

*А. В. Чугуевский<sup>1</sup>✉, М. С. Мельгунов<sup>1</sup>, М. Ю. Кропачева<sup>1</sup>, И. В. Макарова<sup>1</sup>*

## **Вклад «горячих» частиц во вторичную миграцию $^{137}\text{Cs}$ в аллювиальных отложениях реки Енисей**

<sup>1</sup> Институт геологии и минералогии им. В.С. Соболева СО РАН,  
г. Новосибирск, Российская Федерация  
e-mail: chuguevsky@igm.nsc.ru

**Аннотация.** В течение длительного времени Красноярский горно-химический комбинат (ГХК) был источником радиоактивного загрязнения поймы реки Енисей целым рядом долгоживущих техногенных радионуклидов (ТРН), в том числе гамма-излучающими изотопами  $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{154}\text{Eu}$ ,  $^{155}\text{Eu}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{60}\text{Co}$ . После вывода из эксплуатации прямоточных реакторов сброс радиоактивных отходов непосредственно с предприятия сократился на несколько порядков. Теперь основными источниками загрязнения экосистемы реки Енисей являются отстойники, расположенные на территории комбината, и аллювиальные отложения поймы (особенно в ближней зоне влияния ГХК), в которых уже накоплены значительные количества ТРН. Радионуклиды в аллювиальных отложениях представлены в двух формах нахождения – рассеянной и концентрированной форме в виде «горячих» частиц (ГЧ). В данной работе проведена оценка потенциальной возможности растворения ГЧ различной природы и вовлечения во вторичную миграцию изотопа  $^{137}\text{Cs}$ , входящего в их состав. Показано, что от 10 до 48%  $^{137}\text{Cs}$  представлено в потенциально мигрирующих формах. В то время как изотопы  $^{154}\text{Eu}$ ,  $^{155}\text{Eu}$ ,  $^{60}\text{Co}$  имеют сравнительно небольшой период полураспада ( $\tau$ ) (5,2 – 8,6 лет), и их активность достаточно быстро снижается вследствие радиоактивного распада. Для  $^{137}\text{Cs}$  эта величина составляет 30 лет, и воздействие на окружающую среду он будет оказывать в течении гораздо более длительного периода времени.

**Ключевые слова:** техногенные радионуклиды, «горячие» частицы, вторичное перераспределение

*A. V. Chuguevsky<sup>1</sup>✉, M. S. Melgunov<sup>1</sup>, M. Yu. Kropacheva, I. V. Makarova<sup>1</sup>*

## **Contribution of «hot» particles to secondary migration of $^{137}\text{Cs}$ in alluvial sediments of the Enisey River**

<sup>1</sup> Sobolev Institute of Geology and Mineralogy SB RAS, Novosibirsk, Russian Federation  
e-mail: chuguevsky@igm.nsc.ru

**Abstract.** For a long time, the Krasnoyarsk Mining and Chemical Combine (MCC) was a source of radioactive contamination of the Yenisei River floodplain with a number of long-lived artificial radionuclides, including gamma-emitting isotopes  $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{154}\text{Eu}$ ,  $^{155}\text{Eu}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{60}\text{Co}$ . After the once-through reactors were decommissioned, the discharge of radioactive waste directly from the plant was reduced by several orders of magnitude. Now the main sources of pollution of the Yenisei River ecosystem are settling tanks located on the territory of the plant and alluvial deposits of the floodplain (especially in the near zone of influence of the MCC), which have already accumulated significant amounts of artificial isotopes. Radionuclides in alluvial deposits are present in two forms of presence - dispersed and concentrated in the form of "hot" particles (HP). In this work, the potential possibility of dissolution of GP of various nature and involvement in secondary migration of the isotope  $^{137}\text{Cs}$  included in their composition is assessed. It is shown that from 10 to 48% of  $^{137}\text{Cs}$  is presented in

potentially migrating forms. While the isotopes  $^{154}\text{Eu}$ ,  $^{155}\text{Eu}$ ,  $^{60}\text{Co}$  have a relatively short half-life ( $\tau$ ) (5.2 – 8.6 years), and their activity decreases quite quickly due to radioactive decay. For  $^{137}\text{Cs}$  this value is 30 years, and it will have an impact on the environment over a much longer period of time.

**Keywords:** artificial radionuclides, «hot» particles, secondary redistribution

### ***Введение***

Наряду с рассеянной формой, значительная часть ТРН, поступивших в аллювиальные отложения поймы реки Енисей в ходе деятельности Красноярского ГХК, связаны с «горячими» частицами. К «горячим» частицам относят «... частицы, имеющие микрометровые и субмикрометровые размеры, обладающие на несколько порядков большей активностью, чем средняя активность почвы тех же размеров» [9]. По определению МАГАТЭ [10] радиоактивные частицы в окружающей среде определяются как локализованные агрегаты радиоактивных атомов, которые дают повышение неоднородности распределения радионуклидов, существенно отличную от таковой в фоновой матрице. Важнейшим свойством, во многом определяющим радиоэкологическую опасность «горячих» частиц, помимо высокой удельной активности входящих в ее состав радионуклидов, является потенциальная возможность выноса их при выветривании или растворении за пределы области локализации частицы в окружающую среду [10, 11]. Эффективность таких процессов на примере растворения черномыльских ГЧ рассматривается в работе [12].

История изучения «горячих» частиц, связанных с радиоактивным загрязнением поймы реки Енисей, насчитывает уже более 30 лет [2, 7, 8, 13, 14, 15]. По составу гамма-излучающих радионуклидов все ГЧ, данные по которым приведены в указанных работах можно условно разбить на три группы: моноизотопные – содержат только  $^{137}\text{Cs}$  с активностью до  $2 \times 10^6$  Бк на частицу; двухизотопные, содержащие  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{134}\text{Cs}$  с активностями в диапазоне от  $2.7 \times 10^4$  до  $30 \times 10^6$  Бк и 10-7500 Бк, соответственно; полиизотопные –  $^{137}\text{Cs}$  ( $4 \times 10^4$ - $7 \times 10^5$  Бк),  $^{134}\text{Cs}$  (180-1250 Бк),  $^{154}\text{Eu}$  (1000-5000 Бк),  $^{155}\text{Eu}$  (300-1400 Бк),  $^{60}\text{Co}$  (20-30 Бк) и  $^{241}\text{Am}$  (20-75 Бк). Следует отметить доминирующую роль  $^{137}\text{Cs}$  и отсутствие широко распространенного в аллювиальных отложениях  $^{152}\text{Eu}$ .

В ранее опубликованных работах [2, 16, 17, 18] при изучении миграционной способности ТРН, накопленных в пойме реки Енисей рассматривается, главным образом, их рассеянная форма нахождения. Возможность же вовлечения во вторичную миграцию радионуклидов, содержащихся в форме ГЧ к настоящему времени изучена недостаточно полно.

Целью данной работы было определение роли ГЧ в процессах вторичного перераспределения.

### ***Методы и материалы***

Все аналитические работы по изучению ГЧ проводились в ИГМ им. В.С. Соболева СО РАН (Лаборатория геохимии радиоактивных элементов и экогеохимии). Определение изотопного состава и активности гамма-излучающих ради-

онуклидов выполнялось гамма-спектрометрическим методом с использованием HPGe и Ge(Li) коаксиальных и HPGe планарного ППД.

Для выявления форм нахождения  $^{137}\text{Cs}$  в «горячих» частицах проведено фракционное разделение по методике Tessier [19], адаптированной для искусственных радионуклидов в донных отложениях реки Енисей [20]

### Результаты

В таблице 1 приведены содержания гамма-излучающих радионуклидов в двух разнотипных (моноцезиевой и полиизотопной) ГЧ, отобранных для проведения эксперимента по фракционному разделению.

Таблица 1

Радионуклидный состав «горячих» частиц из ближней зоны влияния Красноярского ГХК, отобранных для определения форм нахождения  $^{137}\text{Cs}$

| Номер частицы | Активность, Бк    |                   |                   |                   |                  |                   |                   |
|---------------|-------------------|-------------------|-------------------|-------------------|------------------|-------------------|-------------------|
|               | $^{154}\text{Eu}$ | $^{155}\text{Eu}$ | $^{137}\text{Cs}$ | $^{134}\text{Cs}$ | $^{60}\text{Co}$ | $^{241}\text{Am}$ | $^{243}\text{Cm}$ |
| Gch05         |                   |                   | 1592000           |                   |                  |                   |                   |
| Gch06         | 4071              | 2463              | 235100            | 28                | 186              | 11800             | 3130              |

**Примечание:** пределы обнаружения для всех изотопов составляют величину не хуже 5 Бк. Относительная ошибка определения по критерию  $2s$  для  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{154}\text{Eu}$  не превышает  $\pm 10\%$ ; для  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{155}\text{Eu}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{241}\text{Am}$  и  $^{243}\text{Cm}$   $\pm 15-20\%$ .

Результаты эксперимента по фракционному разделению  $^{137}\text{Cs}$  представлены на рис.1.

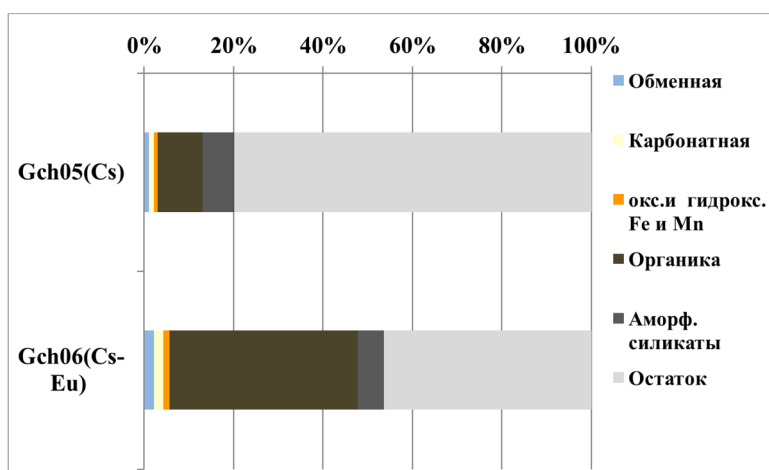


Рис. 1. Результаты эксперимента по фракционному разделению  $^{137}\text{Cs}$  в моноцезиевой и полиизотопной частице

Видно, что распределение радионуклида по фракциям существенно отличается для частиц двух разных типов. Содержание обменной и карбонатной фракций, а также оксидов и гидроксидов Fe и Mn невелико и составляет первые про-

центы (при этом значение в 2 раза выше для полиизотопной частицы). Количество органической фракции выше 10% и 42% для моноцезиевой и полиизотопной частиц. Существенно отличается содержание  $^{137}\text{Cs}$  в нерастворимом остатке – 80 и 46%.

### **Обсуждение**

Радионуклидный состав частиц, использованных в эксперименте, типичен для ближней зоны ГХК и соответствует данным, приведенным в ранее опубликованных работах [2,7,8,13]. Так же доминирует  $^{137}\text{Cs}$  и отсутствует активационный изотоп  $^{152}\text{Eu}$ , характерный для вмещающих аллювиальных отложений.

На основании полученных в результате эксперимента по фракционному разделению данных можно сделать выводы о возможности миграции  $^{137}\text{Cs}$ , входящего в состав ГЧ различного типа. Согласно работе [10] к подвижным формам относятся обменная, карбонатная форма и оксиды и гидроксиды Fe и Mn. К слабо-подвижным – связанные с органикой и аморфные силикаты. Вместе с тем принято считать, что оксиды и гидроксиды Fe и Mn становятся подвижными только в восстановительных условиях, а в рассматриваемом случае условия окислительные. Поэтому в данной работе к подвижным формам отнесены обменная и карбонатная фракции, условно-подвижным – три остальные.

### **Заключение**

В результате проведения эксперимента показано, что доля  $^{137}\text{Cs}$  в мигрирующих формах составляет около 3% в моноцезиевой частице и около 6% в полиизотопной. Содержание  $^{137}\text{Cs}$  в потенциально-мигрирующих формах – 17 и 48% соответственно.

Таким образом, учитывая довольно высокие содержания подвижных форм  $^{137}\text{Cs}$  в ГЧ, особенно в полиизотопной, периодически продолжающееся поступление их в экосистему реки Енисей. ГЧ могут вносить существенный вклад в перераспределение ТРН, по крайней мере  $^{137}\text{Cs}$ , особенно учитывая многократно, на несколько порядков, сократившийся сброс непосредственно с ГХК.

### **Благодарности**

Работа выполнена по государственному заданию ИГМ СО РАН (№ 122041400193-7) при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования Российской Федерации. Аналитическая работа выполнена в ЦКП Многоэлементных и изотопных исследований СО РАН.

### **БИБЛИОГРАФИЧЕСКИЙ СПИСОК**

1. Носов А.В., Ашанин М.В., Иванов А.Б., Мартынова А.М. Радиоактивное загрязнение р. Енисей, обусловленное сбросами Красноярского горно-химического комбината // Атомная энергия. – 1993. – Т. 74. – Вып. 2. – С. 144-150.
2. Сухоруков Ф.В. Дегерменджи Ф.В. Белолипецкий и др. Закономерности распределения и миграции радионуклидов в долине реки Енисей. – Новосибирск: Изд-во СО РАН, филиал "Гео", 2004. – 286 с.

3. Кузнецов Ю.В., Ревенко Ю.А., Легин В.К., Раков Н.А., Жидков В.В., Савицкий Ю.В., Тишков В.П., Поспелов Ю.Н., Егоров Ю.М. К оценке вклада реки Енисей в общую радиоактивную загрязненность Карского моря // Радиохимия. – 1994. – Т. 36. – Вып. 6. – С. 546-559.
4. Болсуновский А.Я., Атурова В.П., Марио Бургер и др. Радиоактивное загрязнение территории населенных пунктов Красноярского края в регионе размещения Горно-химического комбината // Радиохимия. – 1999. – Т. 41. – Вып. 6. – С. 563-568.
5. Линник В.Г. Техногенные радионуклиды в поймах р. Теча и среднего течения р. Енисей // Вестник Московского университета. Сер. 5. География. – 2011. – № 4. – С. 24-30.
6. Носов А.В., Мартынова А.М. Анализ радиационной обстановки на р. Енисее после снятия с эксплуатации прямоточных реакторов Красноярского ГХК // Атомная энергия. – 1996. – Т. 81. – Вып. 3. – С. 226-232.
7. Болсуновский А.Я., Горяченкова Т.А., Черкезян В.О., Мясоедов Б.Ф. Горячие частицы в Красноярском крае // Радиохимия. – 1998. – Т. 40. – № 3. – С. 271-274.
8. Болсуновский А.Я., Черкезян В.О., Барсукова К.В., Мясоедов Б.Ф. Исследование высокоактивных проб почв и горячих частиц поймы реки Енисей // Радиохимия. – 2000. – Т. 42. – № 6. – С. 560-564.
9. Быховский А.В., Зараев О.М. Горячие аэрозольные частицы при техническом использовании атомной энергии. – М.: Атомиздат, 1974. – 254с.
10. Salbu B. Speciation of radionuclides – analytical challenges within environmental impact risk assessments // Journal of Environmental Radioactivity. – 2007. – № 96. – P. 47-53.
11. Salbu B., Lind O.C., Skipperud L. Radionuclide speciation and its relevance in environmental impact assessments // Journal of Environmental Radioactivity. – 2004. – № 74. – P. 233-242.
12. Булгаков А., Коноплев А., Войцехович О., Каневец В., Лаптев Г., Попов В., Смит Дж. Оценка и прогноз скорости растворения топливных частиц в донных отложениях водоема-охладителя Чернобыльской АЭС // Радиоактивность после ядерных взрывов и аварий : Труды Междунар. конф. – СПб: Гидрометеиздат, 2006. – Т. 2. – С. 24-30.
13. Bolsunovsky A.Ya., Melgunov M.A. Study of Sediments and Radioactive Particles of the Yenisei River Using a Variety of Analytical Methods // Journal of Geoscience and Environment Protection. – 2014. – Vol. 2. – № 3. – P. 153-158.
14. Chuguevskii A.V., Sukhorukov F.V., Melgunov M.S., Makarova I.V., Titov A.T. “Hot” particles of the Yenisei River: radioisotope composition, structure, and behavior in natural conditions // Doklady Earth Sciences. – 2010. – № 430. – P. 51-53.
15. Bolsunovsky A., Melgunov M., Chuguevskii A., Lind O.C., Salbu B. Unique diversity of radioactive particles found in the Yenisei river floodplain // Scientific Reports. – 2017. – Vol. 7. – № 1. – P. 111-132.
16. Носов А.В. Исследование механизмов миграции радиоактивных веществ в пойме Енисея // Метеорология и гидрология. – 1997. – № 12. – С. 84-91.
17. Вакуловский С.М., Тертышник Э.Г., Кабанов А.И. Перенос радионуклидов в р. Енисей // Атомная энергия. – 2008. – Т. 105. – № 5. – С. 285-291.
18. Bondareva L., Artamonova S. The relationship of mineral and geochemical composition to artificial radionuclide partitioning in Yenisei river sediments downstream from mining-and-chemical combine Rosatom // Natural Science. – 2011. – Vol.3. – № 7. – P.517-529.
19. Tessier A., Cambell P.G., Bisson M Sequential extraction procedure for the speciation of particulate trace metals // Analytical chemistry. – 1979. – Vol. 51. – № 7. – P. 844-851.
20. Бондарева Л.Г., Болсуновский А.Я., Сухоруков Ф.В., Казбанов В.И., Макарова И.В., Леглер Е.В. Оценка миграционной способности трансурановых радионуклидов ( $^{241}\text{Am}$ , изотопов плутония) и  $^{152}\text{Eu}$  в донных отложениях реки Енисей // Радиохимия. – 2005. – Т. 47. – № 4. – С. 289-294.

© А. В. Чугуевский, М. С. Мельгунов, М. Ю. Кропачева, И. В. Макарова, 2025