

М. В. Желтоножская, Н. В. Кулич, А. И. Липская, Л. В. Садовников

*Институт ядерных исследований НАН Украины, Киев***ИССЛЕДОВАНИЕ ВЕРТИКАЛЬНОЙ МИГРАЦИИ РАДИОНУКЛИДОВ В ПОЧВАХ НА ТЕРРИТОРИИ ПОЛИГОНА «РЫЖИЙ ЛЕС»**

Проведены исследования вертикальной миграции радионуклидов чернобыльского происхождения в 5-километровой зоне ЧАЭС на территории исследовательского полигона «Рыжий лес». Проведены γ - и β -спектрометрические исследования полученных образцов почвы с помощью антикомптоновского и β -спектрометров. Зафиксировано наличие ^{60}Co , $^{134,137}\text{Cs}$, $^{154,155}\text{Eu}$, ^{241}Am до глубины 30 см во всех почвенных разрезах. На участках с дерново-слабоподзолистыми пылевато-песчаными почвами на древнеаллювиальных песках до глубины 60 см наблюдали присутствие изотопов ^{137}Cs , ^{90}Sr и ^{241}Am . В верхних слоях почвы на территории исследовательского полигона обнаружено присутствие ^{243}Am и ^{243}Cm .

Ключевые слова: радионуклиды, миграция, почвы, цезий, стронций, америций.

Введение

Изучение миграции радионуклидов - одна из актуальных задач радиоэкологии из-за большого количества факторов, влияющих на перемещение радионуклидов. Исследование поведения ^{137}Cs и ^{90}Sr проводилось в некоторых работах и до аварии на ЧАЭС [1]. Однако поведение радионуклидов чернобыльского происхождения имеет свою специфику. Это обусловлено тем, что значительное количество радионуклидов находится в виде мелкодисперсных кусочков топлива - «горячих частиц» [2]. Это значительно изменяет роль физико-химических процессов, приводящих к миграции радионуклидов.

Ранее в работах [3 - 5] была исследована миграция радионуклидов до глубины 30 см в дерново-слабоподзолистых пылевато-песчаных почвах и в болотных минеральных глинисто-песчаных почвах на древнеаллювиальных песках в «Рыжем лесу» в зоне ЧАЭС. Повышенное внимание в этих исследованиях уделялось поведению трансурановых нуклидов. Это обусловлено тем, что трансурановые ядра, в основном, являются α -излучателями, т.е. представляют повышенную радиобиологическую опасность. Кроме того, информация в научной литературе о поведении трансурановых нуклидов в природной среде достаточно ограничена в связи с их искусственным происхождением.

Отметим также, что пространственное распределение радиоактивных выпадений на территории экспериментальных участков «Рыжий лес» крайне неоднородно. Средняя плотность загрязнения полигонов ^{90}Sr была 40 - 80 МБк/м² и ^{137}Cs 70 - 170 МБк/м².

Нами в данной работе выполнены исследования вертикальной миграции до глубины 60 см, такие исследования проведены впервые.

Методы исследований и результаты

Для исследований были выбраны участки, находящиеся друг от друга на расстоянии до 500 м с мощностью дозы 3000 мкР/ч на поверхности и на высоте 1 м. Полигон был выбран на территории без признаков антропогенного воздействия, чтобы можно было рассматривать миграцию радионуклидов в естественной среде. Керн, глубиной 60 см, делился на образцы послойно: первые два слоя глубиной по 2 см, затем два слоя глубиной по 3 см и 10 слоев по 5 см.

Активности ^{60}Co , $^{134,137}\text{Cs}$, $^{154,155}\text{Eu}$, $^{241,243}\text{Am}$, ^{243}Cm в образцах почвы были измерены спектрометрическими методами [6, 7]. Активность ^{90}Sr определялась по β -спектрам с помощью нерадиохимической методики [8] и из этих данных определены активности ^{90}Sr во всех образцах почвы. Для определения полной активности плутония использовался тот факт, что в результате α -распада изотопов плутония с вероятностью около 25 % возбуждается ряд низкоэнергетических состояний соответствующих изотопов урана с энергией, меньшей энергии связи К-электронов. Энергия этих состояний 43,5 и 51,45 кэВ и заселяются они при α -распаде изотопов $^{238-240}\text{Pu}$ соответственно. Распад этих состояний происходит посредством внутренней конверсии γ -лучей E2-мультипольности с последующим испусканием характеристического рентгеновского излучения с энергией, лежащей в диапазоне 13 - 23 кэВ.

Рентгеновские и γ -спектры радионуклидов изучали с использованием антикомптоновского спектрометра с Ge-детектором, с входным бериллиевым окном и энергетическим разрешением 1,9 кэВ на γ -линиях ^{60}Co и 350 эВ на γ -линии 59 кэВ ^{241}Am . Эффективность спектрометра

© М. В. Желтоножская, Н. В. Кулич,
А. И. Липская, Л. В. Садовников, 2011

составляет 20 % по сравнению с NaI(Tl)-детектором размерами 3'' × 3'. Подавление комптоновского фона в низкоэнергетической области было не меньше чем в 8 раз, что позволило нам надежно идентифицировать активность ²⁴¹Am даже в самых глубоких слоях.

Характерный фрагмент γ -спектров чернобыльских выпадений в верхнем слое разреза представлен на рис. 1. В низкоэнергетической области хорошо определяются пики 14 и 18 кэВ (L_{α} и L_{β} U,

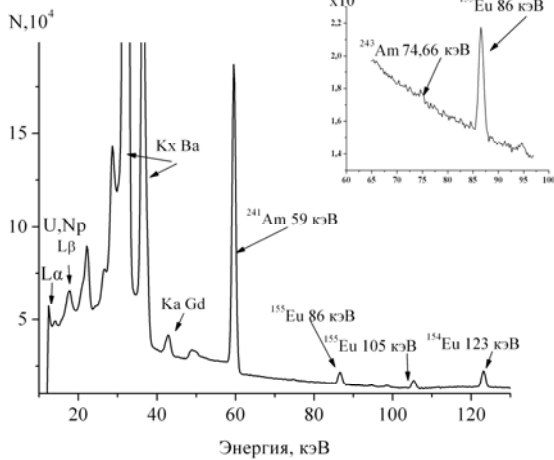


Рис. 1. Фрагмент спектра образца почвы из «Рыжего леса», измеренного антикомптоновским спектрометром в низкоэнергетической области.

После обработки спектров были рассчитаны активности изотопов в верхнем слое почвы (Бк/м²). В табл. 1 приведена активность основных γ -радионуклидов в верхнем (0 - 2 см) слое. Активность ²⁴³Am определялось по выходу γ 74,6 кэВ. Активность ²⁴³Cm регистрировалась по характеристическому Ka-излучению плутония (103 кэВ) и контролировалась по γ -переходам с энергиями 228 и 277 кэВ.

Таблица 1. Активность изотопов в верхнем слое почвы, кБк/м²

Изотоп	A1	A1 отн.	A2	A2 отн.
²⁴¹ Am	222	15,3	1772	24,3
²⁴³ Am	0,18	0,012	2,46	0,034
²⁴³ Cm	0,22	0,015	1,12	0,015
¹³⁷ Cs	14482	1000	72895	1000
¹³⁴ Cs	3,43	0,24	20,9	0,29
¹⁵⁴ Eu	32,3	2,23	265	3,65
¹⁵⁵ Eu	9,15	0,63	74,9	1,03
⁶⁰ Co	4,4	0,30	23,4	0,32

Примечание. A1 – дерново-слабоподзолистый пылевато-песчаный грунт, A2 – болотный минеральный глинисто-песчаный грунт. Погрешность измерений 5 % для всех радионуклидов, кроме ²⁴³Am и ²⁴³Cm; для них погрешность 10 – 20 %. (Некоторое расхождение в относительных значениях активности связано с различным выгоранием топлива.)

Np); 32 кэВ Kx Ba (¹³⁷Cs); ²⁴¹Am – 59 кэВ; ¹⁵⁵Eu – 86, 105 кэВ; ¹⁵⁴Eu – 123 кэВ. На вставке рис. 1 показан увеличенный фрагмент с γ -выходом 74,6 кэВ ²⁴³Am. Как видно, и γ -активность ²⁴³Am надежно идентифицируется.

В более высокой энергетической области (рис. 2) мы видим γ -линии ¹³⁷Cs – 661 кэВ; ¹³⁴Cs – 604, 796 кэВ; ¹⁵⁴Eu – 1274 кэВ, ⁶⁰Co – 1173, 1333 кэВ; ⁴⁰K – 1461 кэВ. Остальные пики принадлежат ¹⁵⁴Eu.

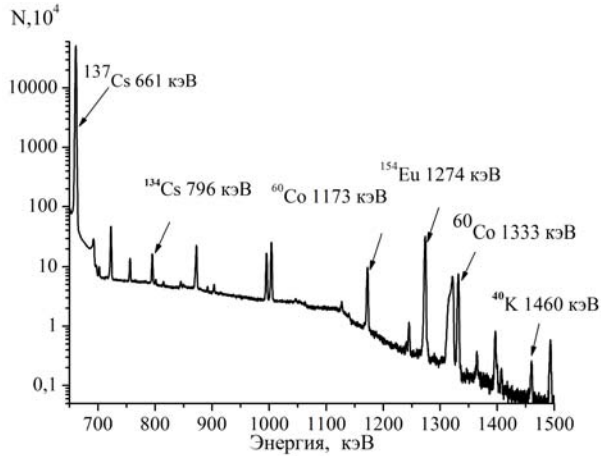


Рис. 2. Фрагмент спектра образца почвы из «Рыжего леса», измеренного антикомптоновским спектрометром в высокоэнергетической области.

Из представленных данных видно, что в настоящее время ²⁴¹Am стал вторым по интенсивности γ -радионуклидом в чернобыльской зоне после ¹³⁷Cs. Однако в верхнем слое больше всего ¹³⁷Cs, активность ²⁴¹Am составляет 2 % от γ -активности ¹³⁷Cs, а вклад других радионуклидов еще меньше. Как известно, в первые годы после аварии вторым по γ -активности радионуклидом был ¹³⁴Cs, потом ^{154,155}Eu. Из наших данных интересным является то, что ²⁴³Am и ²⁴³Cm нарабатываются по разным цепочкам, а величины относительной активности близки.

Анализ полученных данных

Скорость вертикальной миграции изотопов плутония в наших исследованиях подобна скорости вертикальной миграции ²⁴¹Am, как это наблюдалось и ранее [5]. Поэтому дальнейший анализ мы проводили с данными о ²⁴¹Am, так как погрешность измерений концентрации активности ²⁴¹Am не превышает 5 % даже на глубине 50 - 60 см. В то же время уже на глубине 15 - 20 см погрешность в данных о активности изотопов плутония достигает 15 - 20 %.

На рис. 3 приведены полученные данные о содержании радионуклидов ²⁴¹Am в некоторых слоях почвенных разрезов опытного полигона

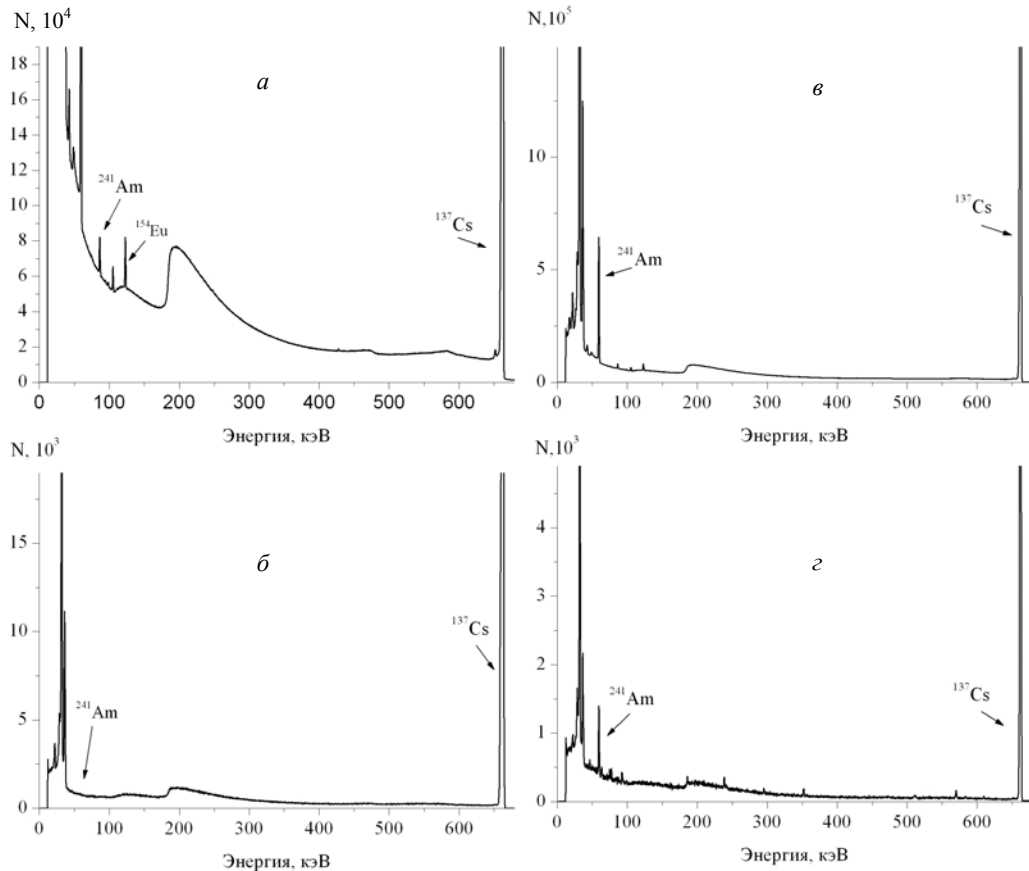


Рис. 3. Распределение радионуклидов ^{241}Am и ^{137}Cs по глубине в зависимости от типа почв: *а* – верхний слой болотной минеральной глинисто-песчаной почвы; *б* – слой на глубине 50 см болотной минеральной глинисто-песчаной почвы; *в* – верхний слой дерново-слабоподзолистой пылевато-песчаной почвы; *г* – слой на глубине 50 см дерново-слабоподзолистой пылевато-песчаной почвы.

«Рыжий лес». Для сравнения нами были выбраны полигоны с максимальной и минимальной скоростью миграции в песчаных и болотных минеральных глинисто-песчаных грунтах на древнеаллювиальных песках. Мы можем проследить γ -линию ^{241}Am 59 кэВ до глубины 50 см в сухих дерново-слабоподзолистых пылевато-песчаных почвах. В увлажненных болотных минеральных глинисто-песчаных почвах ^{241}Am прослеживается только до глубины 20 см. Мы наблюдали ^{241}Am в этих почвах и на глубине 50 - 60 см, однако вклад ^{241}Am становится соизмерим с вкладом глобальных выпадений [9] и при определении параметров, характеризующих миграцию ^{241}Am чернобыльского происхождения, его можно не учитывать.

На рис. 4 представлена гистограмма распределения радионуклидов ^{241}Am , ^{137}Cs и ^{90}Sr по глубине. Активность дана в относительных единицах: активность каждого слоя разделили на активность первого слоя.

На рис. 4 относительная активность показана на слой образца (в логарифмическом масштабе) для сухой дерново-слабоподзолистой пылевато-

песчаной почвы (автоморфные почвы). Видим подобную миграцию ^{137}Cs , ^{90}Sr и ^{241}Am до глубины 50 см. Изотопы идут как бы единым ансамблем, что позволяет предположить, что мигрирует топливная микрочастица.

На рис. 5 из гистограммы для увлажненной болотной минеральной глинисто-песчаной почвы (гидроморфные почвы) видно, что подобное поведение ^{137}Cs , ^{90}Sr и ^{241}Am наблюдается до глубины 10 см. Можно предположить, что верхний слой, состоящий из торфа, корней растений и песка, представляет из себя фильтр, через который микрочастицы проникают с трудом, и комплексное движение ^{137}Cs , ^{90}Sr и ^{241}Am наблюдается до глубины 10 см. А далее по глубине мигрируют ^{137}Cs и ^{90}Sr , несвязанные между собой. Это могут быть изотопы из конденсационных выпадений или выщелоченные из матрицы топливных выпадений. Незначительное количество ^{241}Am , вероятнее всего, выщелочено из «горячих частиц», а также обусловлено «глобальными выпадениями». Это хорошо видно из сравнения активностей на глубине 50 - 60 см для различных типов почв (рис. 6).

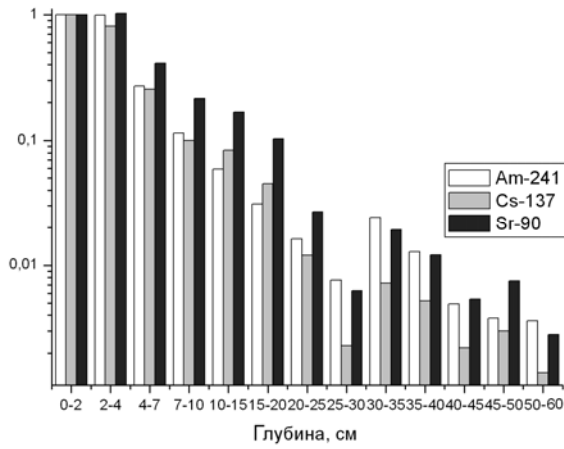


Рис. 4. Гистограмма относительной активности ^{137}Cs , ^{90}Sr и ^{241}Am в дерново-слабоподзолистых пылевато-песчаных почвах.

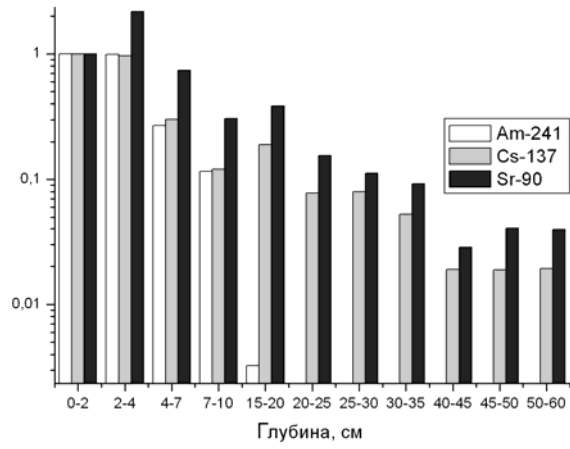


Рис. 5. Гистограмма относительной активности ^{137}Cs , ^{90}Sr и ^{241}Am в болотных минеральных глинисто-песчаных почвах.

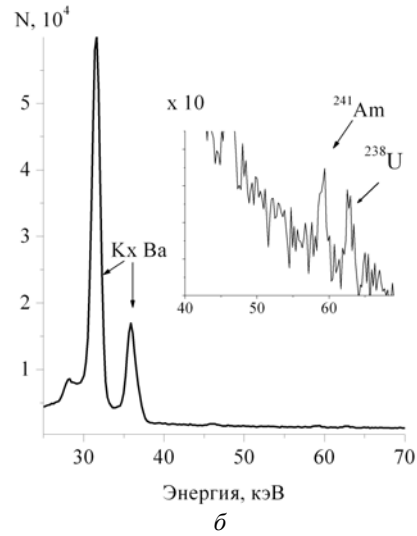
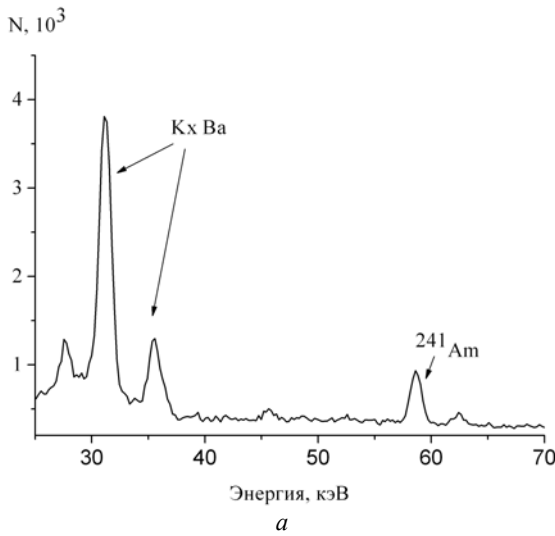


Рис. 6. Активность ^{241}Am на глубине 50 - 60 см в различных типах почв: *а* – дерново-слабоподзолистый пылевато-песчаный грунт; *б* – болотный минеральный оглинено-песчаный грунт.

Проанализировав полученные данные, с помощью модифицированной конвективно-диффузионной модели переноса [2] мы определили периоды экологического полуочистения 5-сантиметрового слоя почвы. Данные приведены в табл. 2. Периоды полуочистения ^{241}Am близки к периодам полуочистения ^{137}Cs и коррелируют между собой независимо от типа почв в разрезе. Это тоже говорит в пользу гипотезы о том, что значительное количество ^{137}Cs , ^{90}Sr и ^{241}Am находится в виде «горячих частиц».

На рис. 7 приведены данные о распределении по глубине ^{241}Am по сравнению с ^{137}Cs , полученные в результате исследований 1999 - 2010 гг. Графики приведены для сухих дерново-слабоподзолистых пылевато-песчаных почв. Активность 2010 г. приведена на грамм для корректного сравнения с данными 1999 г.

Таблица 2. Экологические периоды полуочистения 5-сантиметрового слоя, год

Участок	^{137}Cs	^{90}Sr	^{154}Eu	^{241}Am
Болотный минеральный оглинено-песчаный грунт	38 ± 14	31 ± 15	36 ± 11	35 ± 10
Дерново-слабоподзолистый пылевато-песчаный грунт	58 ± 31	46 ± 34	42 ± 25	42 ± 22

Как видно, скорость миграции практически не изменилась по сравнению с данными, полученными 10 лет назад. Это указывает на то, что параметры вертикального переноса, полученные в

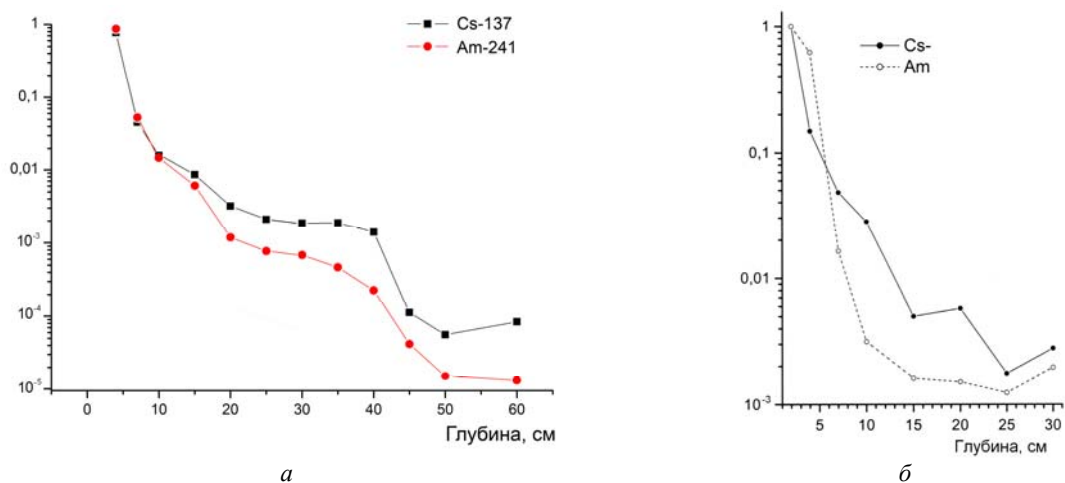


Рис. 7. Данные о распределении по глубине ^{241}Am по сравнению с ^{137}Cs :
 а – исследования 2010 г.; б – исследования 1999 г.

результате использования модифицированной конвективно-диффузионной модели переноса [5] могут успешно использоваться и для текущих радиозокологических оценок. Отметим также, что общая картина поведения радионуклидов достаточно хорошо совпадает с ранее проведенными исследованиями [10 - 12].

Хотелось бы отдельно отметить, что мы наблюдали Кх-излучение урана во всех разрезах во втором и даже в третьем слоях (рис. 8). В работе [4] Кх-излучение урана наблюдалось только в первом слое. Как уже обсуждалось в [3 - 5], Кх-излучение урана, вероятнее всего, проявляется при восстановлении урана из окисла UO_2 . Это

могло произойти только в том случае, если температура во время аварии поднималась до $3000\text{ }^\circ\text{C}$. При такой температуре уран начинает плавиться и собираться в металлические капли. И именно эти «капли», облучаемые потоком γ -квантов, электронов и α -частиц, могут дать то характеристическое излучение, которое мы и регистрируем. За эти годы под воздействием физико-химических процессов размер этих металлических капель тоже мог уменьшиться. Тогда возрастает скорость их перемещения по глубине почвенного разреза и, вероятно, поэтому мы можем наблюдать Кх-излучение урана в более глубоких слоях почвы.

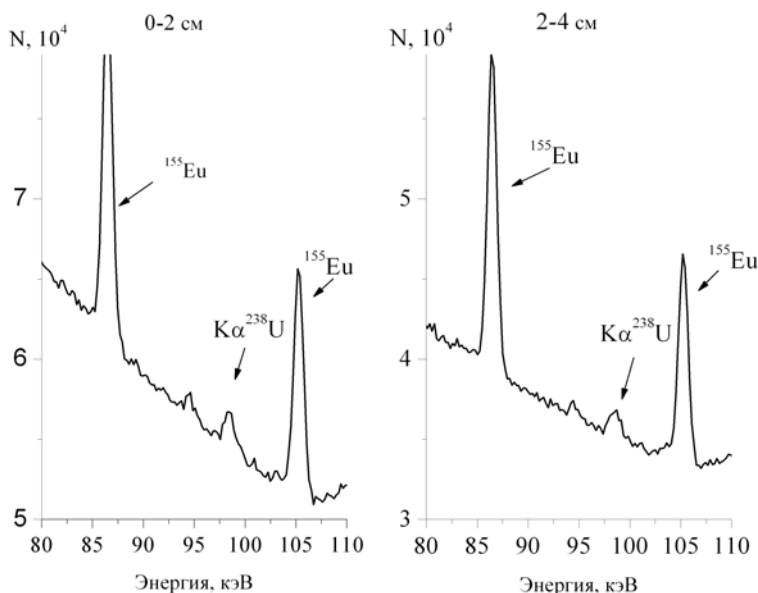


Рис. 8. Фрагменты спектров с $\text{K}\alpha$ -излучением урана.

Все это указывает на высокую радиологическую опасность процессов, проходящих в настоящее время в почвах ближней зоны ЧАЭС, и

на необходимость дальнейших исследований этой территории.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Прохоров В.М. Миграция радиоактивных загрязнений в почвах. Физико-химические механизмы и моделирование / Под ред. Р. М. Алексахина. - М.: Энергоиздат, 1981. - 98 с.
2. Иванов Ю.А., Кашпаров В.А. Поведение в почве радионуклидов, представленных топливной компонентой выпадений аварийного выброса ЧАЭС // Радиохимия. - 1992. - Т. 5. - С. 112 - 124.
3. Бондарьков М.Д., Желтоножская М.В., Липская А.И. и др. Исследование вертикальной миграции радионуклидов чернобыльского происхождения в почвах Полесья // Зб. наук. праць Ін-ту ядерних досл. - 2003. - № 3 (11). - С. 111 - 117.
4. Бондарьков М.Д., Гоцак С.П., Желтоножская М.В. и др. Исследование миграции радионуклидов в 30-км зоне ЧАЭС // Там же. - 2005. - № 3 (16) - С. 90 - 95.
5. Бондарьков М.Д., Гоцак С.П., Желтоножская М.В. и др. Вертикальный перенос $^{134,137}\text{Cs}$, $^{154,155}\text{Eu}$, $^{238,239,240}\text{Pu}$ и ^{241}Am в почвах б.....ей зоны ЧАЭС // Проблемы безопасности атомных электростанций і Чернобиля. - 2006. - Вып. 6. - С. 155 - 163.
6. Бондарьков М.Д., Иванов Ю.А., Желтоножский В.А. и др. Определение содержания плутония в пробах 30-км зоны Чернобыльской АЭС // Атомная энергия. - 2006. - Т. 100, вып. 2. - С. 146 - 150.
7. Бондарьков М.Д., Желтоножская М.В., Максименко А.М., и др. Определение содержания изотопов плутония в чернобыльских образцах по характеристическому L α -излучению урана // Проблемы безопасности атомных электростанций і Чернобиля. - 2005. - Вып. 2. - С. 108 - 112.
8. Бондарьков М.Д., Гоцак С.П., Желтоножский В.А. и др. Об измерении ^{90}Sr нерадиохимическими методами // Научные и технические аспекты международного сотрудничества в Чернобыле. - 2001. - Вып. 3. - С. 424 - 427.
9. Бондарьков М.Д., Желтоножская М.В. Изучение глобальных выпадений, связанных с атомными взрывами // Проблемы безопасности атомных электростанций і Чернобиля. - 2006. - Вып. 5. - С. 157 - 160.
10. Иванов Ю.О. Динаміка перерозподілу радіонуклідів у ґрунтах і рослинності // Чернобыль. Зона відчуження. - К.: Наук. думка. - 2001. - С. 47 - 76.
11. Кашпаров В.О., Лундін С.М., Зварич С.І. та ін. Викид та забруднення території радіонуклідами у складі паливних частинок // Бюлетень екологічного стану зони відчуження та зони безумовного (обов'язкового) відселення. - 2002. - № 2. - С. 22 - 32.
12. Иванов Ю.А., Кашпаров В.А., Левчук С.Е. и др. Вертикальный перенос радионуклидов выброса ЧАЭС в почвах. 1. Долговременная динамика перераспределения радионуклидов в профиле почв in situ // Радиохимия. - 1996. - Т. 38, вып. 3. - С. 264 - 271.

М. В. Желтоножська, Н. В. Куліч, А. І. Липська, Л. В. Садовніков

ДОСЛІДЖЕННЯ ВЕРТИКАЛЬНОЇ МІГРАЦІЇ РАДІОНУКЛІДІВ У ҐРУНТАХ НА ТЕРИТОРІЇ ПОЛІГОНА «РУДИЙ ЛІС»

Проведено дослідження вертикальної міграції радіонуклідів чернобыльського походження в 5-кілометровій зоні ЧАЕС на території дослідницького полігона «Рудий ліс». Проведено γ - і β -спектрометричні дослідження одержаних зразків за допомогою антикомптонівського та β -спектрометрів. Зафіксовано присутність ^{60}Co , $^{134,137}\text{Cs}$, $^{154,155}\text{Eu}$, ^{241}Am до глибини 30 см у всіх ґрунтових розрізах. На деяких ділянках із дерново-слабопідзолистами пілуватопіщаними ґрунтами на давньоалювіальних пісках до глибини 60 см спостерігається присутність ізотопів ^{137}Cs , ^{90}Sr і ^{241}Am . Крім того, у верхніх шарах ґрунту на території дослідницького полігона виявлено присутність ^{243}Am і ^{243}Cm .

Ключові слова: радіонукліди, міграція, ґрунти, цезій, стронцій, америцій.

M. V. Zheltonozhskaya, N. V. Kulich, A. I. Lypska, L. V. Sadovnikov

RESEARCH OF VERTICAL MIGRATION OF RADIONUCLIDES IN THE SOIL AT TESTING «RED FOREST» AREA

Researches of vertical migration of Chernobyl origin radionuclides at testing «Red forest» area in 5-km ChNPP-zone were carried out. The γ - and β - spectrometer measurements of soil samples were carried out using the anticompton spectrometer and a beta spectrometer. Presence of ^{60}Co , $^{134,137}\text{Cs}$, $^{154,155}\text{Eu}$, ^{241}Am to depth of 30 cm in all soil cuts was fixed. The sites with sod-low-podzol sandy soils on alluvial sands contain ^{137}Cs , ^{90}Sr and ^{241}Am to depth of 60 cm. The presence ^{243}Am and ^{243}Cm was found in the top layers of soils at territory of testing area.

Keywords: radio nuclides, migration, soils, cesium, strontium, americium.

Поступила в редакцію 22.06.11,
после доработки - 15.11.11.