

## ИССЛЕДОВАНИЕ ВЕРТИКАЛЬНОЙ МИГРАЦИИ ИСКУССТВЕННЫХ РАДИОНУКЛИДОВ ЧЕРНОБЫЛЬСКОГО ПРОИСХОЖДЕНИЯ В ПОЧВАХ ПОЛЕСЬЯ

М. Д. Бондарьков<sup>1</sup>, М. В. Желтоножская<sup>2</sup>, А. И. Липская<sup>3</sup>,  
Л. В. Садовников<sup>3</sup>, В. В. Токаревский<sup>2</sup>

<sup>1</sup> *Международная радиоэкологическая лаборатория, Славутич*

<sup>2</sup> *ГСП «Техноцентр», Киев*

<sup>3</sup> *Институт ядерных исследований НАН Украины, Киев*

Проведено исследование миграции радионуклидов чернобыльского происхождения в вертикальных почвенных разрезах площадки захоронения «Рыжего леса» в 5-километровой зоне ЧАЭС. Пробы в количестве 1122 шт. отбирались в 2000 – 2001 гг. После специальной их обработки исследовалось рентгеновское,  $\gamma$ - и  $\beta$ -излучение целевых радионуклидов. Идентифицированы изотопы  $^{134,137}\text{Cs}$ ,  $^{154,155}\text{Eu}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{238+239+240}\text{Pu}$  в урановой матрице. По  $\beta$ -спектрам «толстых» проб измерены ( $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$ ) в равновесии. Изотопы  $^{238,239}\text{Pu}$  определялись по методу L $\alpha$ -спектрометрии урана и нептуния. Прослежена миграция изотопов  $^{134,137}\text{Cs}$ ,  $^{154,155}\text{Eu}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{241}\text{Am}$  до глубины 30 см, а изотопов  $^{238+239+240}\text{Pu}$  – до глубины 10 ÷ 15 см. Полученные данные анализируются.

### Введение

Радиоактивные продукты техногенного происхождения, попадая на поверхность земли, начинают активно участвовать в геохимических, физико-химических, биохимических и других процессах, протекающих в почвах. Геохимическое поведение радионуклидов и стабильных изотопов, в общем-то, подчиняется одним и тем же закономерностям. Более сложная ситуация наблюдается в случае трансурановых радионуклидов, таких как изотопы плутония и америция. Эта группа искусственных радионуклидов привлекает пристальное внимание из-за их высокой радиобиологической опасности. К этой характерной группе трансурановых радионуклидов относятся  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$  и  $^{241}\text{Am}$ . Они характеризуются большими периодами полураспада и при этом испускают высокоэнергетичные  $\alpha$ -частицы и осколки деления, что представляет собой длительно действующую радиологическую опасность для человека. Кроме того, трансурановые радионуклиды относятся к числу наименее изученных химически токсичных элементов, попадающих в окружающую среду вследствие техногенных выбросов. Для них не существует в природе стабильных надежно изученных аналогов. Отметим также, что если исследования поведения плутония в почвах проводились достаточно широко [1, 3, 5, 7, 9], то геохимические свойства америция остаются пока мало исследованными.

Что касается возможности миграции трансурановых элементов в почвах ближней 5-километровой зоны ЧАЭС, то по сочетанию ландшафтных факторов стока эта зона относится к территориям с абсолютным преобладанием процессов инфильтрации над поверхностным стоком. Здесь широко представлены [4] различные сочетания механических, сорбционных и глеевых барьеров. Поэтому в первые годы после Чернобыльской аварии прогнозы по растворению и миграции радиоактивных выпадений были достаточно оптимистичными. Однако в последние годы в грунтовых водах в районах захоронений соснового леса (ПВЗРО «Рыжий лес») были обнаружены изотопы плутония в значительном количестве ( $\sim 10^{-10}$  Ки/л) [7]. Таким образом, возник интерес к изучению вертикальной миграции радионуклидов на территориях вблизи этих участков.

### Эксперимент и результаты исследования

В 2001 - 2002 гг, совместными усилиями выше обозначенных организаций, в плане научных интересов, были проведены такие исследования.

Пробы грунта были отобраны в районе ПВЗРО «Рыжий лес» в направлении Припять - Чистоголовка (рис. 1). В указанном звездочкой месте было выделено три открытые площадки, расположенные в вершинах равностороннего треугольника, каждая радиусом 100 м. Это территория надпойменной террасы правого берега р. Припять с дерново-подзолистыми песчаными почвами. В ландшафте этой террасы очень неравномерно присутствуют ландшафтно-геохимические барьеры. В толще почвенных песков имеются только слабовыраженные и очень неравномерно встречающиеся прослой глинистых песков, которые образуют малоемкие сорбционные барьеры на глубинах 1 - 1,5 м. Глеевые барьеры залегают здесь на глубинах 3 - 5 м [4]. Для этой территории характерно сочетание высокой проницаемости песков с высокой плотностью радиоактивных выпадений. Именно на этих участках складывается наиболее благоприятные условия для вертикальной миграции радионуклидов, что и послужило одним из основных условий при выборе места пробоотбора.

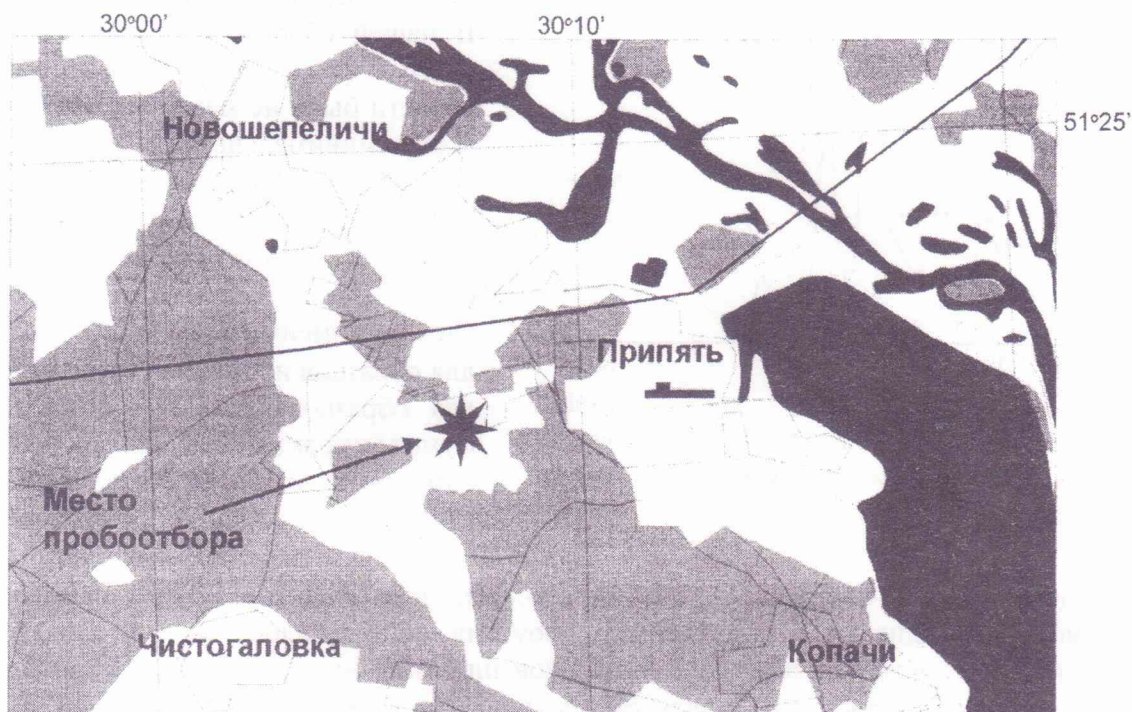


Рис. 1. Фрагмент карты Чернобыльской зоны отчуждения с указанием места пробоотбора.

Отбирались пробы грунта пробоотборником в виде керна, из которого выделялись слои до глубин 2, 4, 7 и 10 см и затем по 5 см (четыре слоя). Массы проб из верхнего слоя колебались от 0,7 до 1,5 кг в зависимости от содержания в них органики. Массы проб последующих трех слоев были от 1,8 до 2,3 кг, массы проб слоев от 10 до 30 см не выходили за пределы 2,8 - 3,3 кг в зависимости от присутствия в пробах разных геологических фракций. Всего на всех трех площадках было отобрано 1122 пробы, из которых 126 проб после комплексного спектрометрического анализа были направлены на радиохимическое выделение изотопов плутония и америция, а также  $^{90}\text{Sr}$ . Полученные тонкие образцы измерялись стандартными  $\alpha$ -спектрометрическими и  $\beta$ -радиометрическими методами. Сравнение результатов этих измерений с комплексным анализом приведены в работах [2, 3].

Нами для выполнения этих работ были разработаны  $\gamma$ - и рентген-спектрометрические методики, объединенные с  $\beta$ -спектрометрией «толстых» образцов, толщина которых не превышает полного пробега  $\beta$ -частиц с граничной энергией  $\beta$ -спектра  $^{90}\text{Y}$ . По этой методике были определены активности радионуклидов  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{154,155}\text{Eu}$ ,  $^{241}\text{Am}$  и суммарная активность изотопов  $^{238+239+240}\text{Pu}$  [2, 3]. Активность  $^{90}\text{Sr}$  определялась с учетом влияния традиционных естественных  $\beta$ -излучателей ториевого и уранового рядов [2], содержание их

определялось по присутствию в  $\gamma$ -спектре конкретной пробы сопутствующих этим изотопам линий, характерных для дочерних радионуклидов соответствующего ряда (принимается, что они находятся в состоянии равновесия с материнским изотопом).

Исследование  $\gamma$ -излучения образцов, приготовленных из гомогенизированных по  $^{137}\text{Cs}$  проб (степень гомогенизации  $\approx 2\%$ ), выполнялось на антикомptonовском спектрометре с детектором из сверхчистого германия, имеющем входное бериллиевое окно толщиной 250 мкм и с энергетическим разрешением 1,9 кэВ по  $\gamma$ -линии 1,33 МэВ  $^{60}\text{Co}$  и 350 эВ на  $\gamma$ -линии 59 кэВ изотопа  $^{241}\text{Am}$ . На стандартной линии 122 кэВ  $^{57}\text{Co}$  (ОСГИ) разрешение составляет 0,9 кэВ. Эффективность спектрометра, согласно паспортным данным фирмы

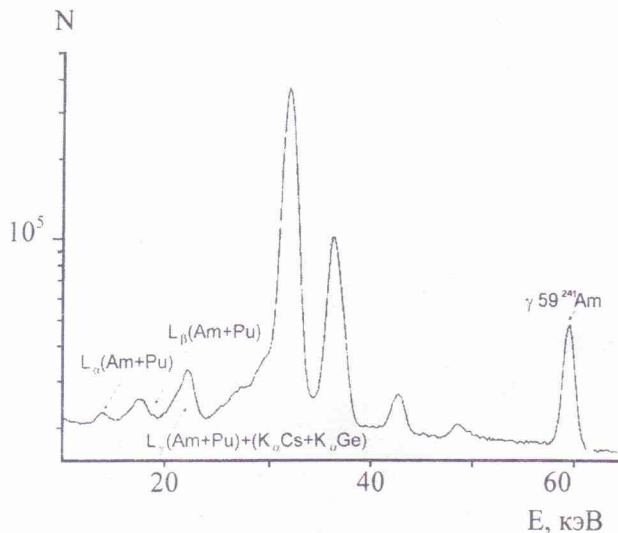


Рис. 2. Фрагмент спектра образца почвы из ПВЗРО «Рыжий лес», измеренного на антикомptonовском  $\gamma$ -спектрометре.

CANBERRA, составляет 30 % относительно стандартного сцинтилляционного детектора NaI(Tl) размерами 3"  $\times$  3' (три квадратных дюйма на три дюйма длины). В нашей сборке подавление комptonовского фона в низкоэнергетической области было не менее восьми, благодаря этому минимально определяемая активность  $^{241}\text{Am}$  составила  $(0,30 \pm 0,15)$  Бк/обр. Это позволило надежно определить активность  $^{241}\text{Am}$  даже в самых глубоких слоях (рис. 2), при этом время набора спектра изменялось в пределах от 1000 с для образцов из верхних слоев до  $2 \cdot 10^5$  с для образцов из самых нижних слоев. Суммарная активность изотопов плутония определялась по разработанной нами методике, основанной на измерении характеристического излучения, сопровождающего процесс внутренней конверсии  $\gamma$ -лучей изотопов урана [3]. Этот процесс, в основном, проходит на L-подоболочках, поэтому исследовалось  $L_x$ -излучение урана и нептуния, обусловленное  $\alpha$ -распадом изотопов плутония и америция соответственно. При этом важная роль отводилась учету самопоглощения в образце рентгеновских и  $\gamma$ -линий исследуемых изотопов для диапазона энергий (10 - 150) кэВ [3]. Минимально определяемая суммарная по изотопам ( $^{238+239+240}\text{Pu}$ ) активность составила  $(0,4 \pm 0,2)$  Бк/обр при массе образца от 10 г для верхних слоев до 60 г для нижних слоев. Кроме увеличения массы измеряемого образца увеличивалось и время набора спектра до достижения статистической погрешности определения площади соответствующего пика полного поглощения (ППП) до уровня  $\leq 0,5\%$ . Для каждой пробы измерялось по три образца для схождения результатов. Характерный спектр образца приготовленного из пробы слоя от 2 до 4 см, приведен на рис. 2. На рис. 3 представлены фрагменты спектров образцов, изготовленных из проб с различных глубин. В верхних двух слоях преобладают супесчаные подзолистые почвы с высоким содержанием органических фракций. В последующих слоях серые пески сменяются рыжими глинистыми песками с минимальными вкраплениями глин и органических фракций. Такое изменение почвенных структур приводит к увеличению насыпной плотности получаемых образцов, что учитывалось при обработке спектров в коэффициентах самопоглощения рентгеновских и  $\gamma$ -линий исследуемых изотопов.

Для исключения возможных систематических ошибок и с целью сравнения миграционного поведения изучаемых радионуклидов относительно  $^{137}\text{Cs}$  основная часть исследований проводилась в области от 10 до 150 кэВ. Нами изучалось поглощение и выходы  $K_x$ -излучения бария от распада  $^{137}\text{Cs}$ , гадолиния (от распада изотопов  $^{154,155}\text{Eu}$ ),  $L_x$ -линий

CANBERRA, составляет 30 % относительно стандартного сцинтилляционного детектора NaI(Tl) размерами 3"  $\times$  3' (три квадратных дюйма на три дюйма длины). В нашей сборке подавление комptonовского фона в низкоэнергетической области было не менее восьми, благодаря этому минимально определяемая активность  $^{241}\text{Am}$  составила  $(0,30 \pm 0,15)$  Бк/обр. Это позволило надежно определить активность  $^{241}\text{Am}$  даже в самых глубоких слоях (рис. 2), при этом время набора спектра изменялось в пределах от 1000 с для образцов из верхних слоев до  $2 \cdot 10^5$  с для образцов из самых нижних слоев. Суммарная активность изотопов плутония определялась по разработанной нами методике, основанной на измерении характеристического излучения, сопровождающего процесс внутренней конверсии  $\gamma$ -лучей изотопов урана [3]. Этот процесс, в основном, проходит на L-подоболочках, поэтому исследовалось  $L_x$ -излучение урана и нептуния, обусловленное  $\alpha$ -распадом изотопов плутония и америция соответственно. При этом важная роль отводилась учету самопоглощения в образце рентгеновских и  $\gamma$ -линий исследуемых изотопов для диапазона энергий (10 - 150) кэВ [3]. Минимально определяемая суммарная по изотопам ( $^{238+239+240}\text{Pu}$ ) активность составила  $(0,4 \pm 0,2)$  Бк/обр при массе образца от 10 г для верхних слоев до 60 г для нижних слоев. Кроме увеличения массы измеряемого образца увеличивалось и время набора спектра до достижения статистической погрешности определения площади соответствующего пика полного поглощения (ППП) до уровня  $\leq 0,5\%$ . Для каждой пробы измерялось по три образца для схождения результатов. Характерный спектр образца приготовленного из пробы слоя от 2 до 4 см, приведен на рис. 2. На рис. 3 представлены фрагменты спектров образцов, изготовленных из проб с различных глубин. В верхних двух слоях преобладают супесчаные подзолистые почвы с высоким содержанием органических фракций. В последующих слоях серые пески сменяются рыжими глинистыми песками с минимальными вкраплениями глин и органических фракций. Такое изменение почвенных структур приводит к увеличению насыпной плотности получаемых образцов, что учитывалось при обработке спектров в коэффициентах самопоглощения рентгеновских и  $\gamma$ -линий исследуемых изотопов.

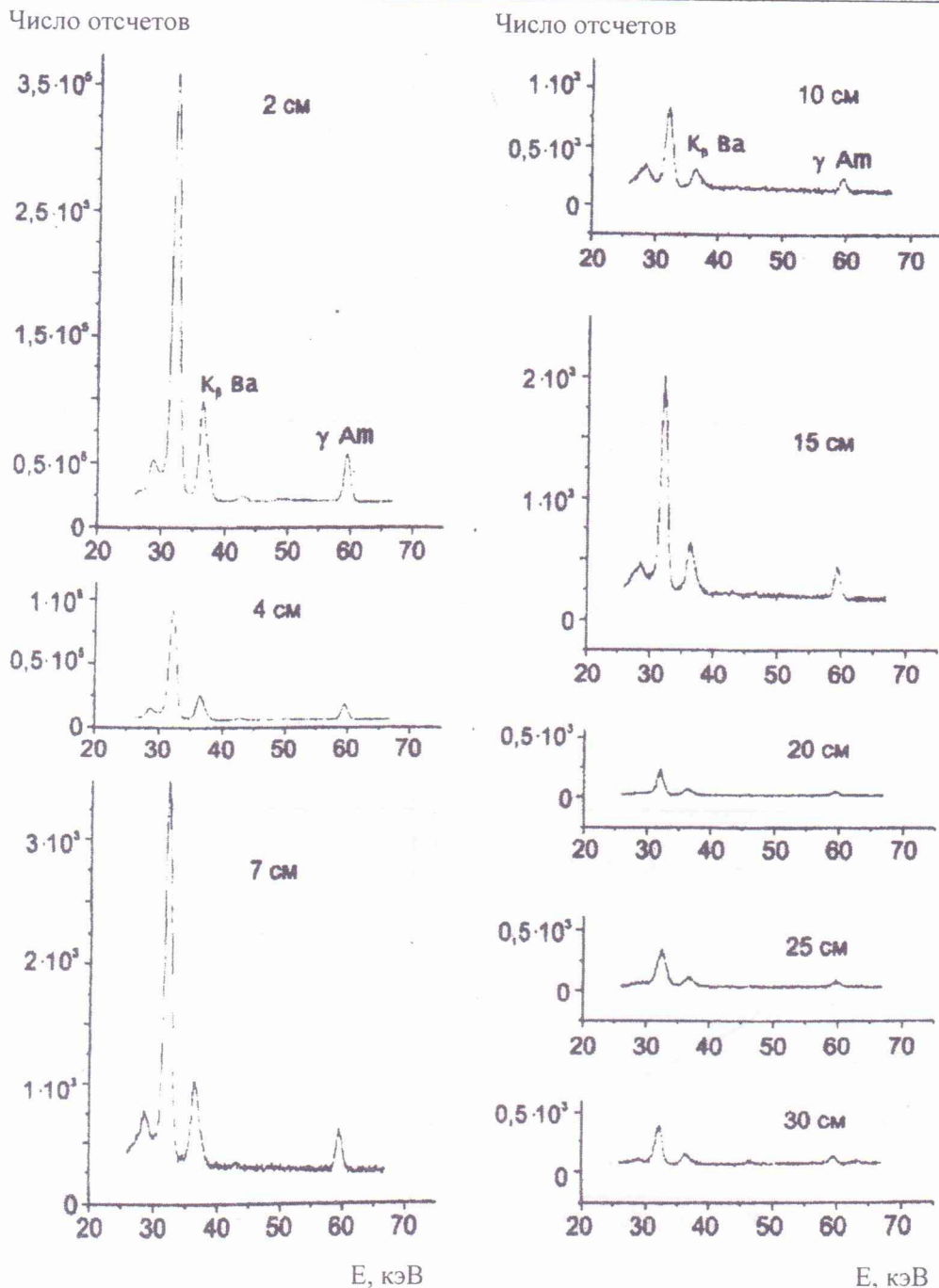


Рис. 3. Фрагменты  $\gamma$ -спектров образцов, приготовленных из проб с различных глубин.

урана и нептуния, а также выходы  $\gamma$ -квантов с энергиями: 59 кэВ ( $^{241}\text{Am}$ ), 86 и 105 кэВ ( $^{155}\text{Eu}$ ),  $\gamma$ -линия 123 кэВ ( $^{154}\text{Eu}$ ) [3]. Близость по энергии исследуемых  $\gamma$ - и  $K_{\alpha}$ -линий (см. рис. 2 и 3) позволила нам существенно уменьшить методические погрешности измерений, рассчитывая относительное содержание исследуемых изотопов по одному и тому же спектру. Они не превышают 2 % при статистических погрешностях определения площади ППП менее 0,5 %.

### Результаты исследований

На рис. 4 и 5 приведены полученные нами данные о распределении радионуклидов чернобыльского происхождения в вертикальных почвенных разрезах территории «Рыжего леса», усредненные в пределах соответствующих площадок (номера площадок 1, 2 и 3 указаны при изотопах).

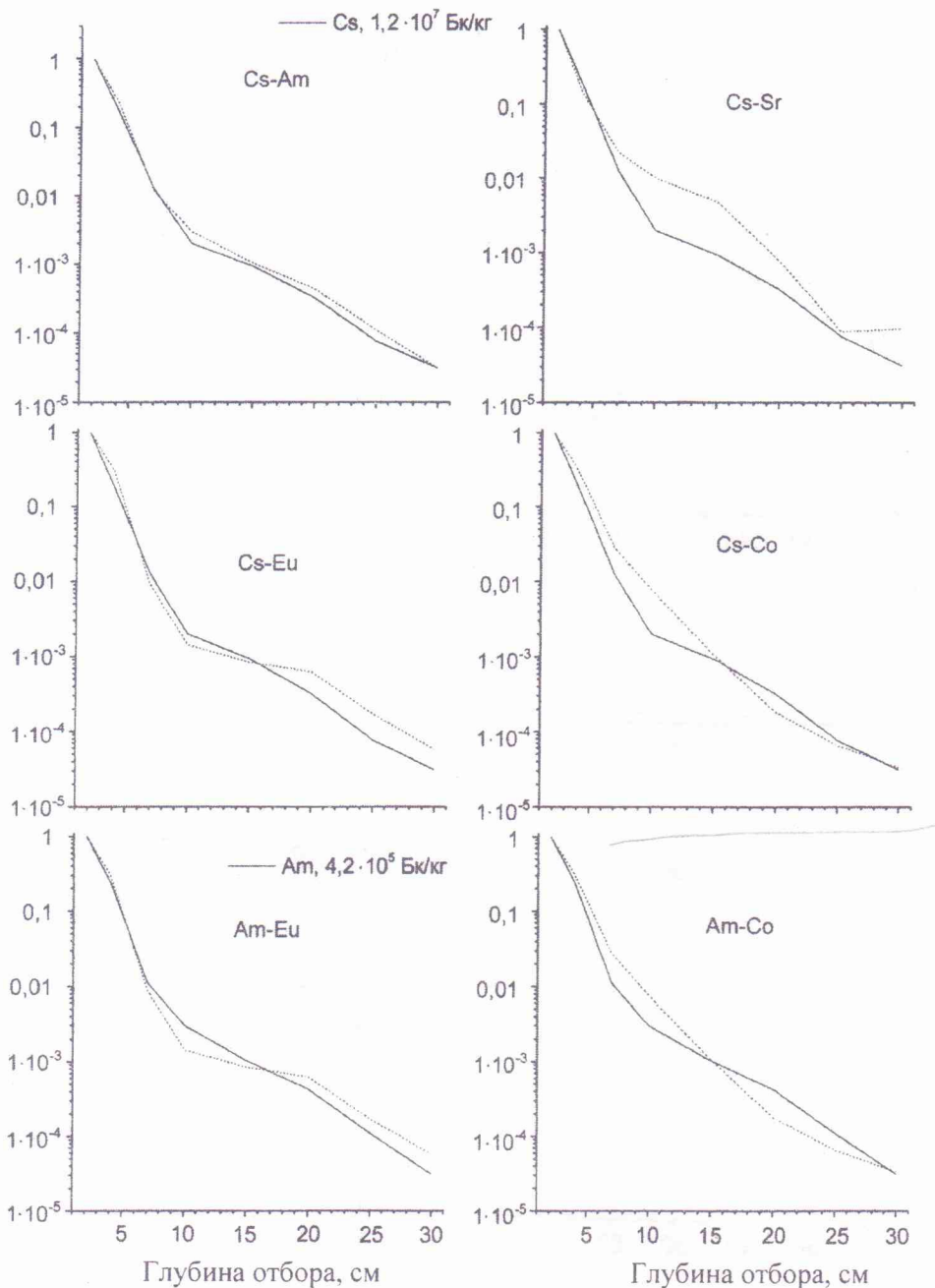


Рис. 4. Относительное распределение концентрации радионуклидов по глубине.

Эти данные, на наш взгляд, несколько неожиданные. Изменение интенсивности распространения  $^{241}\text{Am}$  практически подобно  $^{137}\text{Cs}$  (см. рис. 4). Методика наших измерений исключает значительные погрешности (см. выше), поэтому возможным объяснением может быть то, что на этом участке содержание в верхнем слое  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{241}\text{Am}$ , в основном, обусловлено разрушением «горячих» частиц. Поведение изотопов  $^{154,155}\text{Eu}$  и  $^{60}\text{Co}$  также слабо отличается от поведения  $^{137}\text{Cs}$ , что при равных стартовых условиях для всех этих изотопов подтверждает выход из «горячих» частиц всех этих радионуклидов. Неожиданность поведения разных по своим миграционным свойствам радионуклидов требует более подробного исследования геологии приповерхностных слоев, которые являются в настоящее время основными накопителями исследуемых радионуклидов.

На других участках наблюдается несколько иная картина (см. рис. 5).

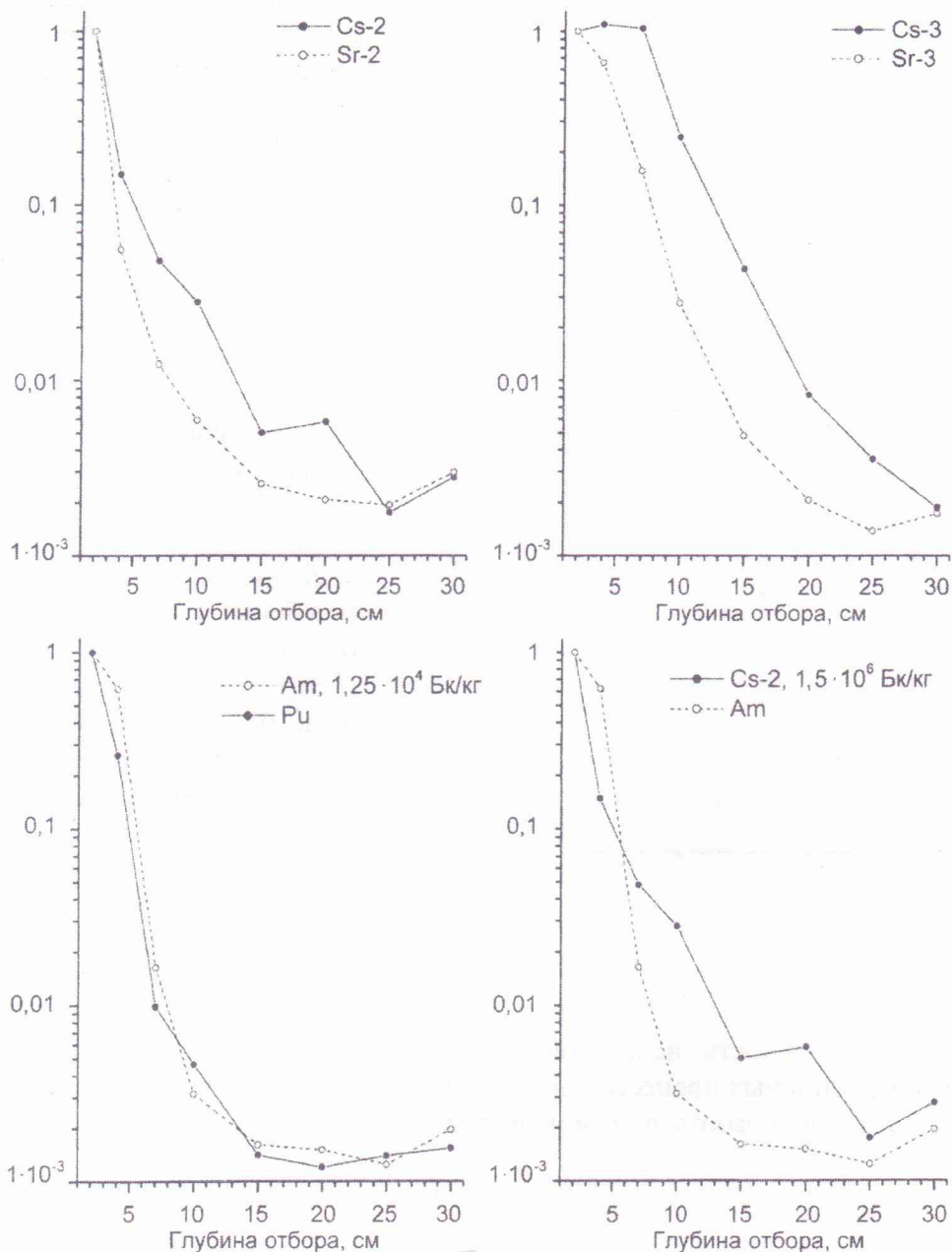


Рис. 5. Относительное распределение концентрации радионуклидов по глубине.

Во-первых, распределение по концентрации изотопов плутония и америция с изменением глубины одинаковое, что противоречит моделям и опытам, представленным в работах [9, 10]. Во-вторых, начиная с глубины 15 см, активность суммы изотопов  $^{238+239+240}\text{Pu}$ , а также нуклида  $^{241}\text{Am}$  слабо меняется с глубиной. Одной из причин этого может быть влияние паводковых вод. Следует отметить опережающее распространение здесь в глубину  $^{137}\text{Cs}$  по сравнению со  $^{90}\text{Sr}$ , что хорошо согласуется с данными других авторов [4] и, возможно, объясняется тем, что в данной местности отсутствуют геохимические барьеры для  $^{137}\text{Cs}$ .

Необходимо отметить тот факт, что уран, находящийся в верхнем слое, практически не мигрировал. Наличие урана надежно установлено по  $K_{\alpha}$ -излучению урана (рис. 6). Характеристическое  $K_{\alpha}$ -излучение урана могло появиться только из-за вторичной ионизации атомов урана электронами из распада изотопов ( $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$ ) и ( $^{137}\text{Cs} \rightarrow ^{137\text{m}}\text{Ba}$ ) и плюс  $\gamma$ -квантами из распада  $^{137\text{m}}\text{Ba}$ . Нами наблюдался значительный выход  $K_{\alpha}$ -урана в верхнем слое и практически его отсутствие уже во втором слое ( $\leq 1\%$ ) относительно активности

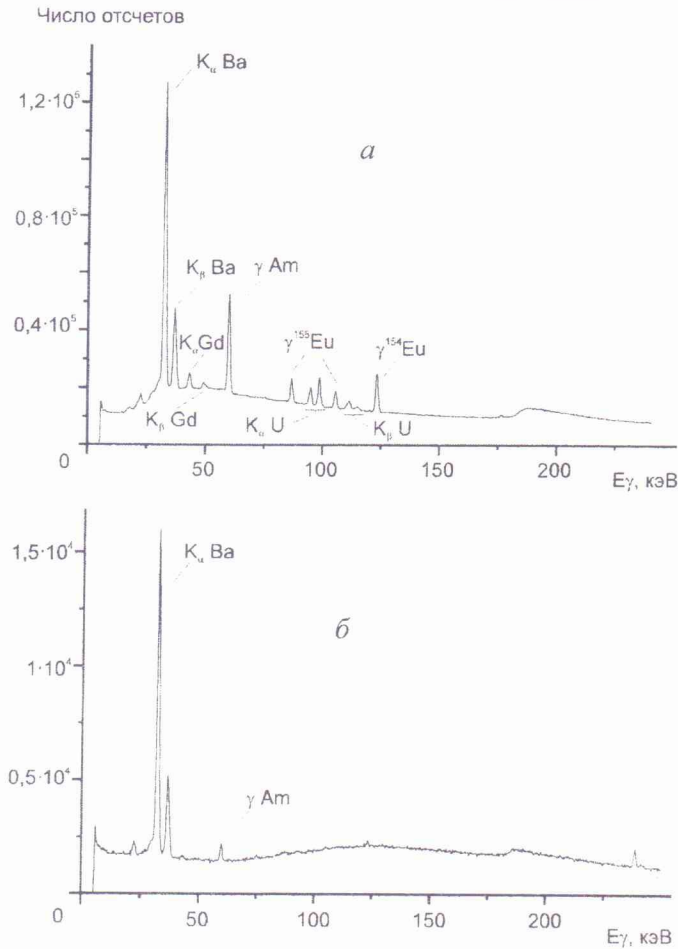


Рис. 6. Фрагменты низкоэнергетической части спектров: а – первый слой, б – второй слой.

верхнего слоя, (см. рис. 6), что подтверждает присутствие урана в виде нерастворимой фракции только в верхнем слое. Очевидно, что при разрушении этой урановой матрицы гомогенно распределенные в ней изотопы имеют аналогичные условия «стартового» процесса миграции относительно самого урана. И поскольку химическая форма содержания этих радионуклидов не может повлиять на интенсивность выхода их характеристического излучения, а только непосредственное содержание в образце данного химического элемента, и учитывая высокую удельную активность второго слоя (глубины от 2 до 4 см) по  $^{137}\text{Cs}$  (соответственно и  $^{137\text{m}}\text{Ba}$ ) плюс ( $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$ ) из оценки [3], можно было бы ожидать наличие хотя бы 10 %  $\text{K}_x$ -урана относительно первого слоя. При этом активности  $^{90}\text{Sr}$  и  $^{137}\text{Cs}$  в этих слоях были почти одинаковы (см. рис. 4 и 5). Однако, как видно из рис. 6, во втором слое нет даже следов наиболее интенсивных рентгеновских линий урана. Из всего вышеизложенного можно сде-

лать вывод о невозможности использования данных геохимических свойств урана при исследовании миграционных процессов других актиноидов, и, очевидно, есть необходимость продолжения дальнейшей работы в этом направлении.

### Выводы

Таким образом, в данной работе наблюдается корреляция между вертикальной миграцией  $^{137}\text{Cs}$  и изотопами плутония, а также америция в почвах ПВЗРО «Рыжий лес». Кроме того, отмечено, что несмотря на оптимистичные прогнозы по поводу плохой растворимости «горячих» частиц и их отрицательного влияния только на поверхностный слой почвы в данной работе зафиксировано интенсивное распространение продуктов деструкции и растворения этих частиц на глубины порядка 20 см.

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Askband S., Melin J., Sandalls J., et al. Mobility of radionuclides in undisturbed and cultivated soils in Ukraine, Belarus and Russia six years after the Chernobyl fallout // J. Environ. Radioactivity. - 1996. - Vol. 31, No. 3. - P. 287 - 312.
2. Bondarkov M.D., Maximenko A.M., Zheltonozhsky V.A. Non radiochemical technique for  $^{90}\text{Sr}$  measurement: Proc. of the International Congress "Ecorad 2001", 3 - 7 Sept. 2001, Aix-en-Provence (France), Vol. 2. - Radioprotection - Colloques, Vol. 37, C1. - P. 927 - 931.
3. Bondarkov M.D., Zheltonozhsky V.A., Maximenko A.M., et al. Plutonium isotopes content in Chornobyl samples based on Uranium characteristic  $L_x$ -radiation // Proc. of the International conference on radioactivity in the environment. (1 - 5 Sept. 2002) in Monaco. CD collections of the poster reports.

4. *Водообмен* в гидрогеологических структурах и Чернобыльская катастрофа / Под общ. ред. В.М. Шестопалова, ч. 1. - Киев, 2001. - 393 с.
5. *Ivanov Yu., Kashparov V.A., Khomutin Yu.V., Levchuk S.E.* Vertical transportation of Chornobyl radionuclide fall-out in soils // *Radiochemistry*. - 1996. - Vol. 38, No. 3. - P. 278 - 284.
6. *Kashparov V.A., Lundin S.M., Zvarych S.I.* Nuclear fallout and territory contamination of radionuclide consisting of fuel particles // *Bulletin of ecological state of ChZO*. - Dec. 2002. - No. 2 (20). - P. 22 - 32.
7. *Исследование, анализ и расчеты миграции радионуклидов в гидрогеологической среде промплощадки объекта «Укрытие» и прилегающей территории: Отчет НИР. Тема НИКИМТ 5-332129.* - Обнинск, 1994.
8. *Table of radioactive isotopes* / Ed. by V. S. Shirley. - New York, 1986.
9. *Трансурановые элементы в окружающей среде* / Под ред. У.С. Хэнсона. - М.: Энергоатомиздат, 1985.
10. *Медфодьева М.П., Крот Н.Н.* Соединения трансуранических элементов. - М.: Наука, 1987.

### ДОСЛІДЖЕННЯ ВЕРТИКАЛЬНОЇ МІГРАЦІЇ ШТУЧНИХ РАДІОНУКЛІДІВ ЧОРНОБИЛЬСЬКОГО ПОХОДЖЕННЯ В ГРУНТАХ ПОЛІССЯ

**М. Д. Бондарьков, М. В. Желтоножська, А. І. Липська,  
Л. В. Садовніков, В. В. Токаревський**

Проведено дослідження міграції радіонуклідів чорнобильського походження у вертикальних ґрунтових розрізах майданчика захоронення «Рудого лісу» в 5-кілометровій зоні ЧАЕС. Проби в кількості 1122 шт. відбиралися протягом 2000 - 2001 рр. Після відповідної обробки досліджувалось їх рентгенівське,  $\gamma$ - та  $\beta$ -випромінювання. Ідентифіковано ізотопи  $^{134,137}\text{Cs}$ ,  $^{154,155}\text{Eu}$ ,  $^{241}\text{Am}$  та  $^{238+239+240}\text{Pu}$  в урановій матриці. За дослідженням  $\beta$ -спектрів «товстих» проб ідентифіковані ( $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$ ) у рівновазі. Ізотопи  $^{238+239+240}\text{Pu}$  визначалися за методом  $L_x$ -спектрометрії урану та нептунію. Простежено міграцію ізотопів  $^{134,137}\text{Cs}$ ,  $^{154,155}\text{Eu}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  та  $^{241}\text{Am}$  до заглиблення на 30 см, а ізотопів  $^{238+239+240}\text{Pu}$  до  $-10 \div 15$  см. Отримані дані аналізуються.

### RESEARCH OF THE VERTICAL SOIL PROFILES MIGRATION OF THE CHORNOBYL ORIGIN MAN-MADE RADIONUCLEIDES IN POLESIA

**M. D. Bondarkov, M. V. Zheltonozhskaya, A. I. Lipskaya,  
L. V. Sadovnikov, V. V. Tokarevsky**

The research of migration of Chornobyl origin radionuclides was carried out in vertical soil profiles of the «Ryzyj les» waste disposal area within 5 km ChNPP zone. The 1122-soil samples were selected during 2000 - 2001 years. The  $\gamma$ -,  $\beta$ - and X-emanation of these samples were studied after corresponding preparation. The  $^{134,137}\text{Cs}$ ,  $^{154,155}\text{Eu}$ ,  $^{241}\text{Am}$  and  $^{238+239+240}\text{Pu}$  isotopes were identified. The ( $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$ ) isotopes were identified in equilibrium as a result of the research of the «non thin» layers samples  $\beta$ -spectra.. The  $^{238+239+240}\text{Pu}$  isotopes were determined by  $L_x$ -emanation spectroscopy of U and Np. The migration of  $^{134,137}\text{Cs}$ ,  $^{154,155}\text{Eu}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{241}\text{Am}$  isotopes was observed to the depth up down 30 cm, and the  $^{238+239+240}\text{Pu}$  migration was observed to the depth of  $10 \div 15$  cm. The obtained data is discussed.

Поступила в редакцію 13.11.03,  
после доработки – 15.01.04.