

ИССЛЕДОВАНИЕ ПОВЕДЕНИЯ РАДИОНУКЛИДОВ ЧЕРНОБЫЛЬСКОГО ПРОИСХОЖДЕНИЯ НА ТЕРРИТОРИИ ОПЫТНЫХ ПОЛИГОНОВ В БЛИЖНЕЙ ЗОНЕ ЧАЭС

© 2010 М. В. Желтоножская, Н. В. Кулич, А. И. Липская, П. Н. Музалев

Институт ядерных исследований НАН Украины, Киев

Проведены исследования вертикальной миграции радионуклидов чернобыльского происхождения в 5-километровой зоне ЧАЭС на территории исследовательских полигонов «Рыжий лес» и «Озеро Глубокое». Обнаружено присутствие ^{60}Co , ^{90}Sr , $^{134,137}\text{Cs}$, $^{154,155}\text{Eu}$, ^{241}Am и изотопов $^{238-240}\text{Pu}$ до глубины 30 см. Показано подобие поведения всех изученных изотопов в увлажненных автоморфных почвах. Получены периоды полураспада верхнего 5-сантиметрового слоя для указанных почв. Впервые показано, что в автоморфных почвах периоды полураспада верхнего 5-сантиметрового слоя от трансурановых элементов (^{241}Am и изотопов $^{238-240}\text{Pu}$) близки к периодам полураспада от ^{137}Cs , ^{90}Sr и составляют 30 лет.

Ключевые слова: радионуклиды, миграция, почвы, плутоний, америций.

Введение

Исследование поведения радионуклидов в окружающей среде является актуальной задачей как для понимания механизмов и путей миграции радионуклидов, так и для оценки степени радиоэкологической опасности для населения, проживающего на загрязненных радиоактивными выпадениями территориях. Особое значение приобретают исследования поведения трансурановых нуклидов в связи со следующими факторами:

1) трансурановые ядра, в основном, являются альфа-излучателями, т.е. представляют повышенную радиобиологическую опасность;

2) ограниченной информацией о поведении трансурановых нуклидов в природной среде в связи с их искусственным происхождением.

Эти исследования актуальны также и в зоне аварии на ЧАЭС, так как до настоящего времени нет достоверной информации о нахождении свыше трети всей массы топлива, находившегося в 4-м энергоблоке. На сегодняшний момент значительная его часть может находиться в выпадениях вблизи 4-го блока ЧАЭС.

В 90-е годы прошлого века проводилось изучение свойств топливосодержащих материалов и были получены следующие выводы [1]: при $\text{pH} = 6 - 7$ (обычное значение кислотности грунтовых вод) практически 100 % плутония будет находиться в миграционно-неактивной нейтральной форме $\text{Pu}(\text{OH})_4^\circ$. Возможная концентрация плутония в ионной форме Pu^{4+} при $\text{pH} = 6$ может составлять не более $3,7 \cdot 10^{-20}$ моль/л грунтовых вод или $5,5 \cdot 10^{-19}$ Ки/л. Те же исследования для ^{241}Am показывали, что значительное его количество (от 10 до 60 %) будет находиться в легкоподвижной форме Am^{3+} , при этом его возможная концентрация может доходить до 0,1 г/л

или 3 Ки/л [1]. На основании этих исследований был сделан вывод о том, что способность плутония к гидролизу и образованию гидроокиси снимает вопрос о возможности попадания его растворенных форм в блочные воды.

Однако уже в 1990 - 1994 гг. в грунтовых водах на территории, где в результате радиоактивных выпадений в 1986 г. погиб сосновый лес, так называемый «Рыжий лес», были обнаружены изотопы плутония в количестве $(1 - 10) \cdot 10^{-10}$ Ки/л [2].

Кроме того, в настоящее время в 4-м энергоблоке ЧАЭС наблюдается интенсивное разрушение лавовых топливосодержащих материалов. Благодаря явлению спонтанного пылеобразования в условиях объекта «Укрытие», образуется радиоактивная пыль размерами 60 - 300 нм с активностью, эквивалентной активности нескольких десятков килограммов облученного ядерного топлива (ОЯТ). Эта пыль содержит плутоний и америций в тех же пропорциях, что и в ОЯТ [3]. В связи с высокой ингаляционной эффективностью этих аэрозолей и их способностью распространяться на большие расстояния, все это представляет серьезную радиоэкологическую опасность для окружающей среды.

С учетом всех вышеприведенных факторов нами проводятся комплексные исследования поведения радионуклидов чернобыльского происхождения в окружающей среде, причем особое внимание было уделено поведению изотопов $^{238-240}\text{Pu}$ и ^{241}Am .

При изучении миграции трансурановых элементов в ближней зоне ЧАЭС следует отметить, что по сочетанию ландшафтных факторов стока, эта зона относится к территориям с абсолютным преобладанием инфильтрации над поверхностным стоком. Здесь широко развиты различные сочетания механических, сорбционных и глеевых барьеров. Поэтому прогнозы по растворе-

нию и миграции радиоактивных выпадений были достаточно оптимистичными.

Для исследований были выбраны полигоны на наиболее загрязненных участка 30-километровой зоны ЧАЭС вблизи оз. Глубокое и на территории «Рыжего леса».

Пространственное распределение радиоактивных выпадений на территории экспериментальных участков «Рыжий лес» и «Озеро Глубокое» крайне неоднородно. Средние значения плотности загрязнения участков территории полигона варьируют в пределах: ^{90}Sr – 40 - 80 МБк · м⁻², ^{137}Cs – 70 - 170 МБк · м⁻². Направление следа радиоактивных выпадений наблюдается с северо-востока на юго-запад через выбранные полигоны.

Методы исследований и результаты

В работе представлены результаты исследований вертикальной миграции изотопов чернобыльского происхождения в почвах исследовательских полигонов.

Нами были отобраны пробы в серии разрезов почв ближней 5-километровой зоны до глубины 30 см на территории исследовательских полигонов «Рыжий лес» и «Озеро Глубокое» в 30-километровой зоне ЧАЭС.

Пробы почвы отбирались по глубине слоями по 2 см (2 слоя), по 3 см (2 слоя) и по 5 см (4 слоя). Таким образом, всего было отобрано 130 почвенных разрезов. В отобранных пробах грунта спектрометрическим методом были определены активности радионуклидов ^{60}Co , ^{90}Sr , ^{137}Cs , $^{154,155}\text{Eu}$, ^{241}Am и суммарная активность изотопов $^{238-240}\text{Pu}$.

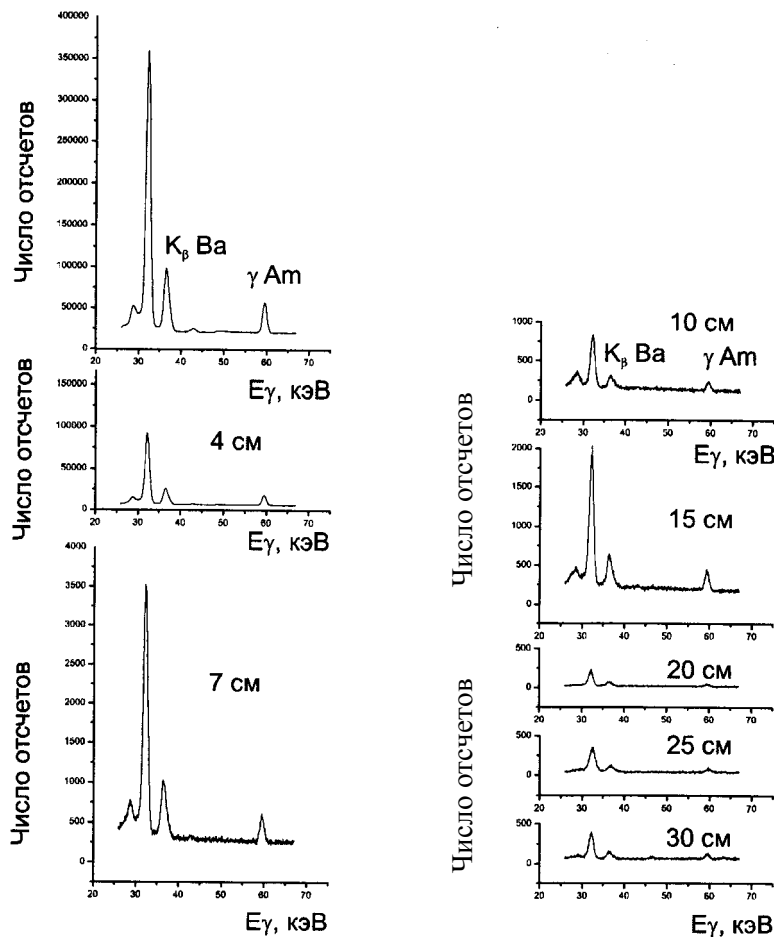


Рис. 1. Фрагменты гамма-спектров проб почвы, отобранных на различных глубинах.

Гамма-спектры радионуклидов изучали с использованием антикомптоновского спектрометра с Ge-детектором, имеющим входное бериллиевое окно и энергетическое разрешение 1,9 кэВ на гамма-линиях ^{60}Co и 350 эВ на гамма-линии 59 кэВ ^{241}Am . Эффективность спектрометра составляет 30 % по сравнению с NaI(Tl)-детектором размерами 3'' × 3'. Подавление комптонов-

ского фона в низкоэнергетической области было не меньше чем в 8 раз. Это позволило нам надежно идентифицировать активность ^{241}Am даже в самых глубоких слоях (рис. 1) Активность изотопов $^{238-240}\text{Pu}$ определялась по разработанной нами нерадиохимической методике [4]. Для этого исследовались L_x-спектры урана и нептуния, образующиеся при альфа-распаде изотопов

$^{238-240}\text{Pu}$ и ^{241}Am . Для определения суммарной альфа-активности изотопов плутония чернобыльского происхождения был определен выход L_α и L_β -групп урана, образующихся за счет α -распада изотопов плутония, равный $I(L_\beta) = 5,2 \pm 0,2$, $I(L_\alpha) = 3,9 \pm 0,2$.

Для примера на рис. 2 приведен фрагмент такого спектра образца почвы из «Рыжего леса», измеренного на Ge-спектрометре с детектором с разрешением 300 эВ на линии 17 кэВ для этих измерений.

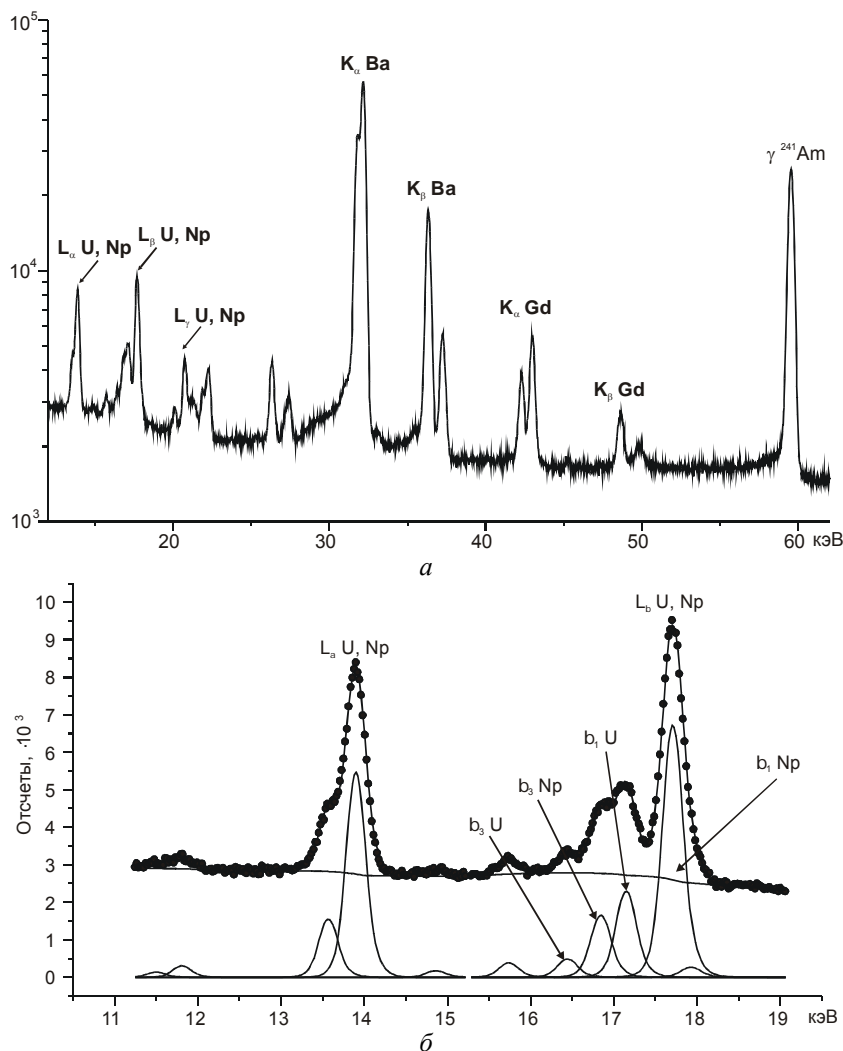


Рис. 2. Фрагмент спектра образца почвы из «Рыжего леса», измеренного детектором из сверхчистого германия объемом 1 см³: а – фрагмент спектра; б – разложение на компоненты фрагмента спектра.

Из соотношения $L_x\text{U}$ и $L_x\text{Np}$ и с учетом соотношения $L_x\text{Np}$ и $\gamma_{59,4}$ кэВ определялась альфа-активность изотопов плутония.

Активность ^{90}Sr определялась также с помощью нерадиохимической методики [5]. Для этого измерялись спектры электронов на NaI(Tl)-детекторах, толщиной 1 мм с тонким входным окном и, используя калибровочные источники ^{137}Cs и ^{90}Sr , выделяли активность ^{90}Sr .

Из полученных значений активности радионуклидов были рассчитаны изотопные отношения для 130 разрезов. Анализ рассчитанных значений изотопных отношений $^{90}\text{Sr}/^{154}\text{Eu}$, $^{239,240}\text{Pu}/^{154}\text{Eu}$, $^{241}\text{Am}/^{154}\text{Eu}$, $^{239,240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$, $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$ и $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ и

их сравнение со значениями, полученными для выпадений топливной компоненты выброса в ближней части зоны отчуждения ЧАЭС [6], показали, что различные участки территории полигона характеризуются загрязнением либо топливной, либо суперпозицией топливной и конденсационной компонент выпадений. Также отмечена определенная корреляция между активностями радионуклидов. Более того, рассмотрена корреляция между результатами измерения удельной активности во всех слоях и было установлено устойчивое сходство для всех радионуклидов (рис. 3) и табл. 1, в которой приведены коэффициенты корреляции.

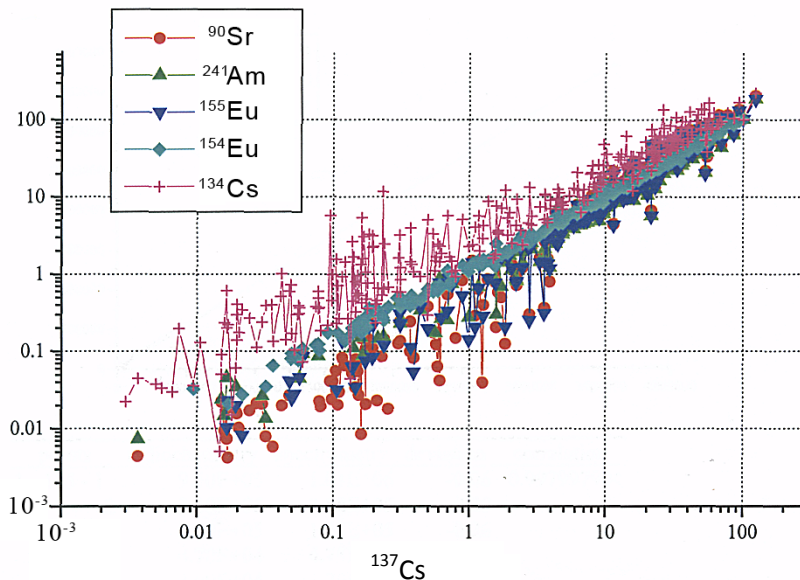


Рис. 3. Результаты корреляции активностей ^{137}Cs и изученных радионуклидов ^{90}Sr , ^{241}Am , $^{154,155}\text{Eu}$, ^{134}Cs .

Таблица 1. Коэффициенты корреляции между результатами измерения удельной активности радионуклидов

Радионуклид	^{137}Cs	^{241}Am	^{155}Eu	^{154}Eu	^{134}Cs	^{90}Sr
^{137}Cs						
^{241}Am	1,09399	1				
^{155}Eu	0,9393	0,9978	1			
^{154}Eu	0,9431	0,9981	0,9979	1		
^{134}Cs	0,9944	0,9303	0,9300	0,9329	1	
^{90}Sr	0,9238	0,9145	0,9022	0,9110	0,8999	1

Анализ полученных данных

На рис. 4 и 5 приведены данные о распределении радионуклидов в некоторых почвенных разрезах опытного полигона «Рыжий лес».

Из проделанных исследований можно сделать вывод, что наблюдается корреляция между вертикальной миграцией ^{137}Cs и радионуклидов плутония, америция в почвах «Рыжего леса». Можно отметить, что, несмотря на оптимистичные прогнозы по поводу плохой растворимости «топливных частиц» и их отрицательного влияния только на поверхностный слой почвы, в наших исследованиях зафиксировано интенсивное распространение продуктов растворения этих частиц на глубины около 20 см.

В исследованных вблизи оз. Глубокое разрезах мы отмечаем, что изменение интенсивности распространения ^{241}Am также наблюдается до глубины 30 см. В этих же измерениях надежно идентифицированы изотопы плутония во всех разрезах до этой глубины. На рис. 6 приведены данные о распределении радионуклидов в некоторых почвенных разрезах опытного полигона «Озеро Глубокое». Данные по многим разрезам в

пределах погрешности измерений показывают полное подобие поведения плутония и америция (см. рис. 6, в). Наблюдаются и некоторые различия в поведении радионуклидов в почвах опытных полигонов «Озеро Глубокое» и «Рыжий лес». Выявлены участки территории полигона «Озеро Глубокое», где отмечена существенно более высокая миграционная подвижность ^{90}Sr и ^{137}Cs по сравнению с ^{154}Eu и ^{241}Am (см. рис. 6, а). В то же время имеются разрезы, где поведение всех изотопов, как и в «Рыжем лесу», подобно. В ряде разрезов, по своей структуре и составу близких к почвам «Рыжего леса», отмечается полное подобие в поведении ^{154}Eu , ^{241}Am , $^{238-240}\text{Pu}$ и, в то же время, наблюдается значительное более высокая миграционная подвижность ^{90}Sr и ^{137}Cs (см. рис. 6, а).

В процессе работы был выполнен анализ изменения изотопных отношений радионуклидов по глубине почвенных профилей на территории опытных полигонов. В табл. 2 приведены максимальные и минимальные значения удельной активности некоторых радионуклидов в изученных образцах почв.

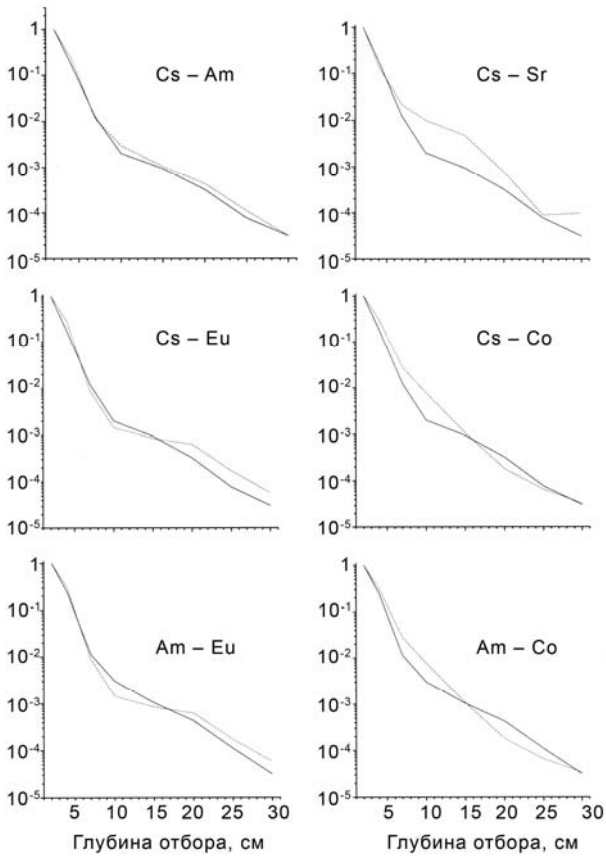


Рис. 4. Относительное вертикальное распределение концентрации радионуклидов в изученных разрезах почвы полигона «Рыжий лес».

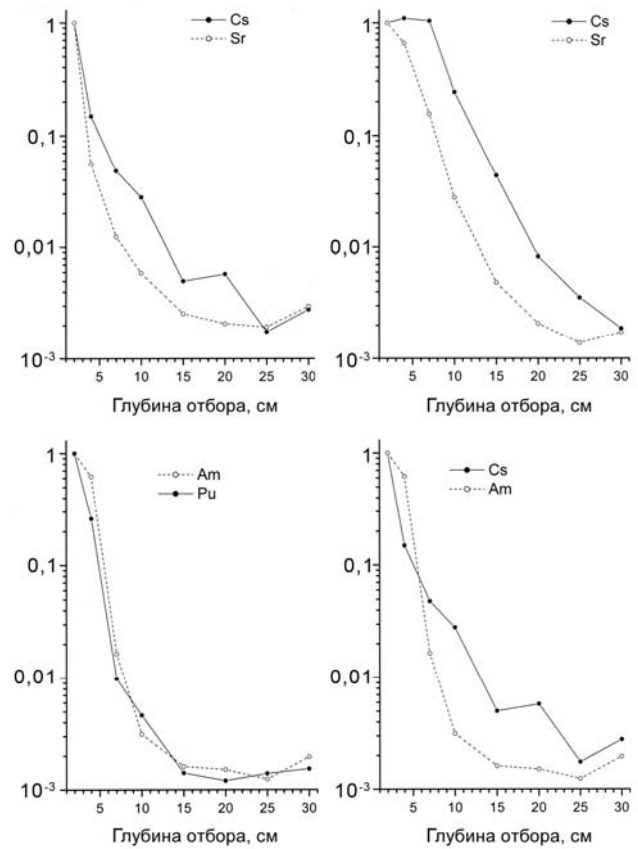


Рис. 5. Относительное вертикальное распределение концентрации радионуклидов в изученных разрезах почвы полигона «Озеро Глубокое».

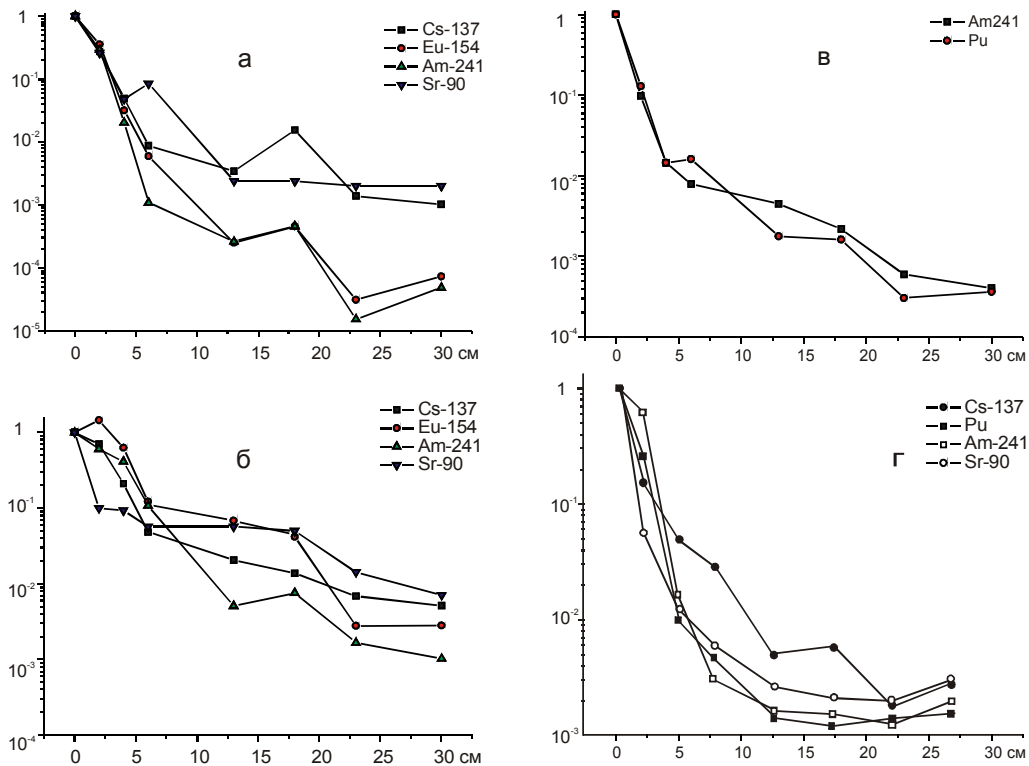


Рис. 6. Относительное распределение концентрации радионуклидов до глубины 30 см:
а - в - оз. Глубокое; г - «Рыжий лес».

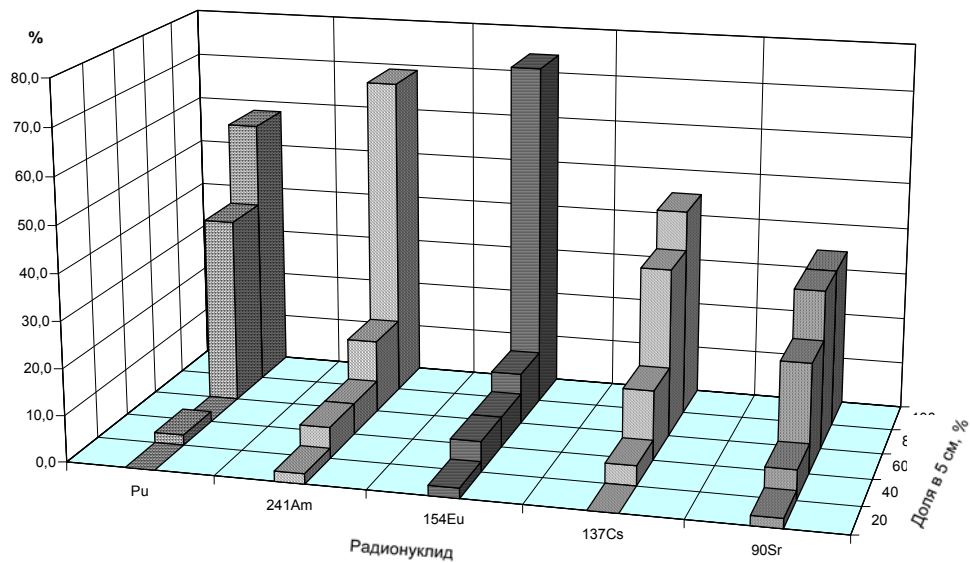
Таблица 2. Удельная активность некоторых изученных радионуклидов Бк/г

Полигон	¹³⁷ Cs		²⁴¹ Am		¹⁵⁴ Eu	
	min	max	min	max	min	max
«Рыжий лес»	6	30500	0,0012	1070	5 · 10 ⁻⁴	326
«Озеро Глубокое»	9	54000	0,10	3660	0,01	929

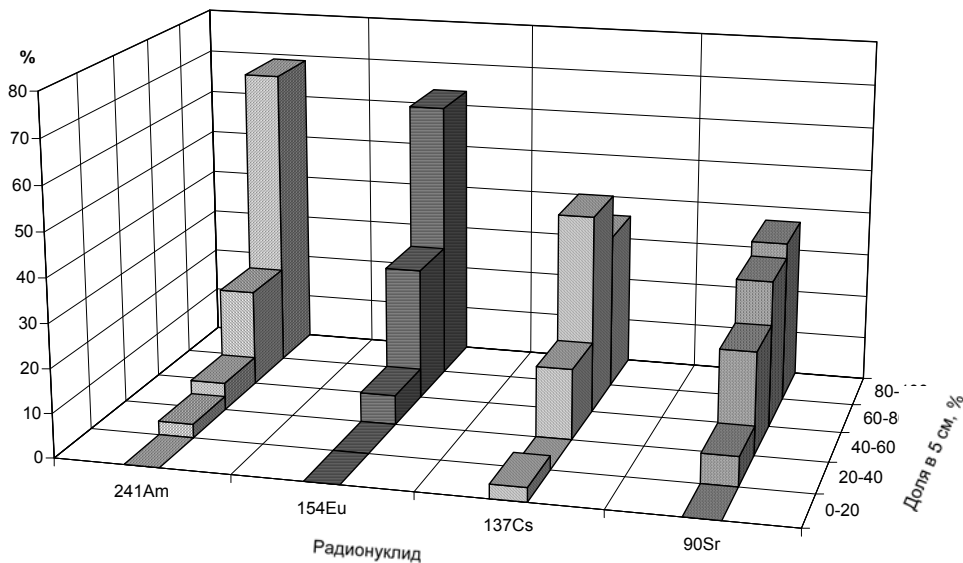
Полученные результаты показывают, что значения изотопных отношений ¹³⁷Cs/¹⁵⁴Eu и ⁹⁰Sr/¹⁵⁴Eu в почвах увеличиваются с глубиной почвенного профиля, т. е. в целом радионуклиды ⁹⁰Sr и ¹³⁷Cs мигрируют быстрее, чем ¹⁵⁴Eu. Вместе с тем значения изотопного отношения ²⁴¹Am/¹⁵⁴Eu в почвах очень мало изменяются с глубиной почвенного профиля, т. е. ²⁴¹Am мигрирует медленнее в сравнении с ⁹⁰Sr и ¹³⁷Cs. Снижение значений изотопного отношения

¹³⁷Cs/⁹⁰Sr в почвах с увеличением глубины почвенного профиля показывает большую скорость вертикального переноса в почвенном профиле ⁹⁰Sr по сравнению с ¹³⁷Cs.

Оценки значений изотопных отношений каждого радионуклида и ¹⁵⁴Eu в различных горизонтах почвенного профиля свидетельствуют о том, что максимальной миграционной способностью характеризуется ⁹⁰Sr, выщелоченный из матрицы топливных частиц.



а



б

Рис. 7. Частотные распределения доли изученных радионуклидов от суммарного содержания каждого радионуклида в профиле, содержащейся в 5-сантиметровом горизонте почвы: а – на полигоне «Рыжий лес» (N = 46); б – на полигоне «Озеро Глубокое» (N = 30).

Полученные данные об изотопных отношениях $^{137}\text{Cs}/^{241}\text{Am}$ как в разрезах из «Рыжего леса», так и из береговой зоны оз. Глубокое показывают сходное поведение этих радионуклидов как на поверхности, так и по вертикальному профилю почвы. Средние значения изотопных отношений практически совпадают: для «Рыжего леса» $^{137}\text{Cs}/^{241}\text{Am} = 0,013 \pm 0,003$, для «озера Глубокое» $^{137}\text{Cs}/^{241}\text{Am} = 0,019 \pm 0,010$. На основании этих данных можно предположить, что ^{241}Am в значительной степени выщелочен из матрицы топливных частиц, и мы можем по данным об изотопных отношениях $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ выделить участки с доминирующим вкладом топливной компоненты в полную активность и для этих участков с 50 %-ной вероятностью оценить вклад ^{241}Am . Анализ оценок изотопных отношений показывает, что ^{241}Am , изотопы плутония и ^{154}Eu мигрируют в целом одинаково, хотя для изотопов плутония картина более противоречивая.

В целом результаты исследований показали, что во всех разрезах наблюдаются активные процессы переноса радионуклидов (см. рис. 3 - 6). Необходимо отметить, что во всех изученных разрезах наблюдается интенсивное перемещение как ^{241}Am , так и изотопов плутония. Причем в ряде разрезов поведение ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{241}Am и изотопов плутония практически одинаковое (см. рис. 6). Это полностью противоречит большинству данных о поведении плутония. Интересным фактом является и то, что в ряде разрезов в верхнем слое в 1999 г. наблюдалось характеристическое K_x -излучение урана, связанное с внешним

облучением в этих пробах, тогда как уже во втором слое K_x -излучение урана мы не наблюдали ни в одном разрезе.

Полученные данные указывают на то, что в настоящее время 90 % активности находится на глубине 0 - 10 см. На рис. 7 приведены частотные распределения доли радионуклидов от суммарного содержания каждого радионуклида в разрезах изучавшихся полигонов, содержащиеся в 5-сантиметровом слое.

Можно также отметить, что около 50 % активности ^{241}Am и $^{238-240}\text{Pu}$ находится на глубине 0 - 10 см, т.е. в области активного биологического взаимодействия. Это указывает на актуальность таких исследований не только в зоне отчуждения ЧАЭС, но и в регионах, где обнаружены значительные активности трансурановых изотопов или где ранее наблюдались значительные активности ^{144}Ce , которые коррелируют с активностью трансурановых нуклидов.

Полученные данные позволили нам оценить с помощью модифицированной конвективно-диффузионной модели переноса [7] периоды полураспада верхнего 5-сантиметрового слоя почв изученных полигонов. В табл. 3 приведены периоды полураспада корнеобитаемых горизонтов почв. Как видно, для увлажненных почв наблюдаются периоды полураспада $T_{1/2} \sim 30$ лет для трансурановых нуклидов, т.е. уже около половины активности трансурановых нуклидов переместилось в корнеобитаемые горизонты почвы и может перемещаться по цепочке «почва - растение - организмы».

Таблица 3. Экологические периоды полураспада корнеобитаемых горизонтов почв, лет

Участки	^{137}Cs	^{90}Sr	^{154}Eu	^{241}Am	Pu
Заболоченные и сильно увлажненные участки полигона «Рыжий Лес»	28 ± 14	21 ± 15	26 ± 11	25 ± 10	100 ± 45
Увлажненные участки полигона «Рыжий Лес», представленные автоморфными почвами	58 ± 31	46 ± 34	42 ± 25	42 ± 22	110 ± 60
Участки ближней полосы от берега оз. Глубокое, представленные увлажненными супесями (1 - 5 м)	25 ± 6	83 ± 104	32 ± 20	56 ± 52	68 ± 30
Участки средней полосы от берега оз. Глубокое, представленные супесями, обогащенные органическим веществом (3 - 9 м)	65 ± 19	82 ± 96	120 ± 120	72 ± 58	78 ± 40

Все это указывает на значительную радиоэкологическую опасность последствий Чернобыльской аварии и в настоящее время.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Пазухин Э.М. Лавообразные топливосодержащие массы 4-го блока Чернобыльской АЭС: физико-химические свойства, сценарий образования, влияние на окружающую среду: Автореф. дис. ... д-ра техн. наук. - Чернобыль, 1999.
2. НИКИМТ. Отчет о НИР «Исследование, анализ и расчеты миграции радионуклидов в гидрогеологической среде промплощадки объекта «Укрытие» и прилегающей территории», тема 5-332129. - Обнинск, 1994.
3. Барьяхтар В.Г., Гончар В.В., Жидков А.В., Ключников А.А. О пылегенерирующей способности аварийного облученного топлива и лавообразных топливосодержащих материалов объекта «Укрытие». - Чернобыль, 1997. - 20 с. - (Препр. / НАН Украины. МНТЦ «Укрытие»; 97-10).
4. Бондарьков М. Д., Желтоножская М.В., Максименко А.М., Садовников Л.В. Определение содержания изотопов плутония в чернобыльских образцах по характеристическому L_x -излучению урана // Проблемы безпеки атомних електростанцій і Чорнобіля. - 2005. - Вип. 2. - С. 108 - 112.
5. Бондарьков М.Д., Гацак С.П., Желтоножский В.А. и др. Метод измерения концентрации ^{90}Sr в биологических объектах и пробах грунта без радиохимии // Abstracts of the Int. Congress on the Radioecology-Ecotoxicology of Continental and Estuarine Environments (France, 3 - 7 September, 2001).
6. Каунарков В.О., Лундин 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.
7. Иванов Ю.А., Каунарков В.А. Поведение в почве радионуклидов, представленных топливной компонентой выпадений аварийного выброса ЧАЭС // Радиохимия. - 1992. - Т. 5. - С. 112 - 124.

**ДОСЛІДЖЕННЯ ПОВОДЖЕННЯ РАДІОНУКЛІДІВ ЧОРНОБІЛЬСЬКОГО ПОХОДЖЕННЯ
НА ТЕРИТОРІЇ ДОСЛІДНИХ ПОЛІГОНІВ У БЛИЖНІЙ ЗОНІ ЧАЕС**

М. В. Желтоножська, Н. В. Кулич, А. І. Липська, П. М. Музальов

Проведено дослідження вертикальної міграції радіонуклідів чорнобильського походження в 5-кілометровій зоні ЧАЕС на території дослідних полігонів “Рудий ліс” та “Озеро Глибоке”. Виявлено присутність ^{60}Co , ^{90}Sr , $^{134,137}\text{Cs}$, $^{154,155}\text{Eu}$, ^{241}Am та ізоотопів $^{238-240}\text{Pu}$ до глибини 30 см. Показано подібність поведінки всіх вивчених ізоотопів у зволжених автоморфних ґрунтах. Отримано періоди напівочищення верхнього 5-сантиметрового шару для вказаних ґрунтів. Уперше показано, що в автоморфних ґрунтах напівочищення верхнього 5-сантиметрового шару від трансуранових елементів (^{241}Am та ізоотопів $^{238-240}\text{Pu}$) близькі до періодів напівочищення від ^{137}Cs , ^{90}Sr і становлять 30 років.

Ключові слова: радіонукліди, міграція, ґрунти, плутоній, америцій.

**INVESTIGATION OF CHERNOBYL RADIONUCLIDES BEHAVIOR IN RESEARCHED GROUND
AT THE NEAREST ChNPP ZONE**

M. V. Zheltonozhska, N. V. Kulich, A. I. Lypska, P. M. Muzalev

Researches of Chernobyl radionuclides vertical migration were carried out inside the 5-km area of ChNPP in «Red forest» and «Lake Glubokoe» territories. Presence of ^{60}Co , ^{90}Sr , $^{134,137}\text{Cs}$, $^{154,155}\text{Eu}$, ^{241}Am and $^{238-240}\text{Pu}$ isotopes was determined to the 30 cm depth. Similarity of isotopes behavior was shown in moistened automorphed soils. Periods of semiclearing of upper 5-cm soil layer was obtained for the researched soils. The periods of semiclearing of upper 5-cm soil layer from transuraniums (^{241}Am and $^{238-240}\text{Pu}$ isotopes) are similar to the periods of semiclearing from ^{137}Cs , ^{90}Sr and are equal to 30 years.

Keywords: radionuclides, migration, soils, plutonium, americium.

Поступила в редакцію 17.06.10,
после доработки - 09.11.10.