источники и механизмы текущего вторичного загрязнения речной воды ^{90}Sr .

Научная новизна работы.

В работе впервые дана оценка верховий реки как источника вторичного загрязнения вод реки Теча радиоактивными веществами. Установлено, что единственным значимым фактором, определяющим изменение концентрации ^{90}Sr в воде реки Теча, является смешивание русловых вод со стоком, поступающим с водосборной территории.

Исследована эффективность выщелачивания техногенных радионуклидов из пойменных почв заболоченной части верхнего течения реки (до 10%) и фитомассы (до 90%).

Установлена взаимосвязь между изменениями объемных активностей ^3H и ^{90}Sr , на основании которой предложена модель оценки поступления ^{90}Sr в воду реки при её прохождении по длине водотока.

Теоретическая и практическая значимость.

Исследование радиоактивного загрязнения абиотических компонентов реки Теча в современный период (2005-2013 гг.) и сопоставление полученных результатов с данными, проведенных ранее специалистами УНПЦРМ, работ позволило исследовать закономерности динамики радиозэкологической обстановки на реке Теча за длительный период времени (более 60 лет).

Данные об активностях радионуклидов, их физико-химическом состоянии в грунтах и степени перехода ^{90}Sr и ^{137}Cs в подвижные формы из пойменных почв верхнего течения реки могут быть использованы при планировании защитных мероприятий и для расчета доз внешнего и

внутреннего облучения биоты и населения, проживающего на прибрежной территории.

Положения, выносимые на защиту.

1. Современное распределение радионуклидов, фиксированных в донных отложениях и пойменных грунтах, на всей протяженности р. Теча имеет гетерогенный характер, зависящий не только от уровня начального загрязнения, но и от физико-химических свойств грунтов, морфологических особенностей загрязненных участков (удаление от уреза воды, рельеф, глубина залегания водоупорного слоя), вторичного перераспределения техногенных радионуклидов между компонентами речной системы.
2. Изменение объемных активностей радионуклидов в воде (^{90}Sr , ^{137}Cs и ^3H) по длине реки Теча определяется, прежде всего, степенью разбавления водами, поступающими с водосборной территории и притоков, и в меньшей степени процессами сорбции-десорбции радионуклидов на границе раздела фаз, между речной водой и донными отложениями реки.
3. Основным источником радиоактивного загрязнения воды в настоящее время являются водоемы Теченского каскада, обеспечивающие более 70% от суммарного поступления ^{90}Sr в воды реки.

Апробация результатов: Основные положения диссертации доложены и обсуждены на 1-й международной научно-практической конференции «Адаптация биологических систем к естественным и экстремальным факторам среды» (Челябинск, 2006 г.), Научно-практической конференции «Роль, проблемы и задачи радиационно-гигиенической паспортизации в обеспечении радиационной безопасности населения» (Санкт-Петербург, 2006 г.), Международной научно-практической конференции, посвященной 50-летию образования филиала №2 Государственного научного центра институт биофизики (Северск-Томск, 2007 г.), VI съезде по радиационным исследованиям (радиобиология, радиоэкология, радиационная безопасность) (Москва, 2010 г.), 4-й международной конференции "Хроническое радиационное воздействие: эффекты малых доз" (Челябинск, 2010 г.), Конференции «Актуальные проблемы токсикологии и радиобиологии» (Санкт – Петербург, 2011 г.), Международной конференции «Опыт минимизации последствий аварии 1957 года» (Челябинск, 2012 г.), VII Международной научно-практической конференции «Тяжелые металлы и

радионуклиды в окружающей среде» (Семей, 2012 г.), 57-й ежегодной конференции NPS (Сакраменто, 2012 г.).

Публикации.

Соискатель имеет 19 опубликованных работ, из них по теме диссертации опубликовано 14 научных работ, в том числе 5 статьи в научных журналах и изданиях, которые включены в перечень российских рецензируемых научных журналов и изданий для опубликования основных научных результатов диссертаций, а также 2 работы в зарубежном научном издании; 7 работ опубликованы в материалах всероссийских и международных конференций и симпозиумов.

Структура диссертации.

Диссертация изложена на 133 страницах компьютерного текста и включает 25 таблиц, 34 рисунка. Диссертационная работа состоит из введения, обзора литературы, материалов и методов исследования, главы собственных исследований, заключения, выводов и списка литературы, включающего 172 работ отечественных и иностранных авторов.

ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ.

Во введении представлена актуальность темы, сформулирована цель диссертационной работы, научная новизна и основные положения, выносимые на защиту.

Первая глава посвящена обзору литературы по поведению радионуклидов в пресноводных водоемах и на прилегающих к ним водосборных территориях, миграционным характеристикам изучаемых техногенных радионуклидов и содержанию естественных радионуклидов в объектах внешней среды. Также в главе рассмотрено: гидрографическая характеристика района и результаты радиоэкологического мониторинга территории реки Теча с 1951 по 2005 гг.

Во второй главе описаны материалы и методы исследования.

Всего в рамках работы было отобрано: 153 пробы воды из русла реки, 19 проб воды с водосборной территории, 56 проб донных отложений, 435 пробы пойменных грунтов. На территории ТКВ за период 2010-2012 гг. было

отобрано: 120 проб воды из водоёмов каскада и обводных каналов, 65 проб донных отложений и 39 почвенных проб.

Пробы воды собирались в стеклянную или полиэтиленовую посуду, на глубине 10-15 см. Объем отбираемой воды в зависимости от вида предполагаемых анализов от 5 до 20 литров. Вода консервировалась концентрированной HNO_3 до значения рН равному 2.

Отбор проб донных отложений проводился ближе к центру реки и у береговой линии. Использовались ковш-сито или разборный трубчатый пробоотборник. Послойное разделение отобранной пробы донных отложений проводилось на месте отбора.

Пробы пойменных земель обычно отбирали из шурфов с боковой стенки. В случаи болотных почв, с помощью разборного трубчатого пробоотборника.

Удельную активность ^{137}Cs , ^{226}Ra , ^{232}Th и ^{40}K определяли с помощью сцинтилляционного гамма-спектрометра с программным обеспечением «Прогресс» (неопределенность значения удельной активности рассчитывается автоматически для каждого измерения, минимальная определяемая активность ^{137}Cs - 10 Бк/кг. С 2011 г. для этой цели использовали спектрометрическую установку МКС-01А «МУЛЬТИРАД» с ошибкой измерения для ^{137}Cs - 11%, ^{226}Ra - 12%, ^{232}Th - 20%, ^{40}K - 9%. В малоактивных пробах ^{137}Cs определяли радиохимически - сурьмянойодидным методом.

Определение ^{90}Sr производилось радиохимическим методом с использованием МИОМФК. Концентрация ^{90}Sr в пробах определялась посредством радиохимического выделения дочернего ^{90}Y с последующим измерением его активности на малофоновой β -метрической установке типа УМФ-1500 и УМФ-2000 и пламенно-фотометрическим контролем выхода носителя стронция. Погрешность измерения ^{137}Cs и ^{90}Sr радиохимическим методом составляет 20% при активности ниже 0,7 Бк/кг и 10% при больших активностях.

Определение ^3H в воде проводили методом прямого измерения на жидкостном α -, β -радиометре Quantulus 4220 после предварительной дистилляции из щелочной среды с добавлением перманганата калия.

Метод определения изотопов плутония основан на концентрировании и очистке на анионнообменной смоле ВП-1АП с последующим

электрохимическим осаждением на стальные диски. При измерении образца, по энергии и интенсивности излучения, проводилась идентификация и оценка активности ^{238}Pu и $^{239,240}\text{Pu}$.

Методика измерения активности изотопов урана предусматривала предварительную радиохимическую подготовку проб, которая включает концентрирование изотопов урана из водной пробы, экстракционное отделение от мешающих радионуклидов и железа, приготовление электролитическим способом счетного образца. Электролитическое осаждение урана выполняют на подложку из стали. Измерение и анализ альфа-спектра счетного образца позволяет по энергии и интенсивности излучения идентифицировать изотопы урана и определить активность исходя из известной активности предварительно введенного в пробу изотопного индикатора ^{232}U .

Методика измерения водорастворимых, обменных и подвижных форм ^{137}Cs и ^{90}Sr предусматривала помещение исследуемой пробы в центрифужную пробирку с добавлением дистиллированной воды (1:5) с последующим перемешиванием в течение 1 часа. Раствор отделялся центрифугированием в течение 1 часа при скорости 2,5 тыс. об/мин. Полученный раствор фильтровался. Затем добавлялся 1 н раствор аммония уксуснокислого и проводят все аналогично как с H_2O . После в пробу добавляли раствор 1 н HCl . Для определения радионуклидов фильтраты выпаривают досуха, обрабатывают азотной кислотой и растворяют в 7,5 н HNO_3 . Определение содержания радионуклидов в вытяжках и твердой фазе почвы проводили последовательно: в растворе осаждение ^{90}Sr в виде оксалатов, после отделения ^{90}Sr , осаждение изотопов цезия на ферроцианиде никеля.

Для оценки уровней поступления ^{90}Sr и ^{137}Cs в воду из разлагающейся фитомассы образцы растительности подвергли разложению в стеклянных сосудах в течение 70 дней.

Для исследования перехода ^{90}Sr и ^{137}Cs из почвы в гравитационную воду образцы почвы заливали дистиллированной водой в трех режимах:

- 1 режим - 1 раз в 2 суток,
- 2 режим - 1 раз в 4 суток,
- 3 режим - 1 раз в 8 суток.

Для оценки поступления ^{137}Cs и ^{90}Sr в капиллярно-сорбционную воду изучали 3 режима увлажнения:

- кратковременное;
- долговременное;
- высушивание с последующим увлажнением.

Для оценки поступления ^{137}Cs и ^{90}Sr в капиллярно-сорбционную воду из почвы при долговременном увлажнении водой почву обрабатывали в течении 60 циклов. Фугат разделяли на 2 части.

В 1 части с помощью FeCl_3 осаждали коллоиды, определяли содержание ^{137}Cs и ^{90}Sr в фильтрате и осадке.

Во 2 части определяли содержание ^{137}Cs и ^{90}Sr без осаждения коллоидов.

Скорость восстановления активности в высушенной почве водорастворимых форм ^{90}Sr и ^{137}Cs оценивали посредством повторного увлажнения и сравнения водных экстрактов из нативной почвы (контроль) и из почвы, предварительно высушенной и повторно увлажненной.

Для качественной оценки роли того или иного источника поступления радионуклида в воды реки использовалась двухкомпонентная модель смешивания, исходя из предположения, что составы полученных смесей не изменены реакциями или процессами, происходящими после смешивания.

$$X_M = X_A f + X_B (1 - f) \quad (1)$$

где X_A и X_B - объемная активность радионуклида X в компонентах A и B (Бк/л); X_M - объемная активность радионуклида X в конечной смеси (Бк/л); f - значение параметра смешивания.

Зная величины объемной активности радионуклида X в компонентах и в конечной смеси можно рассчитать значение параметра смешивания между компонентами A и B .

При трехкомпонентном смешивании использовалась система линейных уравнений.

(2)

где XA_1 , XA_2 и XA_3 - объемная активность радионуклида X в компонентах A_1 , A_2 и A_3 (Бк/л); X_M - объемная активность радионуклида X в конечной смеси (Бк/л); YA_1 , YA_2 и YA_3 - объемная активность радионуклида Y в компонентах A_1 , A_2 и A_3 (Бк/л); Y_M - объемная активность радионуклида Y в конечной смеси (Бк/л); f_1 , f_2 и f_3 - значение параметра смешивания для каждого компонента.

Обработка аналитических данных осуществлялась статистическими методами в программных пакетах Excel и Statistica.

В третьей главе представлены результаты собственных исследований.

Многолетняя динамика содержания радионуклидов в воде р. Теча в створе н.п. Муслюмово до середины 1990-х годов характеризовалась устойчивым снижением удельных активностей ^{90}Sr и ^{137}Cs . В дальнейшем отмечалось периодическое повышение удельных активностей радионуклидов в водах реки. При этом содержание ^{90}Sr в период с 2005 по 2010 гг. в речной воде превышает существующий допустимый регламент (5 Бк/л) (рисунок 1). Удельные активности ^{137}Cs в воде реки более низкие и не превышают предельный уровень содержания ^{137}Cs в воде, равный 11 Бк/л.

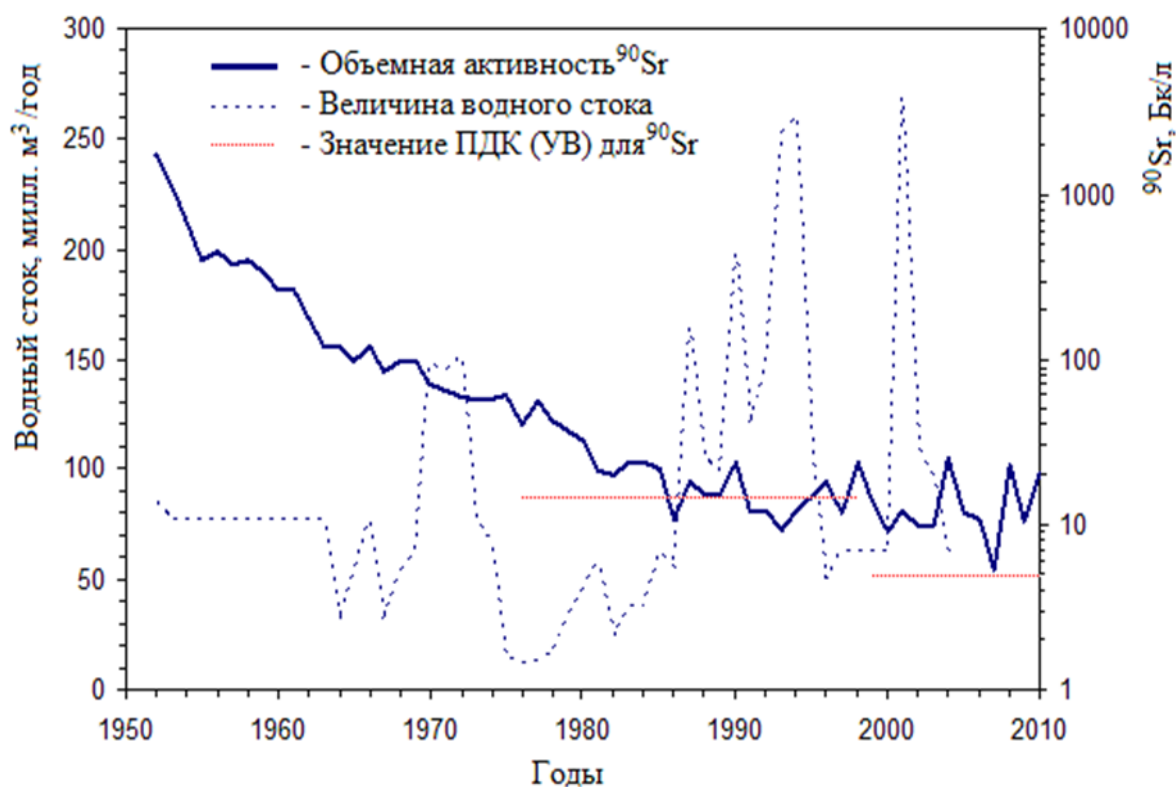


Рис. 1. Объемная активность ^{90}Sr в воде в створе н.п. Муслюмово (40 км от П-11) (Костюченко, 2000, Костюченко и др., 2009)

В период с 2005 г. по 2012 г. удельная активность ^{90}Sr в воде на участке от «Асанова моста» до н.п. Муслиумово колебалась от 1,6 Бк/л до 60,0 Бк/л, и, в среднем, по 121 пробе составила $17,1 \pm 2,2$ Бк/л. Активность ^{137}Cs колебалась от 0,06 Бк/л до 11,5 Бк/л, в среднем - $1,0 \pm 0,4$ Бк/л, активность ^3H - от 11,2 Бк/л до 451 Бк/л, в среднем 240 ± 33 Бк/л, активность $^{239,240}\text{Pu}$ не превышала 0,096 Бк/л, в среднем - $0,019 \pm 0,02$ Бк/л. Таким образом, в верхнем течении реки только ^{90}Sr постоянно и значительно превышает уровень вмешательства. Содержание ^{137}Cs в воде возрастало после «Асановских и Муслиумовских болот», а затем снижается, оставаясь примерно на одном уровне в 0,4-0,2 Бк/л до впадения реки Теча в реку Исеть.

Удельные активности ^{90}Sr и ^3H в воде взаимосвязаны. В верхнем течении реки в 40 пробах 2009-2012 гг. коэффициент корреляции между ними составил 0,76. В среднем за этот период в верхнем течении активность ^3H превышала активность ^{90}Sr примерно в 11 раз. В нижнем течении соотношение $^3\text{H}/^{90}\text{Sr}$ несколько снижается и составляет $9,3 \pm 1,6$. Необходимо отметить, что с 2009 г. по 2012 г. активность ^{90}Sr и ^3H значительно выросла, как в отдельных пробах, так и в среднем за год (в 2009 г. - 10,4 Бк/л, в 2012 г. - 32,7 Бк/л).

Активность радионуклидов в воде р. Теча непостоянна и в течение года может изменяться в 3-5 раз. Были рассчитаны коэффициенты корреляции между удельной активностью радионуклидов в воде в верховьях Течи в безморозный период 2005-2012 гг. и количеством осадков за декаду, предшествующую отбору пробы; активностью и суммой температур за декаду, активностью и гидротермическим коэффициентом. Все коэффициенты не превышают 0,1 и статистически незначимы. Слабая отрицательная корреляция на границе значимости (-0,29 для 45 проб) обнаружена только между активностью ^3H и количеством осадков за декаду.

Для проб воды, отобранных в ТКВ, медиальные значения концентраций ^{90}Sr и ^3H в воде составили 3162 и 3251 Бк/л в диапазонах значений 983-5149 и 763-5935 Бк/л соответственно. Значения объемных активностей ^{137}Cs находились в диапазоне 1,9-914,5 Бк/л при медиане равной 32,9 Бк/л и при среднем 102,3 Бк/л. Для дальнейших расчетов были приняты медиальные значения ^{90}Sr и ^3H для вод ТКВ, а также радиоактивное отношение $^3\text{H}/^{90}\text{Sr}$ равное 0,9. Для проб, отобранных в р. Теча медиальные значения концентраций ^{90}Sr и ^3H в воде составили 11,8 и 116 Бк/л в

диапазонах значений 3,8-32,9 и 31-263,2 Бк/л соответственно. Для дальнейших расчетов были приняты медиальные значения ^{90}Sr и ^3H для вод р. Теча, а также радиоактивное отношение $^3\text{H}/^{90}\text{Sr}$ равное 9. Пробы поверхностных и грунтовых вод, отобранные на водосборной территории верхнего течения реки, характеризовались достаточно большим разбросом значений объемной активности ^{90}Sr (0,05-173,9 Бк/л) и ^{137}Cs (0,05-1,51 Бк/л) в зависимости от места отбора. При значениях медианы и среднего 14,1 и 27 Бк/л для ^{90}Sr и 0,09; 0,5 Бк/л для ^{137}Cs соответственно. Объемные активности ^3H , напротив, находились в довольно узком диапазоне значений 6-15,8 Бк/л. Для дальнейших расчетов было принято округленное среднее значение объемной активности ^3H равное 10 Бк/л.

При сравнении значений объемных активностей ^{90}Sr и ^3H была установлена прямая зависимость их концентраций в воде реки (рисунок 2).

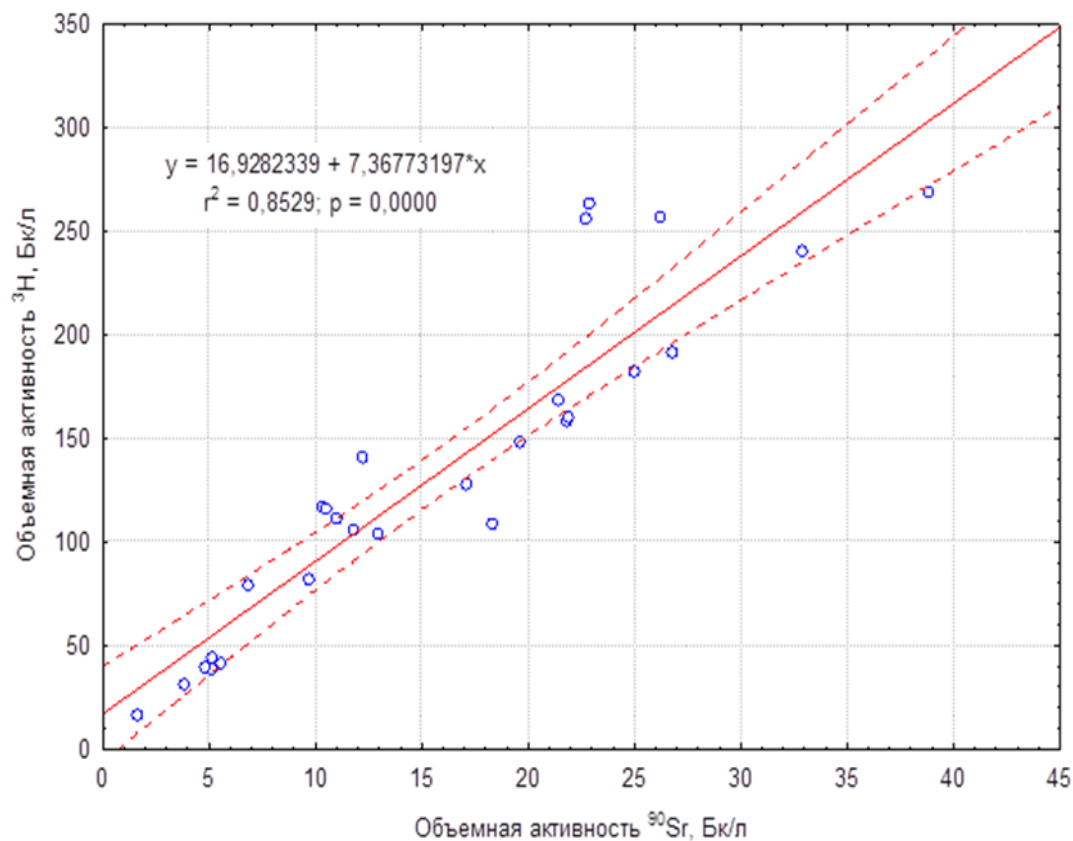


Рис. 2. Зависимость между объемными активностями ^3H и ^{90}Sr в водах реки Теча (2008-2011 гг.), Бк/л

Существование подобной взаимосвязи свидетельствует о том, что поведение этих радионуклидов в условиях Теченского водотока аналогично. Из чего следует, что ^{90}Sr , как и ^3H практически не вступает в обменные

реакции на границе “вода - донные отложения” и единственным механизмом, определяющим концентрацию ^{90}Sr в воде, является процесс смешивания вод с разной начальной концентрацией радионуклида в различных пропорциях.

Изменение объемной активности ^3H , выраженных в процентах от начальной активности радионуклида в точке «Асанов мост», описывается обратной линейной зависимостью от расстояния, с высоким значением коэффициента аппроксимации ($R^2 = 0,95$) (рисунок 3).

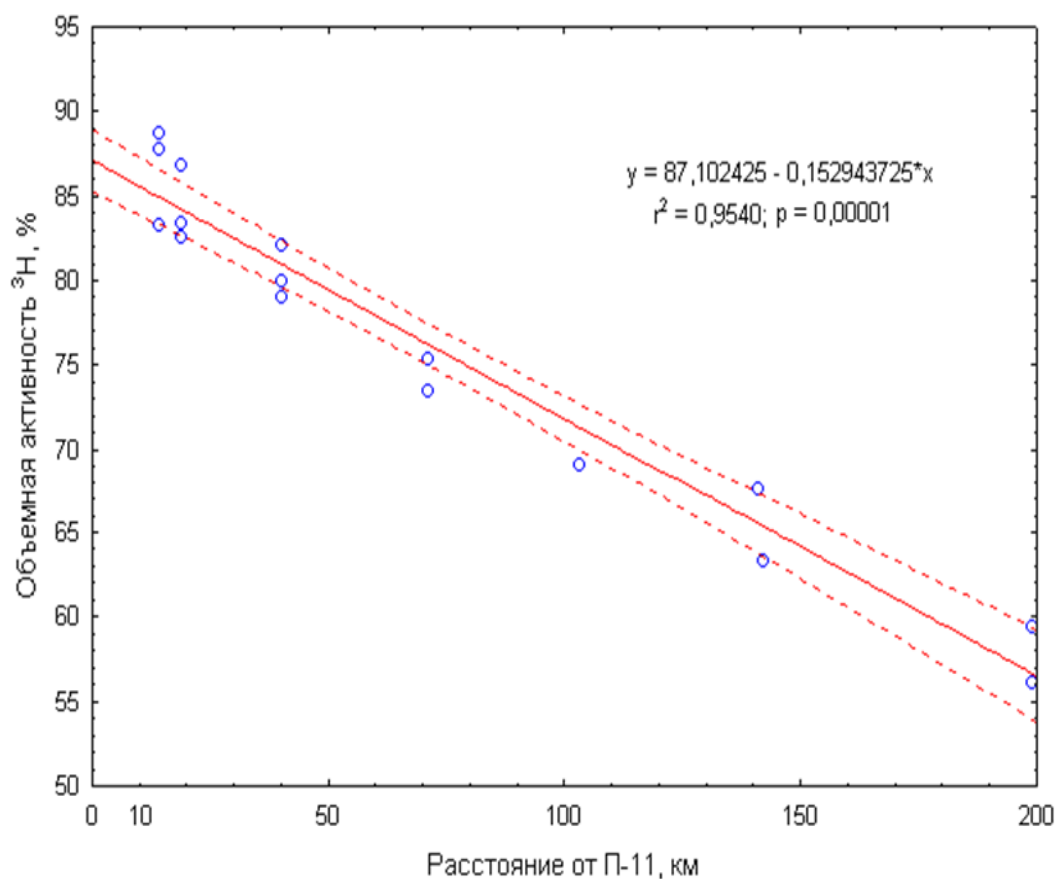


Рис. 3. Изменение объемной активности ^3H по длине реки, выраженная в процентах от начальной активности

Используя данную зависимость и то, что значения объемных активностей ^{90}Sr и ^3H взаимосвязаны, можно рассчитать концентрации данных радионуклидов в воде реки Теча по течению, используя единичное измерение объемной активности ^{90}Sr или ^3H .

Концентрация ^{238}U в воде по длине реки Теча (2010г.) изменяется от 0,008 до 0,025 Бк/л и при впадении в р. Исеть составляет 0,02 Бк/л. Изотопное отношение $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ в воде реки изменяется в диапазоне значений от 1,08 до 2,0 и в среднем составило 1,57.

^{137}Cs , в отличие от ^{90}Sr , ^3H , U практически необратимо сорбируется донными отложениями и почвой. Поэтому динамика уменьшения активности ^{137}Cs с расстоянием не совпадает с динамикой этих радионуклидов. Зная величины разбавления можно рассчитать вклад процессов сорбции в изменение концентрации ^{137}Cs в воде реки с расстоянием. В устье реки объемная активность ^{137}Cs составила около 10% от первоначальной концентрации, т.е. объемная активность ^{137}Cs уменьшилась на 90%. На долю разбавления приходится около 30%, а на сорбцию около 60%.

При изучении распределения процентных долей трех основных источников поступления загрязненных вод в исток реки Теча (ЛБК, ПБК, фильтрат 11-й плотины) установлено, что в среднем 27,5% ^{90}Sr и 67,5% ^3H поступает через левобережный обводной канал, 63,1% ^{90}Sr и 24,1% ^3H поступают через правобережный обводной канал, а 9,1% ^{90}Sr и 8,3% ^3H - с фильтратом плотины 11 (рисунок 4).

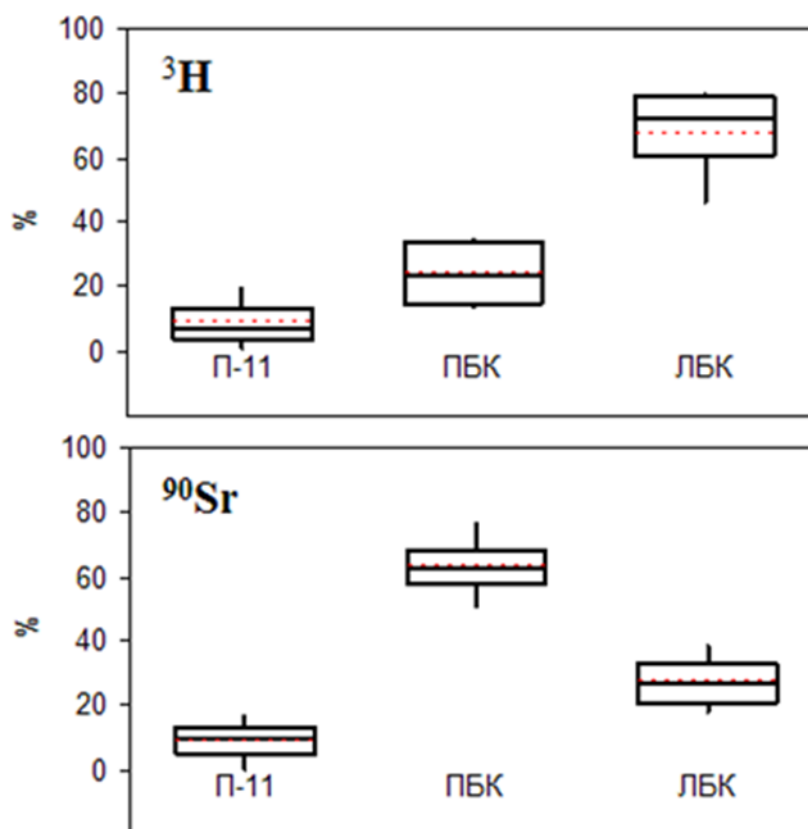


Рис. 4. Значение величины процентного вклада для ^3H и ^{90}Sr , поступающего из ЛБК, ПБК и с фильтратом П-11

Для оценки роли водосборной территории верхнего течения и донных отложений реки (0-40 км) в загрязнении воды ^{90}Sr была использована модель двухкомпонентного смешивания с использованием параметров смешивания, полученных для ^3H . Были использованы объемные активности ^3H и ^{90}Sr для начального и конечного створов - 4,5 и 40 км соответственно. Величины процентного вклада для ^{90}Sr , поступающего с водосборной территории верхнего течения реки Теча, варьируются в диапазоне от -19,3% до 37,5%, при среднем значении 7,64%, медиана - 11,9%.

При работе с архивными данными по объемной активности ^{90}Sr в водах верхнего течения реки за период с 1968 по 2005 гг. установлено, что процентный вклад водосборной территории и донных отложений в дополнительное поступление ^{90}Sr в среднем составил около 22%.

Уровни загрязнения илов и воды на протяжении реки взаимозависимы. Содержание радионуклидов в иле, как и в воде, от 11 плотины до устья реки устойчиво снижаются. При этом в донных отложениях, по сравнению с водой, имеет место обратная зависимость - показатели загрязнения илов ^{137}Cs (концентрации и плотности) более высокие, чем ^{90}Sr (рисунок 5). Удельные активности ^{137}Cs в илах примерно на 5 порядков выше, чем в воде, ^{90}Sr - на 3 порядка. На всем протяжении реки плотности загрязнения илов ^{137}Cs примерно на 2 порядка выше, чем ^{90}Sr .

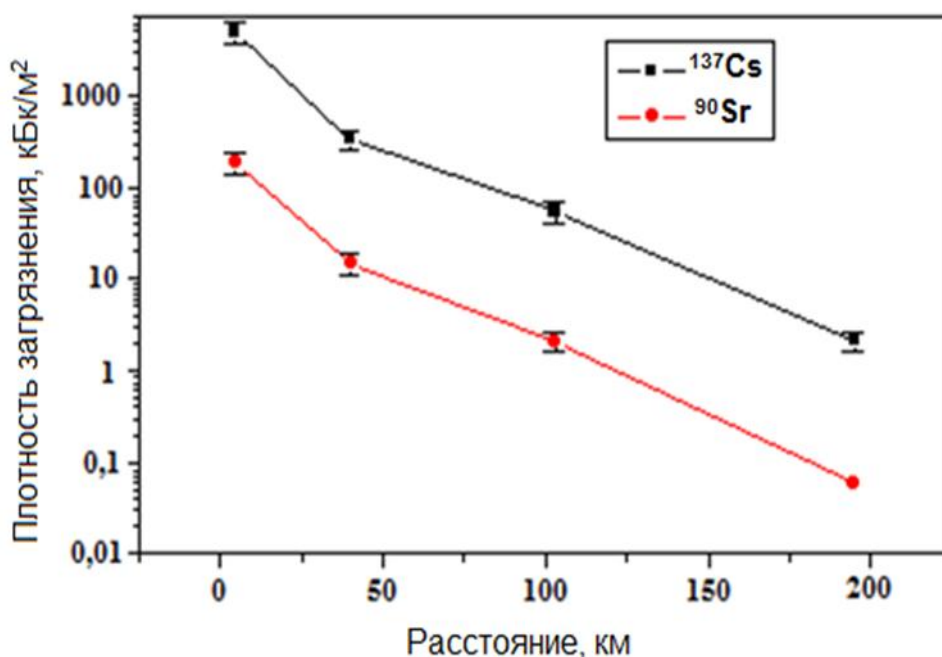


Рис. 5. Плотности загрязнения илов ^{90}Sr и ^{137}Cs реки Теча на различных расстояниях от 11-й плотины

За 60 лет после интенсивных сбросов в реку отходов радионуклиды мигрировали в песчаных и илистых грунтах на глубину более 35 см.

^{90}Sr распределение в исследуемых профилях донного грунта более равномерно, чем ^{137}Cs . Для ^{137}Cs характерен более резкий спад значений плотностей загрязнения в верховьях реки в нижних слоях донного грунта (на глубине 20-35 см). В среднем течении реки распределение радионуклидов на песчаных грунтах и на илистых отложениях почти идентичны. В илистых отложениях наблюдается некоторое обеднение верхнего слоя (0-5 см) по сравнению с более глубоким (5-15 см).

Определение содержания различных форм радионуклидов в донных отложениях не показывает каких-либо их отличий в распределении ^{137}Cs в зависимости от расстояния. Для ^{90}Sr можно отметить, что с расстоянием увеличение доли обменных и подвижных форм и, напротив, снижается доля труднодоступных. Эти изменения закономерны. Из этого следует ожидать относительно большего эффекта влияния радионуклида на единицу плотности загрязнения.

Запасы ^{90}Sr и ^{137}Cs в 30-ти см слое донных отложений для всей длины реки составят: ^{90}Sr - 2123,8 ГБк, ^{137}Cs - 22089 ГБк.

Для верхнего течения реки запасы ^{90}Sr и ^{137}Cs в 30-ти см слое донных отложений составят: ^{90}Sr - 976,8 ГБк, ^{137}Cs - 18537 ГБк.

^{90}Sr в постоянно увлажненных болотных и прибрежной дерновой почвах мигрирует на большую глубину и может аккумулируется в различных слоях. Во многих случаях наибольшая концентрация ^{90}Sr отмечается над водоупорным глеевым слоем. ^{137}Cs и $^{239,240}\text{Pu}$ в болотной почве мигрировали до 100 см, но наибольшее их количество содержится в верхнем 20-40 см слое.

Пойменная почва имеет кислую и слабокислую реакцию: в разных слоях почвы «Асановских болот» значение рН колеблется от 4,52 до 5,66, для почвы в районе «Нового моста» - от 5,89 до 6,07. Частично защелачивание воды можно объяснить свойствами почвообразующих горных пород, которые в районе водоема В-11 и обводных каналов представлены в основном карбонатными породами с рН 7,2-8,0. В верхнем течении (до впадения р. Зюзелги) почвообразующие породы представлены средне-основными магматическими породами с рН 7,3-8,3.

Слабощелочная реакция речной воды должна препятствовать вымыванию ^{137}Cs и из донных отложений, но на десорбцию ^{90}Sr она влияния не оказывает. Слабокислая реакция пойменных почв в настоящее время не способствует вымыванию ^{137}Cs из пойменных почв, однако значение pH близко к критической отметке. При изменении условий и падении pH до 4,0 и ниже поступление ^{137}Cs в речную воду из почвы может увеличиться в разы.

По мере удаления от 11 плотины наблюдается снижение значений плотности загрязнения пойменных почв. Однако такое снижение не является монотонным. Различаются 2 пика повышения плотности загрязнения поймы радионуклидами. Первый, наиболее мощный пик приходится на район влияния «Асановских болот», которые на данном отрезке характеризуется большой протяженностью и значительной увлажненностью. Второй пик находится на участке в границах от 23 до 37 км от 11 плотины (рисунок 6).

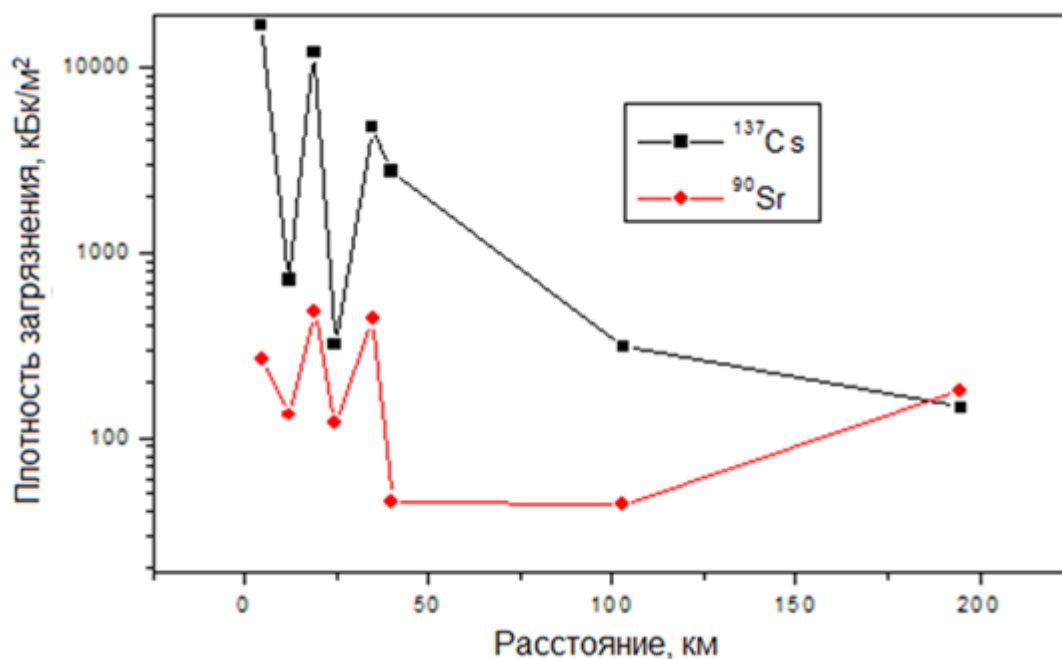


Рис.6. Плотности загрязнения ^{137}Cs и ^{90}Sr поймы на протяжении реки в 2006-2010 гг., кБк/м²

В пойме р. Теча наиболее загрязнена почва верхнего течения реки (Асановские болота). Активность ^{137}Cs здесь в настоящее время варьирует от $1,6 \times 10^2$ Бк/кг до $1,6 \times 10^6$ Бк/кг, ^{90}Sr - от $1,5 \times 10^2$ до $5,5 \times 10^4$ Бк/кг, $^{239,240}\text{Pu}$ - от $2,9 \times 10^2$ Бк/кг до $2,4 \times 10^3$ Бк/кг.

Активность природных радионуклидов в пойменной почве также повышена. В почве «Асановских болот» активность ^{40}K достигала $3,1 \times 10^3$ Бк/кг, а в районе «Нового моста» - $2,5 \times 10^3$ Бк/кг. Особенное внимание привлекает высокая активность ^{232}Th – до $1,4 \times 10^3$ Бк/кг в «Асановских болотах» и до $1,0 \times 10^4$ Бк/кг в районе «Нового моста», а также корреляция между удельными активностями ^{232}Th и ^{137}Cs . Подобная зависимость существует также для пары ^{238}U - ^{90}Sr , при этом следует обратить внимание на то, что концентрация ^{238}U находится на фоновом уровне. Активность ^{226}Ra в почве невелика, на грани чувствительности метода.

Сравнительная оценка распределения радионуклидов за различные годы в постоянных точках отбора проб показывает, что со временем удельная активность как ^{90}Sr , так и ^{137}Cs выравнивается по глубине, а общие запасы снижаются.

Для большинства пойменных земель, характерно наличие максимальных концентраций по ^{90}Sr на глубинах 10-30 см с резким падением концентрации вниз по профилю, а также обеднением верхнего 0-10 см слоя, что вызвано по-видимому промыванием верхнего слоя поверхностными водами. В «Асановских болотах» распределение ^{90}Sr по слоям почвы определяется низкой емкостью почвенно-поглощающего комплекса и значительным изменением уровня грунтовых вод в течение года, при которых радионуклиды свободно мигрируют по профилю в нижние слои и накапливаются на водоупорном слое почв. При таких условиях может образовываться постоянный грунтовый сток радионуклидов и увеличение их выноса в местах разгрузки грунтовых вод.

При сопоставлении удельных активностей радионуклидов в пробах оказалось, что горизонтальное и вертикальное распределение ^{137}Cs и $^{239,240}\text{Pu}$ в почве и донных отложениях сходно. Для 352 проб почвы, отобранных на разных участках по руслу, на разном расстоянии от реки и на разной глубине коэффициент корреляции между активностями этих радионуклидов составил 0,87. Для донных отложений коэффициент корреляции ниже - 0,69 (176 проб). Тем не менее, эти зависимости позволяют ориентировочно оценивать уровень загрязнения $^{239,240}\text{Pu}$ по результатам γ -спектрометрического определения ^{137}Cs . Так для расчета удельной активности $^{239,240}\text{Pu}$ (A_{Pu}) в пробе почвы по удельной активности ^{137}Cs (A_{Cs}) в той же пробе можно

использовать соотношение: $A_{Pu} = 0,04 \times A_{Cs}^{0,73}$. Для расчета активности $^{239,240}Pu$ в донных отложениях – соотношение: $A_{Pu} = 0,03 \times A_{Cs}^{0,78}$.

Формы нахождения ^{90}Sr в пойменной почве на реке Теча по средним показателям распределены следующим образом: 1) водорастворимых соединений - 11%, 2) растворимых в 1Н CH_3COONH_4 , т.е. обменных, доступных для растений формах - 49,2%, 3) подвижных, растворимых в 1Н HCl - 18,1%, 4) труднодоступных (твердый остаток) - 21,7%.

Суммарно ^{90}Sr пребывает в водорастворимых и обменных формах на 60,2%. Среди образцов проб пойменной почвы, отобранных в районе «Асановских болот» с различной глубины и местоположения, обращает на себя внимание сдвиг содержания в сторону водорастворимых форм в глубоких слоях (70-80 см) береговой почвы до 26%. На расстоянии 106 м от берега в поверхностном слое 0-10 см отмечено снижение доли обменных форм и увеличение подвижных и труднодоступных форм. Водорастворимые и обменные формы преобладают в местах их предполагаемой миграции на границе водоупорного слоя.

Аналогичные формы содержания для ^{137}Cs для пойменных почв Течи отличаются преобладанием труднодоступных форм. Так, средние показатели содержания водорастворимых форм составляют 0,2%, обменных - 3,4%, доля подвижных составляет 2,3%. Все остальное приходится на твердый осадок - 94,1%. Имеет место небольшое увеличение обменных и подвижных форм в нижнем слое береговой почвы.

Проведенное экспериментальное исследование, имитирующие периодическое затопление показало, что в отдаленном периоде (спустя 50 лет после загрязнения р. Теча) заболоченная пойма остается реальным источником поступления долгоживущих радионуклидов в речную воду. Фактором, модифицирующим скорость поступления водорастворимых форм радионуклидов из поймы в речную воду, является режим ее естественного увлажнения - высушивания. Вымывание ^{90}Sr и ^{137}Cs из растительной компоненты (фитомассы) как в случае постоянного затопления (заболоченная пойма), так и периодического подтопления (паводок) очень интенсивное - на уровне 80-90 % за 70 дней. Скорость перехода водорастворимых форм радионуклидов из почвы в гравитационную воду за время паводкового подтопления существенно ниже, чем из фитомассы. Увеличение длительности затопления поймы практически не влияет на

скорость перехода ^{90}Sr и несколько повышается для ^{137}Cs . Потенциальное высвобождение радионуклидов продемонстрировано посредством многократного (60 циклов) экстрагирования их из нативной пойменной почвы: ^{90}Sr ~ 0,5 % растворимая и ~ 18 % коллоидная.

Выводы:

1. В 2005-2012 годах в верхнем течении реки Теча объемная активность ^{90}Sr в воде в среднем составила $17,1 \pm 2,2$ Бк/л (1,6 - 60,0 Бк/л); ^{137}Cs - $1,0 \pm 0,4$ Бк/л (0,06 - 11,5 Бк/л), ^3H - 240 ± 33 Бк/л (11,2 - 451 Бк/л), а $^{239,240}\text{Pu}$ не превышала 0,1 Бк/л. Главным фактором, определяющим изменение концентрации ^{90}Sr в речной воде, было разбавление водами, поступающими с водосборной территории, о чем свидетельствовала линейная зависимость между активностями ^3H и ^{90}Sr в воде реки. Влияние процессов сорбции-десорбции ^{90}Sr на границе раздела фаз незначительно.
2. Вертикальное распределение ^{90}Sr по почвенным профилям на разных участках реки крайне неравномерно. В пойме р. Теча наиболее загрязнены грунты Асановских болот, где удельные активности достигают: 1,6 МБк/кг для ^{137}Cs ; 55 кБк/кг - ^{90}Sr ; $^{239,240}\text{Pu}$ - 2,4 кБк/кг. Удельные активности техногенных и естественных радионуклидов для пойменных почв в парах $^{232}\text{Th}/^{137}\text{Cs}$ и $^{238}\text{U}/^{90}\text{Sr}$ находятся в прямых зависимостях относительно друг друга.
3. Максимальные значения плотностей радиоактивного загрязнения илов наблюдаются в верхнем 10 см слое. Наиболее высокие уровни загрязнения донных отложений обнаружены в верхнем течении реки, где удельные активности ^{90}Sr и ^{137}Cs достигают $4,5 \times 10^3$ и $6,7 \times 10^5$ Бк/кг соответственно. Запасы в 30 см слое донных отложений верхнего течения составили: ^{90}Sr - 976,8 ГБк, ^{137}Cs - 18537 ГБк, что составляет, соответственно, 46% и 84% от суммарных значений для всей длины реки.
4. В поверхностном 10 см слое пойменных почв верхнего течения ^{90}Sr представлен преимущественно обменными формами (до 60%), тогда как на долю водорастворимых форм приходится до 8,2% ^{90}Sr . Доля подвижных форм ^{90}Sr в донных отложениях реки аналогична пойменным почвам.
5. Вклад ^{90}Sr , поступающего с водосборной территории верхнего течения реки, в среднем составлял 7,6% от объемной активности в конце участка. В настоящее время основная роль в радиоактивном загрязнении реки Теча

принадлежит ^{90}Sr , поступающему из водоемов Теченского каскада (более 90%).

6. В отдаленном периоде заболоченная пойма остается потенциальным источником поступления долгоживущих радионуклидов в речную воду. Отмечается интенсивное выщелачивание ^{90}Sr и ^{137}Cs из растительной компоненты (до 90%), при незначительной разнице между радионуклидами. Скорость перехода водорастворимых форм радионуклидов из почвы существенно ниже: ^{90}Sr - до 12 %, ^{137}Cs - менее 1 %.

Публикации в изданиях, рекомендованных ВАК:

1. Костюченко В.А., Попова И.Я., Перемыслова Л.М., Мельников В.С. Состояние радиоактивного загрязнения реки Теча // **Радиационная биология Радиоэкология** Т. 49 №2, с. 212-218, 2009.
2. Казачёнок Н.Н., Попова И.Я., Костюченко В.А., Мельников В.С. Исследование перехода ^{90}Sr и ^{137}Cs в подвижные формы в пойменном почвенно-растительном комплексе при различных режимах увлажнения в модельном эксперименте. **Медико-биологические проблемы жизнедеятельности**. 2010. № 2(4) С. 24-31.
3. Казачёнок Н.Н., Попова И.Я., Костюченко В.А., Мельников В.С., Полянчикова Г.В., Тихова Ю.П., Коновалов К.Г., Россинская Г.Б., Копелов А.И. Современная радиоэкологическая обстановка и источники радиоактивного загрязнения на реке Теча. **Медико-биологические проблемы жизнедеятельности**. 2013. № 1. С. 63-70.
4. Казачёнок Н.Н., Попова И.Я., Мельников В.С., Полянчикова Г.В., Коновалов К.Г., Тихова Ю.П. Закономерности распределения ^3H в открытых водоемах и источниках питьевого водоснабжения в зоне влияния ПО «Маяк» **Аппаратура и новости радиационных измерений** 2013 №3(74) с.43-51.
5. Казачёнок Н.Н., Попова И.Я., Мельников В.С., Полянчикова Г.В., Тихова Ю.П., Коновалов К.Г., Копелов А.И. ^3H , ^{90}Sr , ^{137}Cs , $^{239,240}\text{Pu}$ в системе реки Теча. **Вода: химия и экология**, № 11 (65) за Ноябрь 2013 г. Стр. 10-15.
6. Melnikov VS, Popova IY, Konovalov KG, Kostyuchenko VA. Qualitative Assessment of Sources and General Dependencies in the Behavior of

Anthropogenic Radionuclides in the Techa River. July 2012 - Volume 103 Health Physics.

7. Kostyuchenko, Vladimir A.; Peremyslova, Liudmila M.; Popova, Irina Y.; Kazachyonok, Nina N.; Melnikov, Viktor S. Main Dependencies in Reduction of Radiation Exposure to the Population of the Southern Urals July 2012 - Volume 103 Health Physics.

Тезисы конференций:

1. Перемыслова Л.М., Костюченко В.А., Попова И.Я., Мельников В.С. Современный уровень загрязнения долгоживущими радионуклидами реки Теча в Челябинской области. Адаптация биологических систем к естественным и экстремальным факторам среды материалы 1 международной научно-практической конференции 9-11 октября 2006 г. Челябинск, 2006, с. 38-40

2. Костюченко В.А., Попова И.Я., Казаченок Н.Н., Мельников В.С., Перемыслова Л.М. О роли заболоченной поймы верховья реки Теча в загрязнении речной воды радионуклидами //Сборник докладов и тезисов научно-практической конференции Санкт- Петербург, 4-7 декабря 2006, с. 158-159.

3. Костюченко В.А., Мельников В.С., Попова И.Я., Перемыслова Л.М., Казаченок Н.Н. Река Теча - современные радиозэкологические проблемы // VI съезд по радиационным исследованиям (радиобиология, радиозэкология, радиационная безопасность): Тезисы докладов. Том 11 (секции V111-X1V). М: РУДН, 2010. - с. 37.

4. Мельников В.С. Оценка современных источников поступления радионуклидов в воды реки Теча // Тезисы докладов на 4 международной конференции "Хроническое радиационное воздействие: эффекты малых доз" 9-11 ноября 2010 г. Челябинск, Издательство "Челябинская государственная медицинская академия, С. 128."

5. Казачёнок Н.Н., Костюченко В.А., Попова И.Я., Полянчикова Г.В., Коновалов К.Г., Мельников В.С. Радиационно-гигиеническая обстановка в населенных пунктах на территории, прилегающей к радиохимическому

предприятию // Актуальные проблемы токсикологии и радиобиологии, Санкт - Петербург 19-20 мая 2011г.

6. Казачёнок Н.Н., Костюченко В.А, Попова И.Я., Полянчикова Г.В., Тихова Ю.П., Коновалов К.Г., Копелов А.И., Мельников В.С. Радиоактивное загрязнение наземных экосистем в 30-км зоне ПО «Маяк» / Опыт минимизации последствий аварии 1957 года: Материалы Международной конференции 2-3 октября 2012 г., г. Челябинск- тип ООО «Энерготехника», 2012. - С. 113-114.

7. Попова И.Я., Казачёнок Н.Н., Костюченко В.А., Копелов А.И., Мельников В.С., Полянчикова Г.В., Коновалов К.Г. Современное распределение радионуклидов в системе реки теча / Тяжелые металлы и радионуклиды в окружающей среде. Материалы VII Международной научно-практической конференции. Семипалатинский государственный педагогический институт, 4-8 октября 2012 года. Т. I. - Семей, 2012 г. - С. 261-269

Список сокращений:

ЛБК - левобережный канал

МИОМФК - моноизооктилметиловый эфир фосфоновой кислоты

н.п. - населенный пункт

ПБК - правобережный канал

ТКВ - Теченский каскад водоемов