

УДК: 550.424.6

СРАВНИТЕЛЬНАЯ ОЦЕНКА СОДЕРЖАНИЯ ПЛУТОНИЯ (^{238}Pu , $^{239} + ^{240}\text{Pu}$) И РАДИОЦЕЗИЯ (^{137}Cs) В ДОННЫХ ОТЛОЖЕНИЯХ И ГИДРОБИОНТАХ р. ЕНИСЕЙ

© 2020 г. Т. А. Зотина^{1,*}, М. С. Мельгунов², Д. В. Дементьев¹, Ю. В. Александрова¹

Представлено академиком РАН А.Г. Дегерменджи 10.03.2020 г.

Поступило 11.03.2020 г.

После доработки 20.03.2020 г.

Принято к публикации 23.03.2020 г.

В работе оценено содержание изотопов плутония (^{238}Pu и $^{239, 240}\text{Pu}$) и ^{137}Cs в пробах донных отложений и гидробионтов (водном мхе, амфиподах, личинках ручейников с домиками), отобранных в р. Енисей вблизи радиоактивных сбросов Горно-химического комбината в 2012 и 2018 гг. Показано увеличение содержания и соотношения удельных активностей изотопов плутония ($^{238}/^{239, 240}$) в пробах ДО и гидробионтов после возобновления сбросов плутония в Енисей, обусловленных началом производства МОКС-топлива. Впервые оценено фоновое содержание и соотношение изотопов плутония в ДО р. Енисей. Гидробионты и ДО по-разному ранжировались по содержанию плутония и ^{137}Cs : максимальное содержание ^{137}Cs зарегистрировано в ДО, а плутония – в водном мхе. Содержание плутония в гидробионтах р. Енисей значительно различалось, что позволяет выделить представителей биоты (водный мох и личинок ручейников с домиками), которых наряду с ДО, можно использовать в качестве эффективных индикаторов загрязнения экосистемы изотопами плутония.

Ключевые слова: *Fontinalis antipyretica*, *Apatania cymatophila*, плутоний, радиоцезий, зообентос

DOI: 10.31857/S2686739720060225

Изотопы плутония (^{238}Pu , ^{239}Pu и ^{240}Pu) поступают в поверхностные водоемы с атмосферными осадками, со стоками с территории водосбора, и со сбросами предприятий ядерной промышленности. Изотопы плутония характеризуются высокой радиотоксичностью в силу большого периода полураспада (87.7 лет для ^{238}Pu , 2.41×10^4 лет для ^{239}Pu и 6.54×10^3 лет для ^{240}Pu) и способности испускать при распаде α -частицы. В р. Енисей плутоний поступает, помимо глобальных выпадений, со сбросами Горно-химического комбината (ГХК) [1, 2]. Предыдущие исследования содержания плутония в р. Енисей проводились после остановки прямоточных реакторов на ГХК в период с 1993 по 2000 гг. [3–9]. Из публично доступных источников известно, что с 2000 по 2018 гг. произошли значительные изменения в производ-

ственной деятельности ГХК, в частности, был остановлен последний реактор в апреле 2010 г., произошел запуск производства МОКС-топлива и др., что привело к изменению изотопного состава и количества плутония в сбросах ГХК в открытую гидрографическую сеть [2]. Цель нашей работы: оценить содержание и соотношение изотопов плутония в донных отложениях (ДО) и биоте р. Енисей в период до и после изменения изотопного состава и количества плутония в сбросах ГХК в речную систему, а также на основе сравнительной оценки выбрать представителей гидробионтов р. Енисей, которые в большей мере отражают поступление плутония в Енисей и подходят для мониторинга загрязнения реки его изотопами.

Пробы ДО и гидробионтов собирали в р. Енисей в октябре 2012 и 2018 гг. вблизи правого берега реки, вдоль косы Атамановской ($56^{\circ}23'22''$ с.ш., $93^{\circ}37'11''$ в.д.), на расстоянии около 5 км от места радиоактивных сбросов ГХК (рис. 1). Участок отбора выбран на том основании, что через него проходит поток радиоактивных сбросов ГХК, а также потому, что на данном участке присутствуют массовые представители биоты Енисея. Фоновые пробы ДО отбирали в р. Енисей на расстоя-

¹ Институт биофизики, Красноярский научный центр Сибирского Отделения Российской академии наук, Красноярск, Россия

² Институт геологии и минералогии Сибирского Отделения Российской академии наук, Новосибирск, Россия

*E-mail: t_zotina@ibp.ru



Рис. 1. Карта отрезка р. Енисей с указанием мест отбора проб донных отложений и биоты: 1 – место отбора фоновых проб, 2 – место отбора, расположенное на расстоянии около 5 км ниже радиоактивных сбросов ГХК. ГЭС – плотина Красноярской гидроэлектростанции. Для создания рисунка был использован фрагмент космического снимка из GoogleEarth.

нии около 100 км выше места радиоактивных сбросов (рис. 1). Пробы ДО отбирали из поверхностного слоя глубиной около 15 см. Пробы водного мха (*Fontinalis antipyretica* Hedw.), прикрепленного к камням, собирали со дна реки на глубине около 1–1.5 м с лодки. Зообентос (амфипод и личинок ручейников с домиками) собирали с проб водного мха. Пробы амфипод состояли, в основном, из двух видов: *Eulimnogammarus viridis* Dybowski и *Pallaseopsis cancelloides* Gerstfeldt, пробы личинок ручейников – из одного вида: *Apatania crymophila* McLachlan [10]. Пробы ДО и биоты сушили и озоляли при 450°C в муфельной печи.

Минеральный состав проб ДО и домиков ручейников определяли методом рентгеноструктурного анализа, как описано ранее в [11]. Анализ выполнен в ИГМ СО РАН (Новосибирск). Содержание γ -излучающих радионуклидов в пробах золы измеряли с помощью гамма-спектрометра с полупроводниковым германиевым детектором GX2320 (Canberra), как описано ранее [10], в ИБФ СО РАН (Красноярск). Определение содержания изотопов плутония в пробах золы ДО и биоты проводилось по “Методике выполнения измерений удельной активности изотопов плутония (239 + 240, 238) в пробах почв, грунтов, донных отложений альфа-спектрометрическим методом с радиохимической подготовкой (ВИМС, 2013)”. В качестве внутреннего стандарта использовалась метка ^{242}Pu эталонной активности. Выделенный из проб плутоний электролитически осаждался на мишень из нержавеющей стали и

измерялся на 8-канальном альфа-спектрометре ALPHA-ENSEMBLE-8-RM с низкофоновыми кремниевыми детекторами ENS-U300 (Ametek, “ORTEC”). Случайная составляющая погрешности определения активности плутония составляла 10–15% (0.95%, 2 σ), предел обнаружения – 0.001 Бк. Анализ выполнен в ИГМ СО РАН (Новосибирск). Результаты измерений приведены в Бк/кг сухого веса. В качестве ошибок результатов указаны погрешности измерения (стандартные отклонения).

По содержанию изотопов плутония пробы ДО и биоты Енисея, собранные в 2012 г., ранжируются следующим образом: ДО = водный мох > ручейники > амфиподы = фоновые ДО для $^{239+240}\text{Pu}$ и ручейники > ДО > водный мох > фоновые ДО \geq амфиподы для ^{238}Pu (табл. 1). Содержание ^{238}Pu и $^{239+240}\text{Pu}$ в пробах ДО и водного мха, собранных нами в 2012 г., сравнимо с величинами, полученными для аналогичных проб, собранных в р. Енисей в 1998–2000 гг. [4, 5, 8], и отражает равновесное состояние экосистемы в 2012 г. Высокое содержание ^{238}Pu в пробах ручейников, 83% массы которых составляет минеральная фракция за счет домиков личинок, сделанных из минеральных частиц, вероятно, обусловлено тем, что ^{238}Pu , находится в ДО в виде микрочастиц. Ранее в ДО и пойменных почвах р. Енисей были обнаружены радиоактивные частицы с аномально высоким содержанием ^{238}Pu относительно содержания $^{239+240}\text{Pu}$ [6, 12]. Минеральный состав проб ДО, исследованных нами, является типичным для

Таблица 1. Содержание изотопов плутония (^{238}Pu и $^{239+240}\text{Pu}$) и ^{137}Cs , и соотношение изотопов плутония (238/239, 240) в пробах биоты и поверхностных (0–15 см) донных отложений, собранных в р. Енисей вблизи радиоактивных сбросов и на фоновом участке. Данные для 2012 и 2018 гг. получены в рамках данной работы, для 1998–2000 гг. – другими авторами [4, 5, 8]

Вид пробы	Год	Удельная активность, Бк/кг сух. веса, $\pm 1\text{ sd}$			$^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$
		$^{239+240}\text{Pu}$	^{238}Pu	^{137}Cs	
Водный мох	2012	1.99 ± 0.10	0.052 ± 0.006	41.0 ± 1.3	0.03
Амфиподы		0.14 ± 0.02	0.010 ± 0.006	23.8 ± 1.0	0.07
Ручейники		1.31 ± 0.07	0.32 ± 0.026	175.7 ± 5.9	0.25
ДО		2.12 ± 0.11	0.11 ± 0.02	229.7 ± 9.9	0.05
ДО, фон	2018	0.15 ± 0.02	0.019 ± 0.005	1.23 ± 0.26	0.13
Водный мох		25.92 ± 1.30	5.63 ± 0.28	36.1 ± 1.7	0.22
Амфиподы		1.02 ± 0.06	0.29 ± 0.03	6.8 ± 0.4	0.29
Ручейники		4.43 ± 0.22	0.96 ± 0.08	92.8 ± 4.0	0.22
ДО	2000	14.42 ± 0.72	2.69 ± 0.13	177.2 ± 6.9	0.19
ДО, фон		0.49 ± 0.03	0.07 ± 0.01	<0.4	0.14
ДО [8]		$0.9\text{--}14.2$	$<0.01\text{--}1.2$	$254\text{--}1060$	$0.057\text{--}0.085$
ДО [5]		$12\text{--}41$	$1.1\text{--}5.9$	$413\text{--}2104$	$0.09\text{--}0.14$
Водный мох [4]	1998	4.1 ± 0.6	0.5 ± 0.1	660 ± 40	0.12

Примечание. 1 sd – это среднеквадратичное отклонение.

данного участка реки [11]. Предварительное исследование показало, что минеральный состав проб ДО и доминок ручейников отличаются более высоким относительным содержанием кварца в ДО и слюды – в домиках ручейников. Во время работы реактора с замкнутым контуром охлаждения, до середины апреля 2010 г., поступление плутония в Енисей было обусловлено сбросами ^{239}Pu ($T_{1/2} = 2.355$ сут), продуктом распада которого является ^{239}Pu [2]. После остановки реактора, в 2011–2012 гг., наличие плутония в сбросах ГХК не указывается. С 2013 г. в сбросах ГХК появился ^{239}Pu , что совпадает с началом работ по производству МОКС-топлива. В 2013–2018 гг. объем сбросов ^{239}Pu в речную систему варьировался в диапазоне 45.2–724 МБк/год, достигнув максимума в 2018 г. В 2018 г. в сбросах ГХК появился ^{238}Pu на уровне 279 МБк/год [2]. Содержание плутония в пробах гидробионтов и ДО, собранных в р. Енисей в 2018 г., значительно возросло по сравнению с 2012 г. (табл. 1). Пробы гидробионтов и ДО, собранные в р. Енисей в 2018 г., можно ранжировать по содержанию изотопов плутония следующим образом: водный мох > ДО > > ручейники > амфиподы > фоновые ДО (табл. 1). Наиболее высокое содержание плутония в водном мхе в 2018 г. свидетельствует об абсорбции плутония мхом из воды, тогда как, судя по равному содержанию $^{239+240}\text{Pu}$ во мхе и ДО, в 2012 году плутоний, возможно, поступал в мох из ДО. Таким образом, изменение потока плутония в реку привело к перераспределению его содержания в компонентах речной экосистемы.

В отличие от плутония, ежегодные сбросы ^{137}Cs ($T_{1/2} = 30.07$ лет) в р. Енисей варьировались в пределах одного порядка величин с конца 1990-х годов [2, 10]. По содержанию ^{137}Cs , пробы ДО и гидробионтов р. Енисей, собранные в 2012 и 2018 гг., ранжируются одинаково: ДО > ручейники > водный мох > амфиподы > фоновые ДО. Следовательно, депозиты ^{137}Cs находятся в ДО р. Енисей, а среди гидробионтов наиболее высоким содержанием радиоцезия характеризуются пробы ручейников за счет высокого содержания в них минеральной фракции, как было упомянуто выше. Наименьшее содержание ^{137}Cs и плутония зарегистрировано в амфиподах, которые, по всей видимости, накапливают плутоний и цезий трофическим путем, питаясь, как и личинки ручейников, эпибионтами водного мха (диатомеями и др.). Обнаружение плутония в амфиподах и ручейниках, создает вероятность его переноса по трофической цепи к рыбам.

Соотношение изотопов плутония в пробах окружающей среды позволяет оценить вклад различных источников в общий уровень загрязнения экосистемы. В 2012 г. соотношения изотопов плутония (238/239, 240) в пробах ДО и гидробионтов р. Енисей, за исключением проб ручейников, были близки к средней величине 0.034, полученной для проб ДО р. Обь, р. Енисей и Карского моря, собранных в 1993 г. [3], к глобальному фону, 0.027 [11], а также к нижней границе диапазона соотношений, полученных для проб ДО, собранных в р. Енисей в 1999–2000 гг. [4, 5, 7]. В 2018 г., когда возобновилось поступление ^{238}Pu в р. Енисей, соотношение изотопов плутония (238/239, 240) в

аналогичных пробах возросло в 4–8 раз по сравнению с 2012 г. При этом соотношение изотопов плутония в пробах ручейников осталось неизменным, возможно, из-за того, что плутоний встроен в домики ручейников в виде микрочастиц, как было упомянуто выше.

В результате проведенного исследования оценен современный уровень содержания изотопов плутония в пробах ДО и гидробионтов р. Енисей, отобранных вблизи места сбросов ГХК. Показано увеличение содержания и соотношения изотопов плутония ($^{238}\text{Pu}/^{239, 240}\text{Pu}$) в пробах ДО и гидробионтов после возобновления сбросов плутония в Енисей. Впервые показано, что содержание изотопов плутония в ДО и гидробионтах р. Енисей значительно различается, что позволяет оценить потоки радионуклидов в экосистеме и выделить представителей биоты (водный мох и личинки ручейников с домиками), которые наряду с ДО можно использовать в качестве эффективных индикаторов загрязнения экосистемы изотопами плутония.

ИСТОЧНИК ФИНАНСИРОВАНИЯ

Грант РФФИ и Красноярского краевого Фонда поддержки научной и научно-технической деятельности № 18–44–240003; госзадание ИБФ СО РАН и ИГМ СО РАН.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Vakulovsky S.M., Kryshev I.I., Nikitin A.I., et al.* // J. Environ. Radioactiv. 1995. V. 29. P. 225–236.

2. Шершаков В.М., Булгаков В.Г., Крышев И.И. и др. (ред.) Радиационная обстановка на территории России и сопредельных государств в 2009–2018 году. Ежегодник. Обнинск: НПО “Тайфун”, 2010–2019. <http://www.typhoon.obninsk.ru/products/pollution-media.php>
3. *Baskaran M., Asbill S., Santschi P., et al.* // Appl. Radiat. Isot. 1995. V. 46. P. 1109–1119.
4. *Болсуновский А.Я., Ермаков А.И., Бургер М. и др.* // Радиационная биология. Радиоэкология. 2002. Т. 42. № 2. С. 194–199.
5. *Болсуновский А.Я., Ермаков А.И., Мясоедов Б.Ф. и др.* // ДАН. 2002. Т. 387. С. 233–236.
6. *Сухоруков Ф.В., Дегерменджи А.Г., Белолуццкий В.М. и др.* Закономерности распределения и миграции радионуклидов в долине реки Енисей. Новосибирск: Изд-во СО РАН, 2004. 290 с.
7. *Lind O.C., Oughton D.H., Salbu B., et al.* // Earth. Planet. Sci. Lett. 2006. V. 251. P. 33–43.
8. *Strandberg W.J.F., Brown J.E., Dowdall M., et al.* // J. Environ. Radioactiv. 2009. V. 100. P. 1109–1120.
9. *Кузнецов Ю.В., Легин В.К., Струков В.Н. и др.* // Радиохимия. 2000. Т. 42. С. 470–477.
10. *Zotina T.A., Trofimova E.A., Dementyev D.V.* // J. Environ. Radioactiv. 2019. V. 208–209. Article number: 106028.
11. *Zotina T.A., Trofimova E.A., Medvedeva M.Yu., Dementyev D.V., Bolsunovsky A.Ya.* // Environ. Toxicol. Chem. 2015. V. 34. P. 2310–2321.
12. *Bolsunovsky A., Melgunov M., Chuguevskii A., Lind O.C., Salbu B.* // Sci. Rep. 2017. V. 7. Article number: 11132.
13. *Łokas E., Zawierucha K., Swanek A., Szufa K., Gaca P., Mietelski J.W., Tomankiewicz E.* // Sci. Rep. 2018. V. 8. Article number: 10802.

COMPARATIVE ESTIMATION OF CONTENT OF PLUTONIUM (^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$) AND RADIOCESIUM (^{137}Cs) IN BOTTOM SEDIMENTS AND HYDROBIONTS OF THE YENISEI RIVER

T. A. Zotina^{a, #}, M. S. Melgunov^b, D. V. Dementyev^a, and Yu. V. Alexandrova^a

^a Institute of Biophysics, Krasnoyarsk Science Center, Siberian Branch, Russian Academy of Sciences, Krasnoyarsk, Russian Federation

^b Institute of Geology and Mineralogy, Siberian Branch, Russian Academy of Sciences, Novosibirsk, Russian Federation

[#]E-mail: t_zotina@ibp.ru

Represented by Academician of the RAS Degermendzhi A.G. March 10, 2020 г.

Contents of isotopes of plutonium (^{238}Pu and $^{239, 240}\text{Pu}$) and ^{137}Cs in samples of bottom sediments (BS) and hydrobionts (water moss, amphipods, caddisfly larvae with casings), collected in the Yenisei River in the vicinity of the radioactive discharge site of the Mining-and-Chemical Combine (MCC) in 2012 and 2018, were estimated comparatively. Increase in content and ratios of activity concentrations of isotopes of plutonium ($^{238}\text{Pu}/^{239, 240}\text{Pu}$) in samples of BS and hydrobionts was shown, after the resumption of plutonium discharges to the Yenisei due to the start of MOX fuel production. Background content and ratio of isotopes of plutonium in BS of the Yenisei was estimated for the first time. Hydrobionts and BS were ranged according to the content of plutonium and ^{137}Cs differently: highest content of ^{137}Cs was registered in BS, plutonium – in water moss. Contents of plutonium in hydrobionts of the Yenisei River varied considerably, that allows us to distinguish representatives of biota (water moss and caddisfly larvae with casings), which, along with BS, can be used as effective indicators of ecosystem pollution with plutonium.

Keywords: *Fontinalis antipyretica*, *Apatania crymophila*, plutonium, radiocesium, zoobenthos