

ФОРМЫ НАХОЖДЕНИЯ ИСКУССТВЕННЫХ РАДИОНУКЛИДОВ В ПОЧВАХ РАЙОНА РАСПОЛОЖЕНИЯ КОЛЬСКОЙ АЭС

© 2021 г. М. Б. Попова^{а, *}, Т. А. Горяченкова^{а, **}, А. П. Борисов^а, Е. И. Казинская^а,
Е. А. Лавринович^а, Д. В. Манахов^б

^аИнститут геохимии и аналитической химии им. В.И. Вернадского РАН, ул. Косыгина, 19, Москва, 119991 Россия

^бМосковский государственный университет им. М.В. Ломоносова, Факультет почвоведения,
Ленинские горы, Москва, 119991 Россия

*e-mail: marbpop@gmail.com

**e-mail: goryach@geokhi.ru

Поступила в редакцию 01.11.2020 г.

После доработки 11.01.2021 г.

Принята к публикации 20.01.2021 г.

В статье описаны результаты исследования форм нахождения ^{137}Cs , ^{90}Sr , $^{239,240}\text{Pu}$ и ^{237}Np в разных генетических горизонтах иллювиально-железистых подзолов района расположения Кольской атомной электростанции (КоАЭС). Данные были получены путем искусственного внесения растворов изотопов в почвенные образцы. Сравнение полученных результатов с литературными данными о распределении этих радионуклидов в почвах других регионов России показало, что в северных иллювиально-железистых подзолах они значительно подвижнее, чем в почвах других регионов России: суммарно в водорастворимую и обменную формы переходит до 33% ^{137}Cs , до 82% ^{90}Sr , до 39% $^{239,240}\text{Pu}$ и до 69% ^{237}Np .

Ключевые слова: подзолы, формы нахождения, радионуклиды

DOI: 10.31857/S001675252110006X

ВВЕДЕНИЕ

Для обеспечения безопасности населения и устойчивости экосистем в условиях потенциального воздействия ионизирующего излучения необходимо регулярно проводить радиоэкологический мониторинг. Атомные электростанции и прочие предприятия ядерно-топливного цикла имеют развитую сеть внешнего дозиметрического контроля, но их природоохранные службы не занимаются детальным изучением поведения радионуклидов в окружающей среде. Между тем для составления корректного прогноза радиационной обстановки в случае внештатной ситуации важно понимать особенности миграции радионуклидов в компонентах окружающей среды и оценивать возможность их попадания в живые организмы. Геохимическое поведение радионуклидов в значительной степени определяется их формами нахождения в почве.

В геохимии, почвоведении и радиоэкологии широко применяются методы изучения форм нахождения радионуклидов, основанные на селективном растворении органических и неорганических соединений почв, в составе которых могут находиться радионуклиды — методы последовательной экстракции (Филонова и др., 2014; Пав-

лоцкая, 1997; Горяченкова и др., 2005; Goryachenkova et al., 1991). Полученные результаты по формам нахождения радионуклидов дают возможность прогнозировать их поведение в почвах в зависимости от основных почвенных свойств, типа выпадений, в составе которых радионуклиды поступают в окружающую среду; а также химических свойств самих радионуклидов.

В естественных условиях формы нахождения радионуклидов можно изучать только при условии их достаточного для эксперимента содержания в почвах. Если же содержание радионуклида в почвах мало, для изучения форм нахождения используют метод искусственного внесения радионуклидов в образцы. За прошедшие десятилетия был опубликован ряд работ, посвященных изучению поведения радионуклидов в почвах с внесением изотопов в условиях лабораторных и полевых экспериментов, который показал сопоставимость результатов, получаемых с помощью этих методов (Санжарова и др., 2005; Алексахин, 1992; Лавринович и др., 2014; Павлоцкая и др., 2005).

В научной литературе приведены данные по формам нахождения радионуклидов в разных типах почв (табл. 1). Так, для ^{137}Cs характерно закрепление в почве по механизмам необменного

Таблица 1. Формы нахождения радионуклидов в разных типах почв, %

| Радионуклид | Водорастворимая H ₂ O | Обменная 1 М CH ₃ COONH ₄ , pH 4.8 | Подвижная 1 М HCl | Кислоторастворимая 6 М HCl | Остаток |
|-----------------------|-------------------------------------|---|----------------------|-------------------------------|-------------|
| ¹³⁷ Cs | 0.1–0.7 | 5.7–13.3 | 1.1–7.9 | 16.3–20.9 | 14.2–76.8 |
| ^{239,240} Pu | 0.5–3.0 | 2.5–19.3 | 2.0–18.2 | 16.5–68.0 | 14.2–69.2.0 |
| ²³⁷ Np | 7–56.7 | 31.7–36.7 | 14.0–29.1 | 6.5–26.0 | 1.2–6.5 |

*По Алексахину Р.М. и др., 1992; Васильевой А.Н. и др., 2008; Кундузбаевой А.Е. и др., 2016; Санжаровой Н.И. и др., 2005; Павлоцкой Ф.И., 1974; Павлоцкой Ф.И. и др., 1997; Павлоцкой Ф.И. и др., 2003; Семенкову И.Н. и др., 2015; Лавринович Е.А. и др., 2014; Goryachenkova T.A. et al., 1991.

поглощения, при этом ключевую роль играет его фиксация в межпакетном пространстве вторичных глинистых минералов, главным образом гидрослюд и представителей монтмориллонитовой группы (Алексахин, 1992; Семенков и др., 2015).

⁹⁰Sr является одним из наиболее подвижных в окружающей среде радионуклидов, он может поглощаться растениями из почвы в 90 раз интенсивнее, чем ¹³⁷Cs (Рачкова и др., 2015). Ведущим механизмом закрепления ⁹⁰Sr в разных типах почв является ионный обмен, а большая часть содержащегося в почвах ⁹⁰Sr найдена в обменной форме (Алексахин, 1992; Кундузбаева др., 2016). Главный фактор, влияющий на миграцию этого изотопа – наличие в растворе катионов, конкурирующих с ⁹⁰Sr за обменные места в почвенно-поглощающем комплексе. Чаще всего в этой роли выступают его изотопный (стабильный стронций) и неизотопный (кальций) носители. В ряде изученных ранее типах почв коэффициент селективной сорбции радиостронция к кальцию больше единицы, что указывает на то, что ⁹⁰Sr сорбируется прочнее своего неизотопного носителя (Павлоцкая, 1974).

²³⁹Pu – наименее подвижный в почве трансурановый элемент. Для ²³⁹Pu характерен необменный тип поведения в почве, большая часть его сосредоточена в труднорастворимой форме (Горяченкова и др., 2005; Павлоцкая, 1997; Goryachenkova T.A. et al., 1991). Плутоний ассоциируется с аморфными гидроксидами алюминия и железа, а также низкомолекулярными гумусовыми кислотами, входящими в состав органоминеральных пленок, покрывающих минеральные частицы почв (Павлоцкая и др., 2003; Лавринович и др., 2014; Novikov et al., 2016; Горяченкова и др., 2009).

Исследования, посвященные поведению ²³⁷Np в почве, крайне немногочисленны. Установлено, что ²³⁷Np аналогично ⁹⁰Sr проявляет большую подвижность, а формы его нахождения зависят от типа почв. Как правило, большая часть этого радионуклида сосредоточена в водорастворимой и обменной формах. Отмечено активное участие глинистых минералов в закреплении нептуния и

важность определения их содержания в почвах (Лавринович и др., 2014; Nilsson, Carlsen, 1989).

В почвах северных регионов материковой Арктики, в том числе подзолах Кольского полуострова, формы нахождения таких радионуклидов как ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr, ^{239,240}Pu и ²³⁷Np не изучены. Между тем ¹³⁷Cs и ⁹⁰Sr присутствуют в штатных выбросах Кольской атомной электростанции (КоАЭС), а попадание ^{239,240}Pu и ²³⁷Np в окружающую среду возможно в случае аварии на КоАЭС. Также на Кольском полуострове расположен ряд объектов потенциальной радиационной опасности (предприятия атомного морского флота и предприятия, осуществляющие обращение с радиоактивными отходами), деятельность которых может привести к загрязнению окружающей среды различными радионуклидами, в том числе трансурановыми.

Целью настоящего исследования является сравнительное экспериментальное изучение подвижности ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr, ^{239,240}Pu и ²³⁷Np в геохимически контрастных горизонтах типичного подзола, отобранного в 30 километрах к северо-западу от Кольской атомной электростанции.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Объекты и методы исследования

КоАЭС расположена за Полярным кругом в Мурманской области рядом с озерами Имандра и Верхняя Пиренга, на расстоянии 33 км к северу от г. Кандалакша и 60 км к югу от г. Мончегорска. На Кольском полуострове выпадает в среднем около 400 мм осадков в год. Преобладающими типами почв в этом регионе являются подзолы иллювиально-железистые с промывным режимом (Фридланд и др., 1977). Доминирующий тип лесных сообществ в районе исследований – сосняки чернично-лишайниковые. Объектами исследования для сравнительного изучения форм нахождения радионуклидов служили образцы подзола иллювиально-железистого песчаного на морене, отобранные из 3-х генетических горизонтов одного почвенного разреза, заложенного на фоновой площадке в 30 км от КоАЭС. Образцы были

Таблица 2. Схема выделения физико-химических форм радионуклидов в почве методом последовательной экстракции

| Форма, экстрагент | Состав соединений радионуклидов |
|--|--|
| | “Доступные” формы соединений |
| Водорастворимая (H ₂ O дистиллированная) | Катионы радионуклидов, водорастворимые комплексы с органическими низкомолекулярными, фульвокислотами, и неорганическими соединениями, гидроксокомплексы и др. |
| Обменная (1 М CH ₃ COONH ₄ , рН 4.8) | Радионуклиды, входящие в состав обменных соединений на поверхности почвенных частиц. |
| | “Недоступные” формы соединений |
| Подвижная (1 М HCl) | Радионуклиды ассоциированные с аморфными и слабокристаллизованными оксидами и гидроксидами металлов (Al, Fe, Mn и др.), частично сорбированные органическим веществом (гумусовыми кислотами, связанными с полуторными оксидами), частично сорбированные почвенными минералами, но не захваченные кристаллической решеткой. |
| Кислоторастворимая (6 М HCl) | Радионуклиды, необменно сорбированные на поверхности кристаллической решетки глинистых минералов. |
| Остаток после извлечения предыдущих фракций | Радионуклиды, прочносвязанные с минеральной частью почв, “захваченные” кристаллической решеткой глинистых минералов, например ¹³⁷ Cs, фиксированные в межпакетном пространстве, связанные с гуминами. |

* По Павлоцкой и др., 2003; Горяченковой и др., 2005. На доступные и недоступные формы нахождения делят по возможности их поглощения растениями.

отобраны из следующих горизонтов: 1 – элювиальный горизонт Е (5–10 см), серовато-белесый, представленный рыхлым и бесструктурным песком, являющийся горизонтом разрушения и вымывания минеральных частиц и химических элементов, залегающий непосредственно под лесной подстилкой; 2 – иллювиальный горизонт В1f (10–18 см), коричневато-ржаво-бурый, песчаный, бесструктурный. Этот горизонт образован вследствие вымывания и накопления материала из выше расположенного горизонта, обогащен коллоидно-дисперсными глинистыми минералами и соединениями R₂O₃; 3-горизонт С (40–54 см) – почвообразующая порода, светло-серая со слабым зеленоватым оттенком, по гранулометрическому составу близок к разнозернистому песку. Почвенные горизонты, образцы из которых были взяты для исследования, обладают максимальными различиями по химическим и морфологическим свойствам (Морозова и др., 2008).

Почвенные образцы высушены и просеяны через сито с диаметром пор 1 мм. Физико-химические свойства почв были определены стандартными методами: содержание гумуса – методом Тюрина; рН водной суспензии (рН H₂O) и рН солевой суспензии (рН KCl) – потенциометрически; гидролитическая кислотность – по Каппену в модификации ЦИНАО (обработка почв 1 М CH₃COONa); содержание подвижных форм калия – по Кирсанову; гранулометрический состав – методом лазерной дифракции (Воробьева, 1998).

Радионуклиды ¹³⁷Cs и ²³⁹Pu вносили в одну воздушно-сухую навеску почв, ⁹⁰Sr и ²³⁷Np – в отдельные навески. Масса каждой навески составляла 20 г. Азотнокислые растворы, содержащие радионуклиды, внесены в минимальных объемах в следующие концентрации (в скобках указаны активности внесенных меток): ¹³⁷Cs – 0.1 мл (6000 Бк), ⁹⁰Sr – 0.5 мл (2000 Бк), ²³⁹Pu – 0.03 мл (1500 Бк), ²³⁷Np – 0.3 мл (3.3 × 10⁻⁵ г/мл). В почвы с внесенными радионуклидами регулярно добавляли дистиллированную воду в количестве около 4 мл, добиваясь влажной консистенции, и тщательно перемешивали. По мере высыхания воду добавляли снова. Перемешивание длилось 4 месяца.

Последовательная экстракция форм нахождения радионуклидов проводилась с использованием схемы, приведенной в табл. 2 (Ф.И. Павлоцкая и др., 2003; Горяченкова и др., 2005). Экстракция форм радионуклидов проводили однократно из навески 2 г, соотношение твердой и жидкой фаз 1 : 10, время контакта – 1 ч при комнатной температуре.

Удельные активности ¹³⁷Cs в почвенных вытяжках измеряли на гамма-спектрометре “Сap-beta” с широкополосным германиевым блоком детектирования, ⁹⁰Sr и ²³⁹Pu – на альфа-бета радиометре “УМФ-2000” из отдельных аликвов почвенных вытяжек; Активность ²³⁷Np определяли мембранно-люминесцентным методом с использованием кристаллофосфоров и последующим измерением на фотометрическом анализаторе ЛФФ-5 (Новиков и др., 2009).

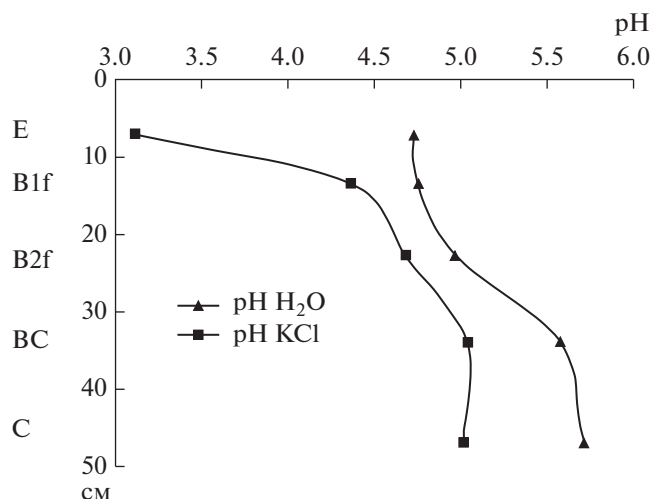


Рис. 1. pH H₂O и pH KCl в почве.

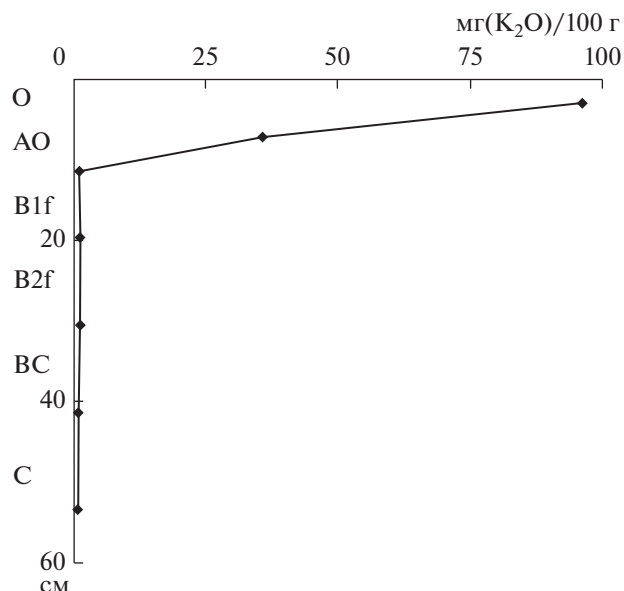


Рис. 2. Профильное распределение подвижных форм калия в почве.

ХАРАКТЕРИСТИКА ОБРАЗЦОВ И ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ ЭКСПЕРИМЕНТА

Физико-химические параметры образцов

Физико-химические характеристики исходных образцов подзола приведены в табл. 3, на рис. 1 и 2. Почвы обладают кислой средой, pH водных вытяжек составляют в горизонтах E, B₁f и C 4.1, 5.0 и 5.8 соответственно, значения pH солевых суспензий приведены на рисунке 1 (рис. 1). Гидролитическая кислотность, характеризующая общую кислотность почвы, имеет более низкие значения и составляет в горизонтах E, B₁f и C 3.1, 4.5 и 0.9 ммоль/100 г соответственно. По значениям актуальной и гидролитической кислотности изучаемые почвы относятся к сильнокислым.

В исследуемом типе почв четко выражена элювиально-иллювиальная дифференциация профиля по содержанию органического вещества с выносом его из элювиального подзолистого горизонта и накоплением в иллювиальном горизонте B₁f (табл. 3). Почва относится к подзолам иллюви-

ально-среднегумусовым, так как содержание гумуса в горизонте B₁f находится в пределах 1–3%, при этом органическое вещество представлено в основном низкомолекулярными органическими соединениями неспецифической природы и фульвокислотами (Морозова и др., 2008) и характеризуется легким гранулометрическим составом, что является типичным признаком для подзолов. В целом, почву фоновой площадки можно охарактеризовать как обладающую кислой реакцией среды, бедную органическим веществом, обменными катионами и илом, что характерно для подзолов северных регионов Кольского полуострова (Копщик и др., 2007; Попова и др., 2020).

Исходная активность радионуклидов в изученных образцах фоновой площадки КоАЭС не превышает фоновых значений, за исключением ^{239,240}Pu (табл. 3). По литературным данным активность радионуклидов в почвах Северного по-

Таблица 3. Некоторые физико-химические характеристики почв и содержание радионуклидов

| Горизонт (глубина, см) | Плотность сложения, г/см ³ | Гумус | Ил (<0.001 мм) | Гидролитическая кислотность, ммоль/100 г | Подвижный К, мг/100г | ¹³⁷ Cs | ⁹⁰ Sr | ^{239,240} Pu |
|--------------------------|---------------------------------------|-------|----------------|--|----------------------|-------------------|------------------|-----------------------|
| | | % | | | | Бк/кг | | |
| E (5–10) | 1.5 | 0.4 | 1.0 | 3.1 | 0.7 | 7.2 | 3.7 | – |
| B ₁ f (10–18) | 1.36 | 1.4 | 1.4 | 4.5 | 1.0 | 2.3 | 2.9 | 10.7 |
| B ₂ f (18–30) | 1.65 | 1.3 | 1.3 | 2.1 | 0.8 | 0.9 | – | – |
| BC (30–40) | 1.69 | 0.1 | 1.2 | 1.1 | 0.8 | 0.8 | – | – |
| C (40–54) | 1.78 | 0.1 | 1.5 | 0.9 | 0.6 | 0.9 | 3.0 | – |

* Прочерк означает, что измерение удельной активности в этом горизонте не проводилось.

Таблица 4. Результаты эксперимента по внесению растворов изотопов в почвенные образцы

| Радионуклид | Горизонт | Фракция | Активность, Бк | Погрешность, Бк | Доля фракции, % | Химический выход, % |
|-----------------------|----------|---------|----------------|-----------------|-----------------|---------------------|
| ^{137}Cs | E | F1 | 8.3 | 0.3 | 3 | 92.7 |
| | | F2 | 38.9 | 1.4 | 14 | |
| | | F3 | 16.7 | 0.6 | 6 | |
| | | F4 | 64.0 | 4.0 | 23 | |
| | | F5 | 150.2 | 9.0 | 54 | |
| | B1f | F1 | 2.1 | 0.1 | 1 | 68.6 |
| | | F2 | 28.8 | 1.0 | 14 | |
| | | F3 | 26.8 | 0.9 | 13 | |
| | | F4 | 113.2 | 3.8 | 55 | |
| | | F5 | 35.0 | 1.4 | 17 | |
| | C | F1 | 22.4 | 0.9 | 9 | 83.1 |
| | | F2 | 59.8 | 2.4 | 24 | |
| | | F3 | 54.9 | 2.2 | 22 | |
| | | F4 | 72.3 | 2.2 | 29 | |
| | | F5 | 39.9 | 1.5 | 16 | |
| $^{239,240}\text{Pu}$ | E | F1 | 2.0 | 0.3 | 3.0 | 88.3 |
| | | F2 | 16.6 | 2.5 | 25.0 | |
| | | F3 | 13.2 | 2.0 | 20.0 | |
| | | F4 | 19.9 | 3.0 | 30.0 | |
| | | F5 | 13.9 | 2.1 | 21.0 | |
| | B1f | F1 | 0.5 | 0.1 | 1.0 | 64.9 |
| | | F2 | 18.5 | 2.8 | 38.0 | |
| | | F3 | 11.7 | 1.8 | 24.0 | |
| | | F4 | 15.6 | 2.3 | 32.0 | |
| | | F5 | 2.4 | 0.4 | 5.0 | |
| | C | F1 | 1.7 | 0.3 | 3.0 | 77.2 |
| | | F2 | 12.7 | 1.9 | 22.0 | |
| | | F3 | 20.9 | 3.1 | 36.0 | |
| | | F4 | 15.6 | 2.3 | 27.0 | |
| | | F5 | 7.0 | 1.0 | 12.0 | |
| ^{90}Sr | E | F1 | 58.3 | 8.7 | 64.0 | 91.1 |
| | | F2 | 16.4 | 2.5 | 18.0 | |
| | | F3 | 7.3 | 1.1 | 8.0 | |
| | | F4 | 4.6 | 0.7 | 5.0 | |
| | | F5 | 4.6 | 0.7 | 5.0 | |
| | B1f | F1 | 34.7 | 5.2 | 51.0 | 68.0 |
| | | F2 | 13.6 | 2.0 | 20.0 | |
| | | F3 | 10.9 | 1.6 | 16.0 | |
| | | F4 | 8.2 | 1.2 | 12.0 | |
| | | F5 | 0.7 | 0.1 | 1.0 | |
| | C | F1 | 50.0 | 7.5 | 61.0 | 82.0 |
| | | F2 | 14.8 | 2.2 | 18.0 | |
| | | F3 | 7.4 | 1.1 | 9.0 | |
| | | F4 | 5.7 | 0.9 | 7.0 | |
| | | F5 | 3.3 | 0.5 | 4.0 | |

Таблица 4. Окончание

| Радионуклид | Горизонт | Фракция | Активность, Бк | Погрешность, Бк | Доля фракции, % | Химический выход, % |
|-------------------|----------|---------|----------------|-----------------|-----------------|---------------------|
| ²³⁷ Np | E | F1 | 0.0000005960 | 0.000000029800 | 40 | 90.3 |
| | | F2 | 0.0000004321 | 0.000000021605 | 29 | |
| | | F3 | 0.0000000745 | 0.000000003725 | 5 | |
| | | F4 | 0.0000000298 | 0.000000001490 | 2 | |
| | | F5 | 0.0000003427 | 0.000000017135 | 23 | |
| | B1f | F1 | 0.0000002925 | 0.000000014625 | 25 | 70.9 |
| | | F2 | 0.0000003276 | 0.000000016380 | 28 | |
| | | F3 | 0.0000002457 | 0.000000012285 | 21 | |
| | | F4 | 0.0000001755 | 0.000000008775 | 15 | |
| | | F5 | 0.0000001170 | 0.000000005850 | 10 | |
| | C | F1 | 0.0000005632 | 0.000000028160 | 44 | 77.6 |
| | | F2 | 0.0000002304 | 0.000000011520 | 18 | |
| | | F3 | 0.0000001152 | 0.000000005760 | 9 | |
| | | F4 | 0.0000002816 | 0.000000014080 | 22 | |
| | | F5 | 0.0000000896 | 0.000000004480 | 7 | |

лушария, сформированная вследствие глобальных выпадений, колеблется в следующих пределах: ⁹⁰Sr – 5–12; ¹³⁷Cs – 3–10; ²³⁹, ²⁴⁰Pu – 0.2–2 и ²³⁷Np – до 1 Бк/кг (Павлоцкая и др., 1985; Novikov, 2010, Лавринович и др., 2014).

Результаты изучения форм нахождения радионуклидов, внесенных в разные генетические горизонты подзола

В табл. 4 приведены результаты, полученные при экспериментальном изучении форм нахождения радионуклидов в трех генетических горизонтах иллювиально-железистого подзола. В водной вытяжке содержание радионуклидов изменяется в ряду: ⁹⁰Sr (51–64%) > ²³⁷Np (25–44%) > ¹³⁷Cs (1–9%) ≥ ²³⁹Pu (1–3%). Содержание ¹³⁷Cs в водной вытяжке из разных горизонтов в целом оказалось выше, чем в почвах Европейской части России, при этом наиболее высокий результат получен для почвообразующей породы (горизонт C). Известно, что конкурентами ¹³⁷Cs за связь с почвенно-поглощающим комплексом (ППК) в подзолах являются, в первую очередь, ионы K⁺ (рис. 2). Это подтверждается и в нашем эксперименте: вниз по профилю почвы количество подвижного калия убывает, наименьшее его количество найдено в горизонте C, в то время как содержание не только водорастворимого, но и обменного ¹³⁷Cs в этом горизонте увеличивается (табл. 3).

В водорастворимой форме аналогично ¹³⁷Cs найдено незначительное количество ²³⁹Pu (1–3%). Основным процессом, определяющим поведение ²³⁹Pu в составе водорастворимой формы, является

гидролиз, в результате которого образуются продукты, способные поглощаться в разной степени прочности органоминеральной фазой почвы по необменному механизму (Павлоцкая, 1997). Наименьшее количество плутония в водорастворимой форме отмечено в иллювиальном горизонте (B1f), что, вероятно, связано с некоторой обогащённостью этого слоя почвы компонентами, способствующими более прочному закреплению ²³⁹Pu, а именно аморфными оксидами Fe и Al, органическим веществом и глинистыми минералами. Содержание ²³⁹Pu в водной вытяжке в эксперименте превысило известные на данный момент в литературе концентрации этого элемента в водорастворимой форме других типов почв (табл. 1). Это может свидетельствовать о весьма высокой миграционной подвижности, что может привести к повышенной доступности растениям ²³⁹Pu в подзолах. В отличие от ¹³⁷Cs и ²³⁹Pu, ⁹⁰Sr и ²³⁷Np во всех изученных генетических горизонтах подзола обнаружены преимущественно в водорастворимом состоянии, что указывает на высокую подвижность этих радионуклидов в данном типе почв. Для всех радионуклидов характерно снижение содержания в водной вытяжке из иллювиального горизонта B1f, что указывает на удерживающую роль органического вещества и аморфных оксидов Fe и Al, характерных для этого горизонта (табл. 4). Найденный в эксперименте процент водорастворимой формы ¹³⁷Cs превышает значения, известные по литературе для других почв в 2–5 раз, ²³⁹Pu – в 3–5 раз, ⁹⁰Sr – в 3–4 раза, однако по ²³⁷Np – превышает незначительно.

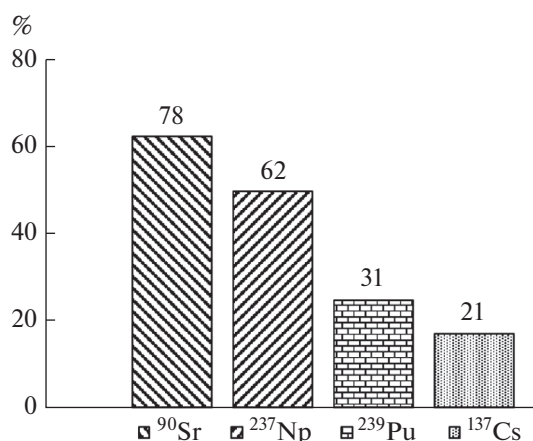


Рис. 3. Формы нахождения радионуклидов в доступных (водорастворимой и обменной) формах, %.

По доле ^{239}Pu , ^{90}Sr и ^{237}Np в водной вытяжках изученные генетические горизонты подзола располагаются в следующем порядке: $E \approx C > B1f$, а содержание ^{137}Cs выше в горизонте С по сравнению с горизонтами Е и В1f, что указывает на увеличение относительной подвижности этого радионуклида в нижней части почвенного профиля (табл. 4).

В обменной форме доля радионуклидов в генетических горизонтах подзола существенно выше, чем в других типах почв. В этой форме значительное количество ^{239}Pu найдено в горизонте В1f (38%), что вероятно обусловлено вхождением радионуклида в состав легкорастворимых органических низкомолекулярных соединений и фульвокислот, которые способствуют его миграции вниз по почвенному профилю. В результате в составе более прочносвязанных форм (кислоторастворимой и остатке) найдено всего 37–51% ^{239}Pu , что существенно ниже, чем по литературным данным фиксировано в дерново-подзолистых, черноземах и серых лесных почвах. Таким образом, в эксперименте показано, что в подзолах ^{239}Pu гораздо более подвижен, чем других типах почв России. В обменной форме подзолов найдено также более высокое содержание ^{90}Sr , ^{237}Np (18–29%) и ^{137}Cs (14–24%) по сравнению с активностью этих радионуклидов в составе обменной формы других типов почв.

Водорастворимую и обменную формы радионуклидов можно объединить в группу “доступные”. Радионуклиды, входящие в состав этих форм, могут поглощаться растениями, а также они достаточно мобильны и при определенных условиях переходят из одной формы в другую: обменная форма представляет собой главное депо для пополнения водорастворимой (Filgueiras et al., 2002; Федотов, Спиваков, 2011). Учитывать

количество радионуклидов, находящихся в составе этих двух форм, особенно важно с экологической точки зрения, так как они могут накапливаться растительностью, мигрировать по пищевым цепочкам либо вниз по почвенному профилю, достигая грунтовых вод и в конечном случае попадать в организм человека. На рис. 3 представлены усредненные значения концентраций радионуклидов в доступной растениям форме. Порядок расположения радионуклидов по проценту присутствия в доступных формах, уменьшается в эксперименте аналогично их водорастворимой форме: $^{90}\text{Sr} > ^{237}\text{Np} > ^{239}\text{Pu} > ^{137}\text{Cs}$. Полученная закономерность не противоречит литературным данным как для дерново-подзолистых почв, так и для почв других типов.

Для всех радионуклидов наблюдается более высокое содержание подвижной формы в иллювиальном горизонте В1f по сравнению с вышелегающим горизонтом, а для ^{239}Pu и ^{137}Cs отмечена тенденция увеличения их содержания и в горизонте С (табл. 4). В эту форму переходят радионуклиды, преимущественно связанные с аморфными оксидами и гидроксидами металлов (Al, Fe, Mn и др.), органическим веществом и другими соединениями (табл. 2). Таким образом, экспериментально установлено, что содержание радионуклидов в водорастворимой, обменной и подвижной формах в иллювиально-железистом подзоле выше, чем в других типах почв.

В составе малоподвижных и неподвижных (кислоторастворимая и остаток) форм доля радионуклидов в подзолах изменяется в следующем порядке: ^{137}Cs (45–77%) $>$ ^{239}Pu (37–51%) $>$ ^{237}Np (25–29%) $>$ $>$ ^{90}Sr (10–13%), что ниже, чем в других типах почв и указывает на потенциально повышенную подвижность радионуклидов в подзолах (табл. 1). По генетическим горизонтам в труднорастворимой форме высокое содержание ^{137}Cs (54%) найдено в горизонте Е, что, по всей вероятности, связано с обедненностью подзолистого горизонта полуторными оксидами и органическим веществом, из-за отмытости минеральных частиц почвы от пленок этих соединений. Это обстоятельство приводит к тому, что ^{137}Cs имеет доступ к глинистым минералам и входит в межпакетное пространство кристаллической решетки минералов почвы, в большей степени, чем в горизонте В1f и С.

Установленные экспериментальным путем особенности показали, что поведение радионуклидов в иллювиально-железистых подзолах определяется физико-химическими особенностями почв: кислой реакцией среды, повышающей подвижность радионуклидов, низким содержанием органического вещества и преобладанием подвижных фульвокислот в его составе, низким содержанием илистых частиц, в составе которых в

Таблица 5. Содержание радионуклидов в почвах, Бк/кг

| Горизонт, (глубина, см) | ¹³⁷ Cs | ⁹⁰ Sr | ^{239,240} Pu |
|-------------------------|-------------------|------------------|-----------------------|
| Е (5–10) | 7.2 | 3.7 | – |
| В _{1f} (10–18) | 2.3 | 2.9 | 10.7 |
| С (40–54) | 0.9 | 3.0 | – |

основном сосредоточены глинистые минералы, обладающие высокой поглотительной способностью. Наиболее прочно сорбируются подзолами ¹³⁷Cs и ²³⁹Pu, ²³⁷Np и ⁹⁰Sr более подвижны и легко-растворимы, поэтому последние два радионуклида представляют наибольшую опасность при загрязнении ими природной среды.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Впервые было проведено экспериментальное исследование форм нахождения техногенных радионуклидов в подзолах района расположения КоАЭС посредством искусственного внесения радиоизотопов в почвенные образцы. Оно показало, что в доступных формах их содержание уменьшается в ряду ⁹⁰Sr > ²³⁷Np > ²³⁹Pu > ¹³⁷Cs. Для всех радионуклидов найдены их более высокие доли содержания в водорастворимой и обменной формах по сравнению с другими почвами Европейской части России. В кислоторастворимой и прочносвязанной формах в иллювиально-железистых подзолах фиксируется меньшая доля радионуклидов, чем в других типах почв.

Метод искусственного внесения радионуклидов в лабораторных условиях имеет некоторую условность: после внесения добавок в почвенные образцы прошло 4 мес., и не исключено, что в будущем подвижность радионуклидов в них может снизиться. Тем не менее, полученные результаты позволяют судить о сравнительном поведении радионуклидов в разных типах почв и оценить влияние природных факторов на особенности их миграции в объектах природной среды.

В условиях бедности иллювиально-железистых подзолов органическим веществом, обменными катионами и глинистыми минералами техногенные радионуклиды могут проявить в них значительно большую подвижность, чем в ранее изученных почвах России. Соответственно, возникает повышенный риск накопления радионуклидов растительностью, а также на возможность их поступления в грунтовые воды и миграции по пищевым цепям в северных экосистемах.

Эксперимент показал, что физико-химические свойства почв (гранулометрический и химический состав генетических горизонтов почв, содержание и свойства органического вещества, определяющие тип почв), а также химические свойства самих радионуклидов определяют их

поведение в почвах. Таким образом, при долгосрочном прогнозировании геохимического поведения изученных в работе радионуклидов в подзолах северных Арктических регионов следует учитывать потенциальную опасность поступления их в биогеоценозы, связанную с высокой подвижностью радионуклидов в этих типах почв, особенно в первые месяцы после загрязнения.

Исследование выполнено при финансовой поддержке РФФИ в рамках научного проекта № 20-34-90103.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

Алексахин Р.М. (1992) *Сельскохозяйственная радиэкология*. М.: Экология, 400 с.

Бобовникова Ц.И., Вирченко Е.П., Коноплев А.В. (1990) Химические формы нахождения долгоживущих радионуклидов и их трансформация в почвах зоны аварии на ЧАЭС. *Почвоведение*. (10), 20–25.

Васильева А.Н., Круглов С.В., Козьмин Г.В. (2008) Содержание в почве и подвижность техногенных радионуклидов в районе размещения регионального хранилища радиоактивных отходов. *Радиационная биология. Радиэкология*. 48(1), 102–109.

Воробьева Л.А. (1998) Химический анализ почв. Изд. Московского университета, 272 с.

Горяченкова Т.А., Казинская И.Е., Кларк С.Б., Новиков А.П., Мясоедов Б.Ф. (2005) Методы изучения форм нахождения плутония в объектах окружающей среды. *Радиохимия*. 47(6), 550–555.

Горяченкова Т.А., Казинская И.Е., Кузовкина Е.В., Новиков А.П., Мясоедов Б.Ф. (2009) Изучение связи радионуклидов с коллоидным веществом почвенных растворов. *Радиохимия*. 51(2), 178–186.

Горяченкова Т.А., Казинская И.Е., Рылеева В.С. (2013) Миграционная подвижность плутония и америция в почвах в зависимости от добавок природных и модифицированных органических соединений. *Радиохимия*. 55(6), 553–560.

Копчик Г.Н., Лукина Н.В., Смирнова И.Е. (2007) Влияние атмосферного промышленного загрязнения на состав почвенных растворов подзолов. *Почвоведение*. (2), 223–234.

Кундузбаева А.Е., Кабдыракова А.М., Лукашенко С.Н., Ларионова Н.В. (2016) Формы нахождения ⁹⁰Sr в почвах испытательной площадки боевых радиоактивных веществ на семипалатинском испытательном полигоне. *Современные проблемы науки и образования* (4). URL: <http://www.science-education.ru/ru/article/view?id=25081> (дата обращения: 11.01.2021)

Лавринович Е.А., Горяченкова Т.А., Абрамова А.В. (2014) Формы нахождения нептуния в почвах. *Радиохимия*. 56(2), 184–188.

Морозова О.В., Заугольнова Л.Б., Исаева Л.Г., Костина В.А. (2008) Классификация бореальных лесов севера Европейской России. *Растительность России*. 1(13), 61–81.

Новиков А.П., Лавринович Е.А., Могилевский А.Н., Фабелинский Ю.И. (2009) Люминисцентный анализ подземных вод Карачаевского ореола загрязнения на

- содержание и формы нахождения в них нептуния. *Радиохимия*. **51**(5), 469-472.
- Павлоцкая Ф.И. (1974) *Миграция радиоактивных продуктов глобальных выпадений в почвах*. М.: Атомиздат, 215 с.
- Павлоцкая Ф.И., Федорова З.М., Емельянов В.В. (1985) Содержание плутония в почвах Советского союза. *Атомная энергия*. **59**(5), 382-383.
- Павлоцкая Ф.И. (1997) Поведение плутония в почвах уральского региона. *Экология*. (4), 268-272.
- Павлоцкая Ф.И., Горяченкова Т.А., Казинская И.Е., Новиков А.П., Кузнецов Ю.В., Легин В.К., Струков В.Н., Шишкунова Л.В., Мясоедов Б.Ф. (2003) Формы нахождения и миграционное поведение Pu и Am в пойменных почвах и донных отложениях реки Енисей. *Радиохимия*. **45**(5), 471-478.
- Попова М.Б., Манахов Д.В., Кизеев А.Н., Ушамова С.Ф., Липатов Д.Н., Чирков А.Ю., Орлов П.С., Мамихин С.В. (2020) Содержание и распределение ¹³⁷Cs в подзолах в районе расположения Кольской атомной электростанции. *Почвоведение*. (7), 891-900.
- Рачкова Н.Г., Шуктомова И.И. (2015) Миграция в почве и поглощение растениями продуктов мирного ядерного взрыва в Пермской области. *Радиационная биология. Радиоэкология*. **55**(1), 71-81.
- Санжарова Н.И., Сысоева А.А., Исамов Н.Н. (2005) Роль химии в реабилитации сельхозугодий, подвергшихся радиоактивному загрязнению. *Российский химический журнал*. (3), 26-34.
- Семенов И.Н., Усачева А.А., Мирошников А.Ю. (2015) Распределение цезия-137 глобальных выпадений в таежных и тундровых катенах бассейна реки Обь. *Геология рудных месторождений*. **57**(2), 154-173.
- Федотов П.С., Спиваков Б.Я. (2008) Статические и динамические методы фракционирования форм элементов в почвах, илах и донных отложениях. *Успехи химии*. **77**(7), 690-703.
- Филонова А.А., Серёгин В.А. (2014) Миграция техногенных радионуклидов в почвах и донных отложениях прибрежной полосы пункта временного хранения СевРАО и ее влияние на возможное загрязнение морской акватории. *Гигиена и санитария*. (2), 18-22.
- Фридланд В.М., Иванова Е.Н. (1977) Классификация и диагностика почв СССР. М.: Колос, 225 с.
- Filgueiras A.V., Lavilla I. and Bendicho C. (2002) Chemical sequential extraction for metal partitioning in environmental solid samples. *J. Environ. Monit.* (4), 823-857.
- Goryachenkova T.A., Pavlotskaya F.I., Myasoedov B.F. (1991) Forms of occurrence of plutonium in soils. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **147**(1), 153-157.
- Novikov A.P. (2010) Migration and concentration of artificial radionuclides in environmental objects. *Geochem. Int.* **48**(13), 1263-1388.
- Novikov A.P., Goryachenkova T.A., Sobakin P.I., Kazinskaya I.E., Ryleeva V.S. (2016) Speciation of plutonium and americium in the soils affected by Kraton-3 accidental underground nuclear explosion in Yakutia (Russia). *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **307**(1), 691-697.