

А. І. Липська, В. І. Ніколаєв, В. А. Шитюк, Н. В. Куліч

*Інститут ядерних досліджень НАН України, Київ***ТЕХНОГЕННІ РАДІОНУКЛІДИ АВАРІЙНОГО ВИКИДУ ЧАЕС
ТА ЇХНІ ФІЗИКО-ХІМІЧНІ ФОРМИ**

Досліджено розподіл радіонуклідів по вертикальному профілю ґрунту на території ближньої зони ЧАЕС. Розраховано коефіцієнти накопичення радіонуклідів ^{137}Cs та ^{90}Sr рослинами. Методом послідовного хімічного екстрагування визначено фізико-хімічні форми знаходження радіонуклідів у ґрунтах та рослинах. Установлено, що в ґрунтах на слідах паливних випадів радіонукліди знаходяться в основному в необмінних та фіксованих формах, а в рослинах - переважно в обмінно-адсорбційній та органічній формах.

Ключові слова: радіонукліди, міграція, фізико-хімічні форми, радіоактивне забруднення, чорнобильська зона відчуження.

Унаслідок аварійних викидів на ЧАЕС величезна кількість радіонуклідів у різних фізико-хімічних формах потрапила в навколишнє середовище, що призвело до радіоактивного забруднення значних територій України. Основним джерелом поверхневого радіоактивного забруднення чорнобильської зони відчуження (ЧЗВ) є різні види техногенних новоутворень: радіоактивні частинки змішаного складу, радіоактивні аерозолі та ін. Істотний внесок у забруднення 10-кілометрової зони вносять паливні частинки. За час після аварії під впливом природно-кліматичних факторів, фізико-хімічних перетворень та деструкції паливних частинок радіоактивні випадіння суттєво трансформувались, що спричинило збільшення мобільних і біологічно доступних форм радіонуклідів.

Відомо [1 - 3], що співвідношення мобільних і фіксованих форм радіонуклідів у ґрунтах визначає їхню поведінку в наземних екосистемах. Кількісне визначення фізико-хімічних форм техногенних радіонуклідів у ЧЗВ представляє актуальну наукову та практичну задачу.

Метою роботи було дослідження міграції техногенних радіонуклідів аварійного викиду та визначення фізико-хімічних форм знаходження радіонуклідів у ґрунтово-рослинних комплексах ближньої зони ЧАЕС.

Матеріали та методи досліджень

Комплексні радіоекологічні дослідження включали польові, лабораторні та γ - і β -спектрометричні. Об'єктами досліджень були зразки ґрунту, рослинності та лісової підстилки. Відбір зразків проводили на території природних полігонів ближньої зони ЧАЕС у 2012 - 2013 рр. з одночасним дозиметричним обстеженням тери-

торії. Характер і профілі вертикальної міграції радіонуклідів у ґрунтовому горизонті вивчали пошарово: 0 - 2 см, 2 - 4 см, 4 - 7 см, 7 - 10 см, 10 - 15 см, 15 - 20 см, 25 - 30 см. Ґрунт відбирали методом конверта за допомогою розбірного пробовідбірника. Для визначення коефіцієнта накопичення радіонуклідів K_n місця відбору проб рослин були прив'язані до точок відбору проб ґрунтів [4]. Після стандартної лабораторної підготовки зразків ґрунту, рослинності проводили їхню γ - та β -спектрометрію.

Форми знаходження радіонуклідів у ґрунтах та рослинності визначали за допомогою методу послідовного хімічного екстрагування з модифікаціями [5 - 7]. Співвідношення твердої та рідкої фаз для ґрунту 1:5, для рослин 1:10. Екстракцію фракцій радіонуклідів у пробах ґрунту проводили в такій послідовності: дистильованою H_2O (водорозчинна форма), 1М $\text{CH}_3\text{COONH}_4$ (обмінна і легкорозчинна форма), 1М HCl (кислоторозчинна), 0,1н NaOH форма зв'язана з органічною речовиною; 6М HCl (мінеральний залишок). Унаслідок послідовного хімічного екстрагування ми отримували 5 рідких фракцій та твердий залишок. У рослинах визначали такі форми: обмінно-адсорбційну, органічну та мінеральний залишок [8, 9]. Радіонукліди, що перейшли в контактний розчин відносили до «рухливих» форм, а ті, що залишились у мінеральному залишку, до «необмінних».

Вимірювання радіоактивних зразків проводили на γ -спектрометрі CANBERRA та β -спектрометрі «СЕБ-50». Обробку спектрів здійснювали за допомогою програми WINSPECTRUM та модифікованої програми «Beta fit» [10]. Похибка вимірювання значень активностей γ -випромінювачів не перевищувала 5 - 7 %, а β - 15 - 20 %.

Результати досліджень

Дослідний полігон Янів знаходиться на відстані близько 3 км від аварійного енергоблока ЧАЕС. Це територія з неоднорідним рельєфом, з пагорбами та зниженнями. Ґрунти на дослідних майданчиках дерново-слабопідзолисті піщані (верхні частини пагорба) і дерново-підзолисті глеюваті супісчані (улоговини, безстічні пониження). Кислотність ґрунтів на реперних ділянках була рН = 5,5 - 6,0. Травостій на пониженнях густий, в основному осоковий. На сухих місцях злакова рослинність та зарослі вересу.

На території спостерігали значну плямистість забруднення радіоактивними викидами, потужність експозиційної дози γ -випромінювання була в межах від 600 до 5000 мкР/год. Питома активність ^{137}Cs , ^{90}Sr та ^{241}Am поверхневого шару ґрунту в різних точках відбору відрізнялась у 4 - 6 разів. Це пов'язано зі складними фізико-хімічними процесами, які відбувались в аварій-

ному реакторі і обумовили нерівномірний характер розсіювання радіоактивних елементів та їхніх сполук на прилеглу територію [11].

Базуючись на даних спектрометричних досліджень проб ґрунту, розраховано щільність забруднення території: ^{137}Cs $13 \div 62$ МБк/м², ^{90}Sr $2,7 \div 15,6$ МБк/м², ^{241}Am $0,5 \div 1,6$ МБк/м².

Досліджено вертикальний розподіл радіонуклідів у ґрунтах. На рис. 1 наведено розподіл для однієї точки відбору, де видно, що основна активність радіонуклідів на пагорбах все ще сконцентрована в поверхневому шарі ґрунту (0 - 2 см), а на пониженнях – у 10-сантиметровому шарі. Зі збільшенням ступеня зволоження ґрунтів глибина проникнення радіонуклідів суттєво збільшується. У зволжених місцях на глибині 20 - 30 см знаходиться 1 - 5 % ^{137}Cs , 2 - 8 % ^{90}Sr та 0,1 - 0,3 % ^{241}Am від загальної активності в ґрунті. На сухих ділянках менше одного відсотка активності перемістилось на глибину 30 см.

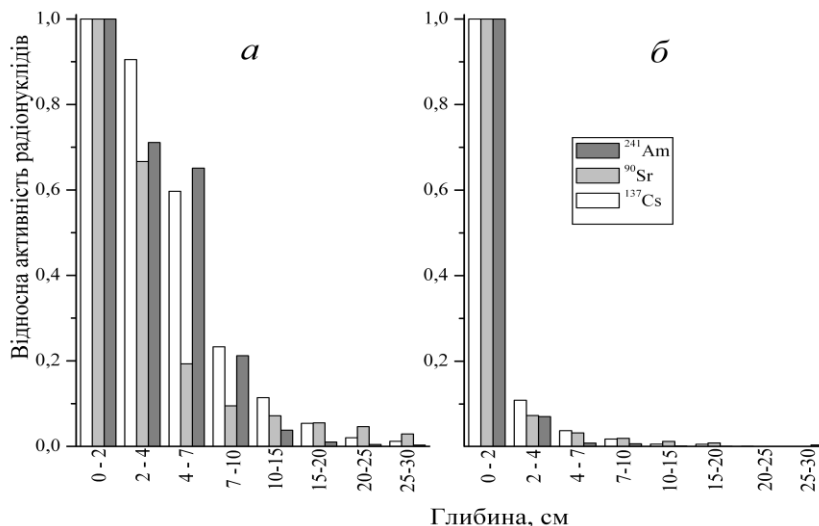


Рис. 1. Вертикальний розподіл радіонуклідів у ґрунтах з різним типом зволоження відносно верхнього шару (0 - 2 см): а – вологий ґрунт (безстічні пониження); б – сухий ґрунт (верхня частина пагорба).

Розподіл радіонуклідів по вертикальному профілю досить точно описується експоненційною залежністю $A = A_0 \cdot e^{-\lambda x}$, де A_0 – активність радіонукліда у верхньому шарі ґрунту (кБк/кг); A – активність радіонукліда в дослідному шарі ґрунту (кБк/кг); λ – постійна, що характеризує міграційну здатність радіонукліда і залежить від фізико-хімічних властивостей сполук радіонукліда та типу ґрунту; x – глибина (см). Визначено значення λ для окремих радіонуклідів (табл. 1).

Розрахункові оцінки свідчать, що міграційна здатність радіонуклідів на зволжених ґрунтах вища в 1,5 - 2 рази в порівнянні з ґрунтами помірного зволоження. Підвищена міграція, імовірно, реалізується внаслідок процесів водної конвекції.

Таблиця 1. Постійна міграційної здатності радіонуклідів у ґрунтах, λ , см⁻¹

Радіонуклід	Верхня частина пагорба	Безстічні пониження
^{137}Cs	0,60	0,30
^{90}Sr	0,62	0,45
^{241}Am	0,70	0,33

Проведені дослідження демонструють, що для ^{90}Sr характерна більш інтенсивна міграція по профілю ґрунту, ніж для ^{137}Cs . Це вказує на інтенсивні процеси іммобілізації ^{137}Cs у ґрунтово-поглинальному комплексі на відміну від ^{90}Sr . У [1, 2, 12] також спостерігали підвищену міграційну здатність ^{90}Sr у ґрунтах на слідах паливних випадів ЧАЕС.

Досліджено особливості накопичення радіонуклідів ^{137}Cs та ^{90}Sr рослинами – типовими представниками даної території (*Cárex L.*, *Stipa L.*, *Calluna vulgaris L.*). Активність ^{137}Cs в рослинах була в межах 280 - 870 кБк/кг, а ^{90}Sr змінювалась від 252 до 575 кБк/кг. У *Calluna vulgaris L.* у пробах надземної фітомаси реєстрували найвищі концентрації радіонуклідів ^{90}Sr та ^{137}Cs . Це обумовлено тим, що верес багаторічна рослина, коріння якого тісно оплетене мікоризою. Деякі мікоризні гриби відіграють ключову роль у мінеральному живленні вищих рослин, сприяючи надходженню радіонуклідів у складі поживних речовин.

Система «грунт – рослина» є найбільш важливою ланкою в біологічних ланцюгах міграції радіонуклідів. Вміст радіонуклідів у рослинності визначається як загальним вмістом, так і формами знаходження радіонуклідів у ґрунті, а також біологічною особливістю рослин. Інтенсивність переносу радіонуклідів із ґрунту в рослини оцінювали за величиною коефіцієнтів накопичення K_n (відношення питомої активності радіонукліда в надземній частині рослини до питомої активності у ґрунті), результати розрахунків наведено в табл. 2.

Таблиця 2. Коефіцієнти накопичення радіонуклідів різними видами рослин

Вид	Місце відбору	K_n	
		^{137}Cs	^{90}Sr
Осока <i>Cárex L.</i>	безстічні пониження	$0,21 \pm 0,04$	$0,58 \pm 0,15$
Ковила <i>Stipa L.</i>	верхня частина пагорба	$0,40 \pm 0,07$	$0,55 \pm 0,14$
Верес <i>Calluna vulgaris L.</i>	нижня частина пагорба	$0,91 \pm 0,1$	$1,37 \pm 0,050$

Показано, що рослини накопичують ^{90}Sr більш інтенсивно (K_n ^{90}Sr більше в 1,3 - 2,7 раза, ніж ^{137}Cs). По рівню зростання K_n ^{137}Cs рослини складають ряд «верес > ковила > осока», а ^{90}Sr – «верес > осока \geq ковила». Величина K_n визначається видовою приналежністю рослин, типом ґрунту, на якому вони зростають, активністю та формами знаходження радіонуклідів у ґрунті.

За допомогою методу послідовної екстракції визначено форми знаходження радіонуклідів у дерново-слабопідзолистому піщаному ґрунті в шарі 0 - 4 см. Установлено, що основний вміст ^{137}Cs та ^{90}Sr у ґрунтах знаходиться в необмінних та фіксованих формах (70 - 90 %). У табл. 3 наведено розподіл форм радіонуклідів у ґрунтах. Такий розподіл обумовлений тим, що значна частина радіонуклідів у ґрунтах усе ще знаходиться в складі паливних частинок і слабо вилугується контактними розчинами. За результатами наших досліджень установлено, що значна частина радіонуклідів у ґрунтах знаходиться в необмінному стані і, імовірно, найближчим часом не буде включатись у процеси перерозподілу.

Таблиця 3. Вміст радіонуклідів у ґрунтових витяжках із дерново-слабопідзолистих піщаних ґрунтів, % від загальної активності

Екстрагент	^{137}Cs	^{90}Sr
H_2O	$0,20 \pm 0,01$	$0,25 \pm 0,05$
1М $\text{CH}_3\text{COONH}_4$	$0,31 \pm 0,02$	$9,35 \pm 0,8$
0,1 н NaOH	$0,49 \pm 0,03$	$2,4 \pm 0,45$
1М HCl	$2,5 \pm 0,5$	$7,5 \pm 0,7$
6М HCl	$12,5 \pm 1,5$	$2,5 \pm 0,5$
Твердий залишок	84 ± 5	78 ± 8

При проведенні спектрометричних досліджень екстрагованих фракцій радіонуклідів із біомаси рослин установлено, що в рослинах радіонукліди переважно знаходяться в обмінно-адсорбційній та органічній формах (85 - 90 %). Розподіл радіонуклідів по фракціях не залежав від питомої активності ^{137}Cs і ^{90}Sr в рослинах. На рис. 2 представлено форми знаходження радіонуклідів у рослинах.

Отже, значна частина радіонуклідів після відмирання рослин може активно включатись як в абіогенний, так і біогенний кругообіг речовин.

Нами досліджено вміст радіонуклідів у лісовій підстилці. Питома активність ^{137}Cs в підстилці в різних місцях відбору була в межах 474 – 790 кБк/кг, а активність ^{90}Sr змінювалась від 400 до 600 кБк/кг. Питома активність радіонуклідів у лісовій підстилці перевищувала таку в ґрунті на різних ділянках від 1,5 до 4,0 разів.

Проведено лабораторні дослідження процесів вилугування радіонуклідів із проб ґрунту розчинами різного складу. В якості контактних розчинів використовували нерадіоактивні водні настої листяного опаду (рН = 5,5) та хвої (рН = 4,7), а також дистильовану воду (рН = 6,8). Максимальну ступінь вилугування радіонуклідів з ґрунту відзначали при використанні водної витяжки листяного опаду. Питома активність радіонуклідів у водних витяжках ґрунту зростає в ряду «дистильована вода < хвоя < листяний опад». Збільшення виходу (у 3 - 5 разів) радіонуклідів із ґрунту в контактний розчин (рослинні витяжки), імовірно, зумовлено присутністю різних органічних кислот, що впливають на трансформацію хімічних сполук, до складу яких входять радіонукліди.

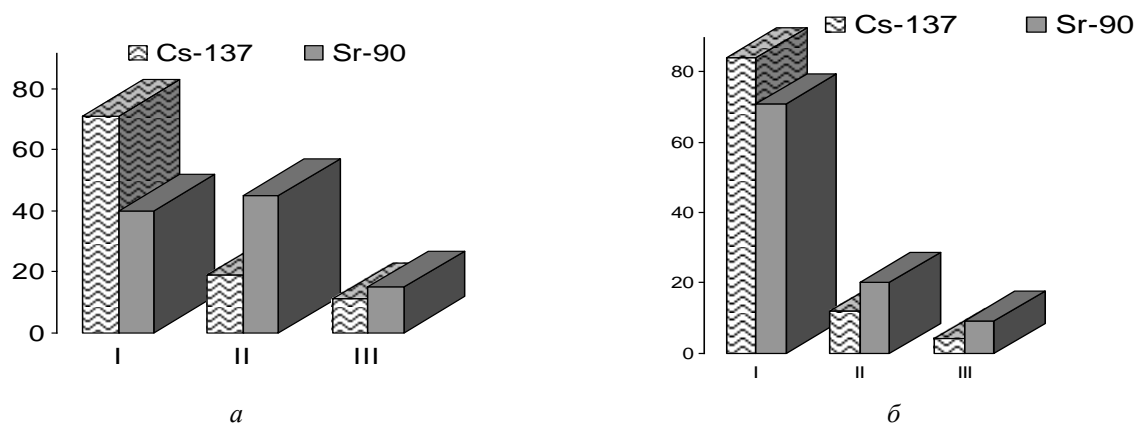


Рис. 2. Форми знаходження ^{137}Cs та ^{90}Sr в рослинах: I - обмінно-адсорбційна; II – органічна; III - мінеральний залишок; а - верес; б - осока.

Отже, у лісових екосистемах, у низинах, де тривалий час може затримуватись дощова вода (опаді), лісова підстилка стає істотним джерелом рухливих форм радіонуклідів. Радіонукліди, що перейшли з лісової підстилки у водний розчин, легко переміщуються за рахунок конвективного переносу до кореневмісного шару ґрунту і в подальшому вступають у біологічний кругообіг. Отже, тривала наявність вологи на поверхні ґрунту – важливий фактор, який збільшує вилуговування та міграційну здатність радіонуклідів.

Висновки

1. Досліджено ізотопний склад аварійних радіонуклідних випадіннь, серед яких на сучасному етапі ^{137}Cs , ^{90}Sr та ^{241}Am є основними випромінювачами, вклад інших радіонуклідів був незначний.
2. Основний вміст радіонуклідів сконцентрований у кореневмісному горизонті ґрунту, що вказує на низькі темпи їхньої вертикальної міграції.

3. Установлено, що міграційна здатність радіонуклідів на зволжених ґрунтах вища в 1,5 - 2 рази в порівнянні з ґрунтами помірного зволоження.

4. Визначено вміст та коефіцієнти накопичення ^{137}Cs та ^{90}Sr рослинами. Величина K_d визначається видовою приналежністю рослини, типом ґрунту, на якому вони зростають, та питомою активністю радіонуклідів у ґрунті.

5. Визначено форми знаходження радіонуклідів у ґрунтах і рослинності за допомогою методу послідовної екстракції. Установлено, що у ґрунтах на слідах паливних випадіннь ^{137}Cs і ^{90}Sr в основному знаходяться в необмінних та фіксованих формах, а в рослинах - переважно в обмінно-адсорбційній та органічній формах.

6. Тривалий контакт води з лісовою підстилкою та ґрунтом сприяє прискоренню деструкції, вилуговуванню з паливних частинок радіонуклідів та їхнім міграційним процесам.

СПИСОК ЛІТЕРАТУРИ

1. Иванов Ю.А., Левчук С.Е., Киреев С.И. и др. Подвижность радионуклидов выброса ЧАЭС в почвах отчужденных территорий // Ядерная физика та энергетика. - 2011. - Т. 12, № 4. - С. 375 - 384.
2. Kashparov V.A., Lundin S.V., Khomutinin Yu.V. et al. Soil contamination with ^{90}Sr mobility in the Chernobyl accident // Journal of Environmental Radioactivity. - 2001. - Vol. 56, No. 3. - P. 285 - 298.
3. Prister B.S., Baryakhtar V.G., Pereplyatnikova L.V. et al. Experimental Substantiation and Parameterization of Model Describing ^{137}Cs and ^{90}Sr Behavior in a Soil-Plant System // Environmental Science and Pollution Research. - 2003. - Special Issue 1. - P. 126 - 136.
4. Методика відбору ґрунтових і рослинних проб для визначення в них вмісту радіоактивних речовин. - К.: МінАПК УкрНДІСГР, 1987. - 48 с.
5. Павлоцкая Ф.И. Миграция радиоактивных продуктов глобальных выпадений в почвах. - М.: Атомиздат, 1974. - 215 с.
6. Горяченкова Т.А., Казинская И.Е., Лавринович Е.А. и др. Формы нахождения искусственных радионуклидов в почвах // Материалы IV Междунар. конф. (Томск, 4 - 8 июня 2013 г.) «Радиоактивность и радиоактивные элементы в среде обитания человека». - Томск: Изд-во Томск. политех. ун-та, 2013. - С. 151 - 154.
7. Кундузбаева А.Е., Кабдыракова А.М. Формы нахождения радионуклидов в почвах «северных» территорий СИП // Материалы комплексного радиоэкологического обследования «западной» части территории СИП. - Курчатов, 2011. - 197 с.
8. Деметьев Д.В., Болсуновский А.Я. Содержание техногенных радионуклидов в кустарниковых растениях и грибах в зоне влияния Горно-химического комбината (Красноярский край) // Journal of Siberian Federal University. Biology. - 2009. - No. 2. - P. 172 - 181.
9. Ganzha Ch., Gudkov D., Ganzha D. et al. Physicochemical forms of ^{90}Sr and ^{137}Cs in components of Glyboke Lake ecosystem in the Chernobyl exclusion

- zone // Journal of Environmental Radioactivity. - 2014. - Vol. 127. - P. 176 - 181.
10. Желтоножская М.В., Кулич Н.В., Липская А.И. и др. Новые методические подходы к одновременному измерению активности ^{90}Sr и ^{137}Cs в объектах окружающей среды // Ядерная физика та енергетика. - 2012. - Т. 13, № 4. - С. 403 - 408
11. Chernobyl Catastrophe / Ed. V. G. Baryakhtar. - Kyiv: Export Publishing House, 1997. - 572 p.
12. Желтоножська М.В., Кулич Н.В., Липська А.І., Садовніков Л.В. Дослідження вертикальної міграції радіонуклідів на території полігона «рудий ліс» // Ядерна фізика та енергетика. - 2011. - Т. 12, № 4. - С. 394 - 400.

А. И. Липская, В. И. Николаев, В. А. Шитюк, Н. В. Кулич

Институт ядерных исследований НАН Украины, Киев

ТЕХНОГЕННЫЕ РАДИОНУКЛИДЫ АВАРИЙНОГО ВЫБРОСА ЧАЭС И ИХ ФИЗИКО-ХИМИЧЕСКИЕ ФОРМЫ

Исследовано распределение радионуклидов по вертикальному профилю почвы на территории ближней зоны ЧАЭС. Экспериментально показано, что основная активность радионуклидов находится в верхнем 10-сантиметровом слое почвы. Рассчитаны коэффициенты накопления радионуклидов ^{137}Cs та ^{90}Sr растительностью. Методом последовательного химического экстрагирования определены физико-химические формы нахождения радионуклидов в почве и растительности. Установлено, что в почвах на следах топливных выпадений радионуклиды в основном находятся в необменных и фиксированных формах, а в растениях – в обменно-адсорбционной и органической формах.

Ключевые слова: радионуклиды, миграция, физико-химические формы, радиоактивное загрязнение, чернобыльская зона отчуждения.

A. I. Lypska, V. I. Nikolaev, V. A. Shytiuk, N. V. Kulich

Institute for Nuclear Research, National Academy of Sciences of Ukraine, Kyiv

TECHNOGENIC RADIONUCLIDES OF CHERNOBYL NPP ACCIDENTAL RELEASE AND THEIR PHYSICAL AND CHEMICAL FORMS

Distribution of radionuclides in the vertical soil profile on the nearest Chernobyl NPP zone of alienation was investigated. Experimentally showed that the main activity of radionuclides is concentrated in the topsoil (10 cm). Coefficients of radionuclides accumulation of ^{137}Cs and ^{90}Sr by plants are estimated. The physico-chemical forms of radionuclides in soil and plants were defined using the method of sequential chemical extraction. It was established that the main content of ^{137}Cs and ^{90}Sr in soils are represented in non-exchange and fixed forms, in plants - mainly in exchange-adsorption and organic forms.

Keywords: radionuclide, migration, physicochemical forms, Chernobyl exclusion zone, radioactive contamination.

REFERENCES

1. Ivanov Yu.A., Levchuk S.E., Kireev S.I. et al. // Nucl. Phys. At. Energy. - 2011. - Vol. 12, No. 4. - P. 375 - 384. (Rus)
2. Kashparov V.A., Lundin S.V., Khomutinin Yu.V. et al. Soil contamination with ^{90}Sr mobility in the Chernobyl accident // Journal of Environmental Radioactivity. - 2001. - Vol. 56, No. 3. - P. 285 - 298.
3. Prister B.S., Baryakhtar V.G., Perepelyatnikova L.V. et al. Experimental Substantiation and Parameterization of Model Describing ^{137}Cs and ^{90}Sr Behavior in a Soil-Plant System // Environmental Science and Pollution Research. - 2003. - Special Issue 1. - P. 126 - 136.
4. Method of soil and plant samples selection for radioactive substances determining. - Kyiv: Ministry of Agriculture Ukrainian Institute of Agricultural Radiology, 1987. - 48 p. (Ukr)
5. Pavlotskaya F.I. The migration of radioactive products of global fallout in soils. - Moskva: Atomizdat, 1974. - 215 p. (Rus)
6. Goryachenkova T.A., Kazinskaya I.E., Lavrinovich E.A. et al. Forms of artificial radionuclides finding in the soils // Proc. of IV Intern. Conf. (Tomsk, 4 - 8 June 2013) "Radioactivity and radioactive elements in the human environment". - Tomsk: Publishing house of Tomsk. polytech. university, 2013. - P. 151 - 154. (Rus)
7. Kunduzbaeva A.E., Kabdyrakova A.M. Forms of radionuclides in the soils of "northern" territories of SIP // Proc. of complex radioecological survey "western" part of the territory of SIP. - Kurchatov, 2011. - 197 p. (Rus)
8. Dement'ev D.V., Bolsunovskij A.Ya. // Journal of Siberian Federal University. Biology. - 2009. - No. 2. - P. 172 - 181. (Rus)
9. Ganzha Ch., Gudkov D., Ganzha D. et al. Physico-chemical forms of ^{90}Sr and ^{137}Cs in components of Glyboke Lake ecosystem in the Chernobyl exclusion zone // Journal of Environmental Radioactivity. - 2014. - Vol. 127. - P. 176 - 181.
10. Zheltonozhskaya M.V., Kulich N.V., Lipskaya A.I. et al // Nucl. Phys. At. Energy. - 2012. - Vol. 13, No. 4. - P. 403 - 408. (Rus)
11. Chernobyl Catastrophe / Ed. V. G. Baryakhtar. - Kyiv: Export Publishing House, 1997. - 572 p.
12. Zheltonozhs'ka M.V., Kulych N.V., Lypska A.I., Sadovnikov L.V. // Nucl. Phys. At. Energy. - 2011. - Vol. 12, No. 4. - P. 394 - 400. (Ukr)

Надійшла 07.08.2015
Received 07.08.2015