



<http://dx.doi.org/10.15407/dopovidi2016.06.133>

УДК 574:539.1.04:621.039.586

**А. І. Липська, В. А. Желтоножський, В. І. Ніколаєв,
В. А. Шитюк, Н. В. Куліч, В. І. Чурюмов**

Інститут ядерних досліджень НАН України, Київ

E-mail: lypska@kinr.kiev.ua

Радіоекологічні дослідження на місцях паливних радіоактивних випадінь в Чорнобильській зоні відчуження

(Представлено академіком НАН України І. М. Вишневським)

Досліджено ізотопний склад радіоактивного забруднення території у Чорнобильській зоні відчуження та розподіл радіонуклідів по профілю ґрунту. Встановлено, що радіоактивність у ґрунті в основному зумовлена ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{241}Am та ізотопами Pu, що входять до складу паливної матриці. Вивчено ізотопний склад та визначено активність паливних частинок. Виявлено особливості міграції радіонуклідів на слідах паливних випадінь у віддалений післяаварійний період. Оцінено періоди екологічного напівочищення верхніх горизонтів ґрунту.

Ключові слова: радіонукліди, міграція, паливні частинки, радіоактивне забруднення, Чорнобильська зона відчуження.

Внаслідок аварійних викидів з 4-го блоку Чорнобильської АЕС у навколишнє середовище потрапило близько 90 МКі радіонуклідів у різних фізико-хімічних формах, що стало джерелом радіоактивного забруднення значних територій не тільки України [1]. Специфічною особливістю аварійних наслідків ЧАЕС є наявність у складі аварійних випадінь дрібнодисперсних паливних ("гарячих") частинок. Це пов'язано зі складними фізико-хімічними процесами в пошкоджені реакторі та погодними умовами, які обумовили характер розсіювання радіоактивних елементів, їх сполук та конгломератів у навколишнє середовище [1–3]. Незважаючи на роки, що минули після аварії на ЧАЕС, радіоекологічні дослідження на радіаційно забруднених територіях не втратили своєї актуальності й сьогодні. З часом під впливом геохімічних і метеорологічних факторів відбувається деструкція па-

ливних частинок, що призводить до появи мобільних форм радіонуклідів, які включаються в міграційні процеси. Дослідження особливостей біогеохімічної міграції та розподілу фізико-хімічних форм радіонуклідів у біогеоценозах є вкрай важливою та актуальною задачею, оскільки дає можливість кількісно та якісно оцінити міграційну здатність техногенних радіонуклідів аварійного викиду в компонентах наземних екосистем. Слід зазначити, що зона відчуження ЧАЕС являє собою унікальну територію для дослідження міграції радіонуклідів в умовах, де повна відсутність антропогенної діяльності на більшій частині її є однією з головних передумов вивчення природних процесів самовідновлення екосистеми після техногенного втручання.

Мета роботи полягала в дослідженні радіонуклідного складу радіоактивних випадінь аварійних викидів на ЧАЕС та міграції радіонуклідів у ґрунтах полігона Стечанка ЗВ ЧАЕС.

Матеріали та методи досліджень. Об'єктами дослідження були ґрунт та паливні частинки.

У місцях відбору проб вимірювали потужність експозиційної дози з використанням радіометра γ - β -випромінювання "Прип'ять". Для досліджень вибирали ділянки розміром приблизно 100×100 м на природних ландшафтах без антропогенного втручання. Ґрунт для досліджень відбирали методом конверта за допомогою розбірного пробовідбірника, з подальшим розділенням проби по шарах: 0–2 см, 2–4 см, 4–7 см, 7–10 см, 10–15 см, 15–20 см, 20–25 см, 25–30 см [4]. Після стандартної лабораторної підготовки зразків ґрунту проводили їх γ - та β -спектрометрію, визначали ізотопний склад.

Для спектрометричних вимірювань використовували:

антикомptonівський γ -спектрометр з Ge-детектором, що має вхідне берилієве вікно та енергетичну роздільну здатність 1,9 кеВ на γ -лініях ^{60}Co і 350 еВ на γ -лінії 59 кеВ ^{241}Am . Ефективність реєстрації спектрометра становила 15% ефективності $\text{NaJ(Tl)}(3' \times 3'')$ -детектора. Пригнічення комптонівського фону в низькоенергетичній області було не менше, ніж у 8 разів, що дає можливість надійно ідентифікувати γ -активність ^{241}Am і ^{137}Cs за K_x -випромінюванням ^{137}Ba ;

германієвий детектор JLN-10 180 $d \times h = 10 \times 7$ мм з берилієвим вікном 100 мкм, роздільна здатність 180 еВ на лінії K_x (^{55}Fe) $E_\gamma = 5,9$ кеВ для визначення активності ізотопів Pu;

β -спектрометр СЕБ-50 з пластиковим сцинтиляційним детектором завтовшки близько 1 мм і діаметром 76 мм.

Обробку спектрів проводили з використанням програм WINSPECRUM та "Beta fit" [5].

Авторадіографічний метод використовували для визначення просторового розподілу паливних частинок у верхніх шарах ґрунту. Авторадіографічні відбитки отримували контактною експозицією проби із радіографічною плівкою РПУ фірми ОНІКО протягом 72 год.

Результати досліджень. Полігон Стечанка знаходиться на відстані ~ 12 км від ЧАЕС, на південно-західному сліді аварійних радіоактивних випадінь. На полігоні переважають дерново-слабопідзолисті піщані ґрунти. Кислотність ґрунтів на реперних ділянках була $\text{pH} = 5,5 \div 6,0$.

У результаті дозиметричного обстеження території виявлено нерівномірність забруднення радіоактивними викидами. Для досліджень були вибрані ділянки з високою потужністю експозиційної дози (2–3 мР/год). Методами γ - і β -спектрометрії в пробах ґрунту виявлено наявність радіонуклідів, характерних для паливної компоненти викидів: ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{241}Am , ^{243}Am , ^{241}Cm , ^{54}Eu , ^{155}Eu та ізотопів Pu. Встановлено, що радіоактивність у ґрунті в основному зумовлена ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{241}Am та ізотопами Pu.

Щільність радіоактивного забруднення території ^{137}Cs 20–61 МБк/м², ^{90}Sr 5–10 МБк/м², а ^{241}Am та ізотопами Pu була практично однаковою і знаходилася в межах 0,5–1,0 МБк/м². В табл. 1 наведено співвідношення активності основних радіонуклідів верхнього шару (0–2 см).

Отримані дані вказують на те, що радіоактивне забруднення досліджуваної території сформовано як паливною, так і конденсаційною компонентою. Додатковим аргументом є результати визначення фізико-хімічних форм знаходження радіонуклідів за допомогою методу послідовної екстракції. Встановлено, що ^{137}Cs та ^{90}Sr у ґрунтах знаходиться в основному в необмінних та фіксованих формах (70–90%). Це обумовлено тим, що значна частина радіонуклідів у ґрунтах все ще зосереджена в структурі паливних частинок і тому слабо вилугується ґрунтовим розчином. Незначний відсоток радіонуклідів припадає на водорозчинні та обмінні форми [6].

Результати дослідження розподілу ^{137}Cs , ^{90}Sr та ^{241}Am по ґрунтовому профілю наведено в табл. 2.

Експериментальні дані свідчать, що основна активність радіонуклідів (80–90%) знаходиться у верхніх шарах ґрунту на глибині 0–7 см, на глибині 25–30 см зареєстровано менше 1% радіоактивності. Вертикальний розподіл активності радіонуклідів ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{241}Am по профілю близький до експоненційного: $A = A_0 \cdot e^{-\lambda x}$, де A_0 — активність верхнього шару 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.

Подібність вертикальної міграції ізотопів ^{137}Cs , ^{90}Sr та ^{241}Am в наших дослідженнях спостерігали до глибини 7–10 см (рис. 1). Збіг кривих вертикального розподілу радіонуклідів у верхніх шарах ґрунту свідчить про те, що міграція відбувається за рахунок переміщення паливних частинок, до складу яких входять зазначені радіонукліди. А далі міграція радіонуклідів проходить індивідуально, що залежить від різного ступеня їх вилугування з паливної матриці, а також наявності ізотопів з конденсаційних випадіння. Такі припущення підтверджуються даними авторадіографії.

Таблиця 1. Співвідношення активності радіонуклідів у верхньому шарі ґрунту на різних ділянках полігона

Точка відбору	Радіонуклідне співвідношення				
	$^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$	$^{137}\text{Cs}/^{241}\text{Am}$	$^{137}\text{Cs}/^{238-241}\text{Pu}$	$^{90}\text{Sr}/^{241}\text{Am}$	$^{90}\text{Sr}/^{238-241}\text{Pu}$
1	1,4	123,7	95,2	87,5	67,3
2	1,8	107,2	97,4	107	53,2
3	6,4	137,0	92,2	137	92,2

Таблиця 2. Розподіл радіонуклідів по профілю ґрунту, % загального вмісту

Шар ґрунту, см	^{137}Cs	^{90}Sr	^{241}Am
0–2	35,4 ± 2,1	42,4 ± 4,5	45,84 ± 2,7
2–4	32,1 ± 2,3	30,8 ± 3,4	27,6 ± 1,6
4–7	13,7 ± 1,0	11,9 ± 1,1	16,9 ± 1,1
7–10	6,9 ± 0,6	7,0 ± 1,0	6,5 ± 0,3
10–15	4,6 ± 0,3	3,8 ± 0,6	1,0 ± 0,1
15–20	3,5 ± 0,4	2,4 ± 0,4	0,9 ± 0,1
20–25	2,5 ± 0,3	0,9 ± 0,3	0,6 ± 0,1
25–30	1,1 ± 0,1	0,8 ± 0,3	0,6 ± 0,2

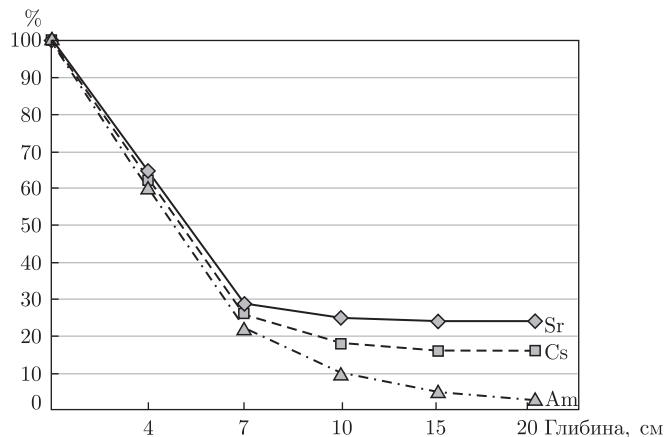


Рис. 1. Вертикальний розподіл радіонуклідів по глибині ґрунту

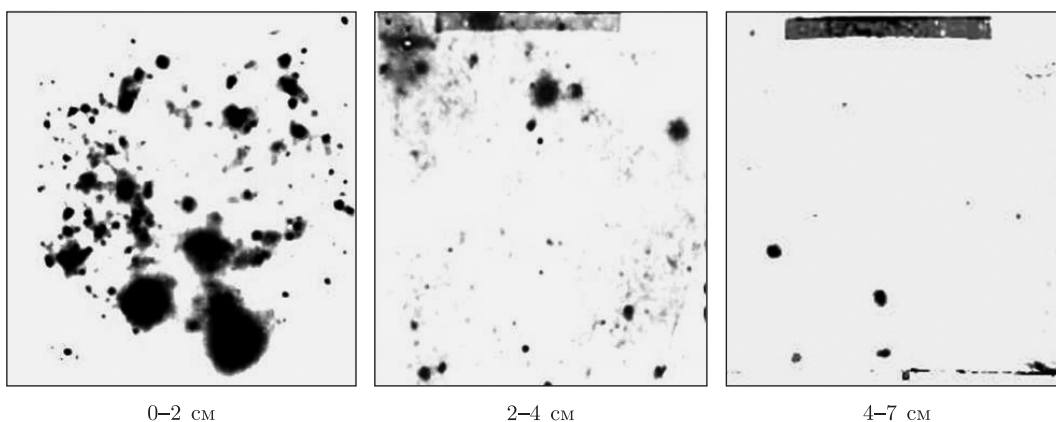


Рис. 2. Розподіл “гарячих” частинок по профілю ґрунту, час експозиції 72 год

Авторадіографічні дослідження проб ґрунту виявили наявність значної кількості паливних частинок, що не зазнали деструкції до цього часу. На рис. 2 наведено результати авторадіографічних досліджень верхніх шарів ґрунту (0–2 см, 2–4 см, 4–7 см). Як видно з рисунка, основна кількість “гарячих” частинок знаходиться в ґрунті до глибини 4 см, а в шарі 4–7 см спостерігаються поодинокі частинки. Отримані результати вказують на те, що відбувається поступова деструкція паливних частинок.

Аналіз впливу фізико-хімічних властивостей ґрунтів на видуговування паливних частинок показав, що швидкість деструкції цих частинок корелює з кислотністю водної витяжки pH_{H_2O} [6, 7]. Найбільша кількість паливних частинок збереглася в нейтральних ґрунтах ($pH_{H_2O} \geq 6$) [8], що і підтверджується нашими дослідженнями.

З проб ґрунту були виділені високоактивні паливні частинки (“гарячі” частинки (ГЧ)), активність частинок знаходилася в межах 100–4000 Бк. Спектрометричні дослідження виявили в них присутність у значній кількості ^{137}Cs , ^{90}Sr , ізоотопів U, Pu та ^{241}Am . Частинки істотно відрізнялися за розмірами, ізоотопним складом та співвідношенням ізоотопів. Як приклад на рис. 3 наведено фрагмент низькоенергетичної області γ -спектра двох ГЧ, де чітко видно, що “гаряча” частинка 2 (ГЧ 2) та “гаряча” частинка 4 (ГЧ 4) мають значні відмінності у співвідношенні в активності $^{241}\text{Am}/^{137}\text{Cs}$.

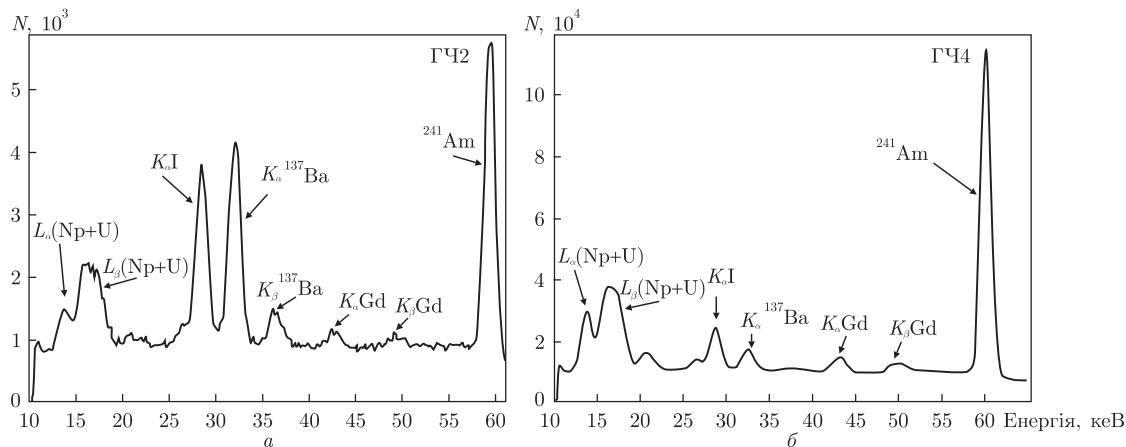


Рис. 3. Фрагмент низькоенергетичної області γ -спектрів “гарячих” частинок 2 (а) та 4 (б)

Після обробки γ -, β -спектрів було визначено активність ізотопів у паливних частинках (табл. 3).

Встановлено, що радіоактивність ґрунту в основному зумовлена дрібнодисперсними високоактивними паливними частинками (≤ 2 мкм), проте виявлялися і більш крупні (6–20 мкм). Після видалення високоактивних частинок з ґрунту загальна радіоактивність верхнього шару зменшилася приблизно в 1,5–2 рази.

Проаналізувавши експериментальні дані розподілу радіонуклідів по профілю ґрунту за допомогою модифікованої конвективно-дифузійної моделі переносу [9], ми визначили періоди екологічного напівочищення 5-сантиметрового шару ґрунту. Екологічні періоди напівочищення радіонуклідів ^{137}Cs та ^{90}Sr є приблизно однаковими і становлять $T_{1/2(\text{екол})} = 50 \pm 8$ років, а у ^{241}Am $T_{1/2(\text{екол})} = 70 \pm 8$ років. Це свідчить про слабку міграцію радіонуклідів, що зумовлена повільним переміщенням паливних частинок, в яких і до цього часу зосереджена значна кількість радіонуклідів. Отже, на паливних слідах радіоактивних випадінь радіонукліди відрізняються істотно меншою мобільністю та біологічною доступністю порівняно з конденсаційною формою випадінь.

Таким чином, досліджено сучасний стан радіоактивного забруднення полігона Стечанка. Встановлено, що радіоактивність у ґрунті в основному зумовлена ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{241}Am та ізотопами Pu. Радіоактивність верхніх шарів ґрунту формується в основному високоактивними паливними частинками.

Авторадіографічні дослідження проб ґрунту виявили наявність значної кількості паливних частинок, досліджено їх ізотопний склад та розподіл по профілю ґрунту.

Вивчено особливості міграції радіонуклідів на слідах паливних випадінь у віддалений післяаварійний період. Міграція радіонуклідів у верхніх шарах ґрунту до глибини 10 см відбувається переважно за рахунок переміщення паливних частинок.

Таблиця 3. Ізотопний склад та активність “гарячих” частинок, Бк

ГЧ	^{241}Am	^{137}Cs	^{155}Eu	^{154}Eu	^{243}Am	^{243}Cm	$^{238-240}\text{Pu}$	^{90}Sr
1	$7,5 \pm 0,5$	$39,5 \pm 2,0$	$0,29 \pm 0,02$	$0,9 \pm 0,1$	$0,02 \pm 0,01$	–	10 ± 2	100 ± 40
2	$46,6 \pm 2,5$	866 ± 40	$0,88 \pm 0,09$	$4,5 \pm 0,4$	$0,08 \pm 0,02$	$0,04 \pm 0,02$	46 ± 5	240 ± 50
3	$2,1 \pm 0,1$	$38,2 \pm 2,1$	$0,57 \pm 0,04$	$0,46 \pm 0,06$	–	–	$3,1 \pm 0,6$	80 ± 30
4	186 ± 9	$58,6 \pm 2,7$	$4,17 \pm 0,21$	$20,5 \pm 1,5$	$0,22 \pm 0,04$	$0,14 \pm 0,04$	248 ± 30	3600 ± 400

Визначено періоди екологічного напівочищення 5-сантиметрового шару ґрунту: для радіонуклідів ^{137}Cs та ^{90}Sr $T_{1/2(\text{екол})} = 50 \pm 8$ років, а для ^{241}Am $T_{1/2(\text{екол})} = 70 \pm 8$ років. Це також свідчить про низькі темпи міграції радіонуклідів у складі паливної матриці.

Цитована література

1. *Chernobyl Catastrophe* / Ed. V. G. Baryakhtar. – Kiev: Export Publishing House, 1997. – 572 p.
2. *20 років Чорнобильської катастрофи: Погляд у майбутнє* / Національна доповідь України. – Київ: Атіка, 2006. – 224 с.
3. *Иванов Ю. А., Кашпаров В. А.* Поведение в почве радионуклидов, представленных топливной компонентой выпадений аварийного выброса ЧАЭС // *Радиохимия*. – 1992. – **5**. – С. 112–124.
4. *Методика* відбору ґрунтових і рослинних проб для визначення в них вмісту радіоактивних речовин. – Київ: МінАПК, УкрНДІСГР, 1987. – 48 с.
5. *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. – **13**, № 4. – С. 403–408.
6. *Липська А. І., Ніколаєв В. І., Шитюк В. А., Кулич Н. В.* Техногенні радіонукліди аварійного викиду ЧАЕС та їх фізико-хімічні форми // *Ядерна фізика та енергетика*. – 2015. – **16**, № 3. – С. 282–286.
7. *Смирнова Е. А., Дубасов Ю. Б., Савоненков В. Г.* Выщелачивание радионуклидов из почвы и частиц радиоактивных выпадений 30-километровой зоны ЧАЭС (1987–1991 г. г.) // *Тр. Радиового института им. В. Г. Хлопина*. – Т. 14. – Ст.-Петербург: ФГУП “НПО Радиовый институт им. В. Г. Хлопина”, 2009. – С. 118–124.
8. *Кашпаров В. А.* Радиологическая значимость топливной компоненты чернобыльских радиоактивных выпадений // *Пробл. Чорнобильської зони відчуження*. – 2009. – Вип. 9. – С. 5–22.
9. *Прохоров В. М.* Миграция радиоактивных загрязнений в почвах. Физико-химические механизмы и моделирование / Под. ред. Р. М. Алексахина. – Москва: Энергоатомиздат, 1981. – 98 с.

References

1. *Chernobyl Catastrophe*, ed. V. G. Baryakhtar, Kiev: Export Publishing House, 1997.
2. *20 years after the Chernobyl disaster. A look into the future*, National Report of Ukraine, Kiev: Attica, 2006 (in Ukrainian).
3. *Ivanov Yu. A., Kashparov V. A.* Radiochemistry, 1992, **5**: 112–124 (in Russian).
4. *Metodika vidboru gruntovih i roslinnih prob dlya viznachennya v nih vmistu radioaktivnih rechovin*, Kiev: MinAPK, UkrNDISGR, 1987 (in Ukrainian).
5. *Zheltonozhskaya M. V., Kulich N. V., Lypskaya A. I., Nikolaev V. I.* Nuclear Physics and Atomic Energy, 2012, **13**, No 4: 403–408 (in Russian).
6. *Lypskaya A. I., Nikolaev V. I., Shityuk V. A., Kulich N. V.* Nuclear Physics and Atomic Energy, 2015, **16**, No 3: 282–286 (in Ukrainian).
7. *Smirnova E. A., Dubasov Yu. B., Savonenkov V. G.* Proceedings of V. G. Khlopin Radium Institute, Vol. 14, St.-Peterburg, 2009: 118–124 (in Russian).
8. *Kashparov V. A.* Problems of Chernobyl exclusion zone, 2009, **9**: 5–22 (in Russian).
9. *Prokhorov V. M.* The migration of radioactive contaminants in soils. Physico-chemical mechanisms and simulation, Ed. R. M. Aleksakhina, Moscow: Energoatomizdat, 1981 (in Russian).

Надійшло до редакції 27.10.2015

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

Институт ядерных исследований НАН Украины, Киев

E-mail: lypska@kinr.kiev.ua

Радиоэкологические исследования в местах топливных радиоактивных выпадений в Чернобыльской зоне отчуждения

Исследован изотопный состав радиоактивного загрязнения территории в Чернобыльской зоне отчуждения и распределение радионуклидов по профилю почвы. Установлено, что радиоактивность в почве в основном обусловлена ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{241}Am и изотопами Pu, которые входят в состав топливной матрицы. Изучен изотопный состав и определена активность топливных частиц. Выявлены особенности миграции радионуклидов на следах топливных выпадений в отдаленный послеварийный период. Оценены периоды экологического полужизни верхних горизонтов почвы.

Ключевые слова: радионуклиды, миграция, топливные частицы, радиоактивное загрязнение, Чернобыльская зона отчуждения.

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

Institute for Nuclear Research of the NAS of Ukraine, Kiev

E-mail: lypska@kinr.kiev.ua

Radioecological investigations in the areas of fuel radioactive fallouts of the Chernobyl exclusion zone

The isotopic composition of the radioactive contamination and the distribution of radionuclides in a soil profile are investigated. It is established that radioactivity in soil is caused mainly by ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{241}Am and Pu isotopes, which enter the fuel matrix. The isotopic composition and the activity of fuel particles are determined. The features of radionuclides' migration in the areas of fuel fallouts in a remote post-accident period are detected. Periods of environmental semicleaning of upper soil horizons are estimated.

Keywords: radionuclide, migration, fuel particles, radioactive contamination, Chernobyl exclusion zone.