

УДК 543:546.799.4:627.157:(268.51+551.313:282.251.1+551.313:282.251.2)

СОДЕРЖАНИЕ $^{239,240}\text{Pu}$ В ДОННЫХ ОТЛОЖЕНИЯХ КАРСКОГО МОРЯ И ЭСТУАРИЕВ РЕК ОБЬ И ЕНИСЕЙ

А.М. Афиногенов, Ю.А. Сапожников, С.Н. Калмыков,
Н.А. Айбулатов*, А.Н. Плишкин*, И.П. Ефимов**

(кафедра радиохимии)

Получены новые данные о содержании $^{239,240}\text{Pu}$ в донных отложениях открытой части Карского моря (0,6 – 11,5 Бк/кг), Обской губы (0,5 – 20,5 Бк/кг) и Енисейского залива (0,8 – 35,5 Бк/кг). В донных осадках из района Енисейского залива содержится больше $^{239,240}\text{Pu}$, чем в донных осадках, отобранных в открытой части Карского моря и Обской губе, что позволяет в настоящее время считать сток Енисея важным источником поступления Pu в Карское море.

Формирование современной радиационной обстановки в Карском море обусловлено следующими основными факторами [1, 2]:

1. Работа Новоземельского ядерного полигона, где с 1956 г. проводили испытания ядерного оружия в атмосфере и под водой, а также более 20 лет (1964 – 1986) осуществляли захоронения твердых радиоактивных отходов (РАО) [1]. В настоящее время можно говорить лишь о потенциальной опасности этих захоронений, поскольку судя по результатам совместных российско-норвежских океанографических экспедиций (1990 – 1994) содержание $^{239,240}\text{Pu}$ в пробах донных осадков, отобранных вблизи захоронений на восточном побережье Новой Земли, соответствует уровню глобальных выпадений (от $< 0,1$ до 18 Бк/кг [2]). Что касается воздействия на окружающую среду испытанных на Новоземельском полигоне ядерных зарядов, то достаточно уверенно можно говорить об относительно невысоких уровнях загрязнения непосредственно вблизи мест испытаний. Так, например, группой «Гринпис» в октябре 1990 г. на Южном острове возле старой шахты были обнаружены «горячие пятна» (плотность выпадений более 50 Бк/см²). «Пятна» находились в 400 м от шахты, а в 2 км от нее показания приборов упали до фоновых значений [1].

2. Затопление у побережья Новой Земли реакторов атомных подводных лодок и аварийного реактора атомного ледокола «Ленин» (9 реакторов без ядерного топлива и 7 в аварийном состоянии с невыгруженным ядерным топливом), а также захоронение твердых РАО в 8 районах у побережья Новой Земли и в Карском море [1]. Содержание $^{238,239,240}\text{Pu}$ в основных местах захоронений оценивается в 13 ТБк, из которых 11 ТБк приходится на залив Цивольки [2].

3. Глобальные выпадения, связанные с испытаниями ядерного оружия (плотность выпадений $^{239,240}\text{Pu}$ для 70 – 80° с.ш. оценивается в $0,36 \pm 0,05$ мКи/км² [3], средний уровень удельной активности $^{239,240}\text{Pu}$ в донных осадках составляет 0,1 – 10 Бк/кг [4].

4. Сбросы радиохимических предприятий Западной Европы, переносимые вокруг скандинавского побережья отрогами течения Гольфстрим.

5. Перенос речными системами сбросов радиохимических предприятий или вымывание радионуклидов с загрязненных территорий.

6. Чернобыльские выпадения.

С учетом того, что около трети всех поступлений пресной воды в арктические моря приходится на сток рек Обь и Енисей (через Карское море), особое значение приобретает оценка влияния на общее радиоактивное загрязнение Карского моря радионуклидов, поступающих с выносом этих рек, в бассейнах которых осуществлялся сброс РАО, обусловленный функционированием радиохимических предприятий и радиационными инцидентами.

В ходе 49-го рейса НИС «Дмитрий Менделеев» (1993) в этом регионе были отобраны пробы донных осадков. Их анализ на содержание $^{239,240}\text{Pu}$ был проведен в лаборатории дозиметрии и радиоактивности окружающей среды кафедры радиохимии химического факультета МГУ.

Экспериментальная часть

Образцы донных осадков собирали с помощью дночерпателя (площадь отбора 0,25 м²) и пробоотборника с квадратным поперечным сечением (площадь отбора 0,10 м²). Пробы из них брали послойно.

Критерием выделения слоев являлся цвет осадка. Толщина верхнего слоя (I) обычно не превышала 5 мм. Следующие за ним более плотные по консистенции второй (II) и третий (III) слои имеют толщину, в сумме обычно не превышающую 3 см.

В лабораторных условиях пробу донного осадка после высушивания до воздушносухого состояния отжигали в муфельной печи при температуре 400 – 450° в течение 6 – 10 ч.

* Институт Океанологии им. П.П. Ширшова РАН.

** Кафедра аналитической химии.

Затем пробу обрабатывали двумя порциями 8 М азотной кислоты при температуре 80 – 90° по 3 ч.

В объединенную кислотную вытяжку добавляли трасер ^{236}Pu (в количестве 0,1–0,2 Бк на пробу) и пропускали через сорбционную колонку с три-*n*-октилфосфиноксидом (ТОФО), импрегнированным в микропористый тефлон.

Далее колонку промывали свежеприготовленным 0,2 М раствором аскорбиновой кислоты в 1 М HCl. В этих условиях плутоний переходит в трехвалентное состояние и вымывается в раствор, а уран и торий (которые могут создать помехи на стадии α -спектрометрических измерений) не восстанавливаются, оставаясь связанными с сорбентом.

Аскорбиновокислый элюат обрабатывали при нагревании азотной кислотой до полного обесцвечивания раствора и при необходимости повторяли стадию сорбции-десорбции с новой порцией импрегнированного тефлона.

Из 6 – 8 М азотнокислого раствора, полученного из элюата, проводили экстракцию плутония 0,1 М раствором ТОФО в толуоле дважды по 2 мл в течение 10 мин. Органические фазы объединяли и резкстрагировали плутоний 0,5 М раствором щавелевой кислоты в 30%-м этаноле (дважды по 2 мл в течение 15 мин). Водно-спиртовые фазы объединяли.

Анализируемую пробу переносили в полиэтиленовый флакон, добавляли необходимый объем плавиковой кислоты и интенсивно перемешивали. Туда же вносили аликвоту 0,2 М азотной кислоты, содержащую 0,1 г лантана. Раствор вновь интенсивно перемешивали, а затем давали отстояться в течение 30 мин, после чего образовавшийся осадок отделяли фильтрованием через лавсановый фильтр с помощью разборной воронки. Затем фильтр отделяли от подложки и досушивали.

Для проведения измерений лавсановые фильтры укреплялись на металлических подложках.

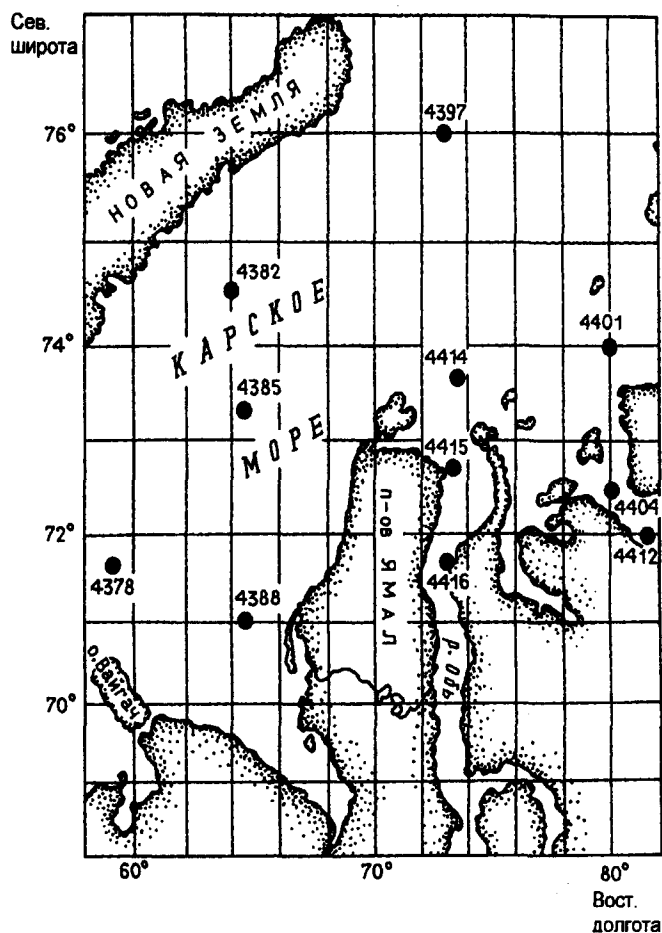
α -Спектрометрические измерения проводили с использованием измерительного пульта "СЭС-13", спектрометра "СЭА-01", блока "БДЗА-01" с кремниевым детектором (площадь чувствительной поверхности 250 мм²) и многоканальным анализатором "LP-4900 TDC-3000".

Химический выход, определенный по ^{236}Pu , составлял в среднем $48 \pm 10\%$.

Результаты и их обсуждение

На рисунке указаны расположение и номера станций пробоотбора донных осадков в ходе 49-го рейса НИС «Дмитрий Менделеев».

В таблице представлены результаты определения удельной активности $^{239,240}\text{Pu}$ в этих пробах (с указанием



географических координат станций пробоотбора).

Полученные данные в целом хорошо согласуются с уже упомянутыми результатами совместной российско-норвежской океанографической экспедиции [2]. Проведенные исследования подтверждают, что глобальные выпадения являются основным источником поступления изотопов плутония в этом регионе и свидетельствуют об отсутствии значимого влияния местных захоронений на окружающую среду. В то же время, сравнение средних удельных активностей $^{239,240}\text{Pu}$, рассчитанных для трех районов пробоотбора (открытая часть Карского моря, районы Обской губы и Енисейского залива) (см. таблицу), позволяет говорить о влиянии на радиологическую обстановку в Карском море выносов Енисея.

Это предположение подтверждается при сопоставлении полученных результатов с данными об удельной активности ^{137}Cs в тех же пробах донных осадков, для которых удельная активность проб из Енисейского залива (до 333 Бк/кг) значительно превышает соответствующие значения для проб, отобранных в Карском море и Обской губе (15–70 Бк/кг) [5].

Получены новые данные о содержании $^{239,240}\text{Pu}$ в донных отложениях из открытой части Карского моря (0,6 – 11,5 Бк/кг), Обской губы ($\leq 0,5$ – 20,5 Бк/кг) и Енисейского залива (0,8 – 35,5 Бк/кг).

239,240P_u в пробах донных осадков Карского моря
и эстуарных зон Оби и Енисея

| Номер станции | Географические координаты | Слой | Удельная активность, Бк/кг |
|------------------|----------------------------------|------|----------------------------|
| Карское море | | | |
| 4378 | 71°40.83' с.ш. 58°56.59' в.д. | I | 7.4 ± 1.7 |
| 4382 | 74°36.8' с.ш. 63°58.2' в.д. | I | 0.6 ± 0.7 |
| | | II | 1.7 ± 0.5 |
| 4385 | 73°19.81' с.ш. 64°36.3' в.д. | I | 7.6 ± 2.8 |
| | | II | 11.0 ± 2.8 |
| | | III | 11.5 ± 3.3 |
| 4388 | 71°01.55' с.ш. 64°35.7' в.д. | II | 7.4 ± 2.0 |
| 4397 | 75°59.5' с.ш. 72°40.21' в.д. | II | 3.0 ± 1.0 |
| Среднее | | | 6.0 ± 1.9 |
| Обская губа | | | |
| 4414 | 73°39.1' с.ш. 73°31.00' в.д. | I | 20.5 ± 3.1 |
| | | II | 0.2 ± 0.3 |
| | | III | ≤ 0.5 |
| 4415 | 72°46.9' с.ш. 73°26.3' в.д. | I | 0.9 ± 0.3 |
| 4416 | 71°44.6' с.ш. 73°05.4' в.д. | I | 4.8 ± 0.7 |
| Среднее | | | 2.4 ± 1.1 |
| Енисейский залив | | | |
| 4401 | 74°00.3' с.ш. 79°57.0' в.д. | II | 35.5 ± 5.5 |
| 4404 | 72°33.00' с.ш. 79°44.6' в.д. | III | 12.7 ± 3.5 |
| 4412 | 71°48.9' с.ш. 83°10.4' в.д. | трал | 13.5 ± 6.6 |
| 4410* | | I | 1.9 ± 0.4 |
| | | II | 2.2 ± 0.6 |
| | | III | 1.4 ± 0.4 |
| Среднее | | | 15.9 ± 4.6 |

* Точные географические координаты станции отсутствуют

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Яблоков А.В., Карасев В.К., Румянцев В.М. и др. Факты и проблемы, связанные с захоронением радиоактивных отходов в морях, омывающих территорию Администрации Президента Российской Федерации. Доклад правительственной комиссии. Российской Федерации. М., 1993.
2. Strand P., Sickel M., Aarkrog A. et al. / Radionuclides in the Oceans, Inputs and Inventories. Sherburg, 1996. P. 95.
3. Perkins R.W., Thomas C.W. / Transuranic Elements in the Environment. Springfield, 1980. P. 53.
4. Sholkovitz E.R. // Earth-Sci.Rev. 1983.19. P. 95.
5. Sapozhnikov Yu. A., Aibulatov N.A., Plishkin A.N. / Arctic Nuclear Waste Assessment Program Workshop. Woods Hole, Oceanographic Institution. Massachusetts. 1-4 may, 1995.

Поступила в редакцию 26.06.97