

Д. М. Бондарьков, И. Н. Вишнеvский, В. А. Желтоножский,
М. В. Желтоножская, П. Н. Музалев

Институт ядерных исследований НАН Украины, Киев

ИЗУЧЕНИЕ ПОВЕДЕНИЯ РАДИОНУКЛИДОВ НА СИЛЬНОЗАГРЯЗНЕННЫХ ПОЛИГОНАХ 5-КИЛОМЕТРОВОЙ ЗОНЫ ЧАЭС

Проведены исследования поведения радионуклидов в почвах полигона «Рыжий лес» в ближней 5-километровой зоне ЧАЭС в 2014 - 2015 гг. Получены параметры вертикальной миграции и определены периоды полураспада верхнего 5-сантиметрового слоя почв. Оценены формы нахождения ^{90}Sr и ^{137}Cs , а также дисперсный состав топливных частиц чернобыльского происхождения. Показано, что поведение радионуклидов описывается в рамках конвективно-диффузионной модели и параметры этой модели слабо изменяются за последнее десятилетие.

Ключевые слова: радиоактивное загрязнение, вертикальная миграция, радионуклиды, формы нахождения радионуклидов, дисперсное распределение топливных частиц.

Введение

Чернобыльские радиоактивные выпадения представлены топливной компонентой мелкодиспергированного ядерного топлива (топливными частицами) и конденсационной компонентой, образовавшейся в результате конденсации на поверхности различных носителей летучих высокоподвижных продуктов деления (радиоизотопов йода, теллура, цезия и, в значительно меньшей степени, стронция и рутения), утечка которых происходила при высокотемпературном отжиге ядерного топлива. Присутствие в радиоактивных выпадениях радионуклидов в составе частиц облученного ядерного топлива («топливных» частиц) является специфической особенностью аварии на ЧАЭС. Ближняя 5-километровая зона аварии преимущественно была загрязнена топливными частицами, содержащими основную часть выброшенных из реактора нелетучих радионуклидов, включая такие биологически значимые, как ^{90}Sr , радиоизотопы плутония и америция. Топливные частицы были обнаружены и на значительном удалении от ЧАЭС во многих странах Европы [1]. Цезиевые конденсационные пятна в дальней зоне сформировались за счет выпадений ^{137}Cs вместе с осадками.

За последние полвека был проведен ряд фундаментальных исследований, посвященных поведению искусственных радионуклидов в окружающей среде как после их глобальных выпадений вследствие испытания ядерного оружия, крупных радиационных аварий, так и в модельных экспериментах с использованием водорастворимых форм радионуклидов и различных радиоактивных частиц. Однако уже первые результаты, полученные на топливных следах чернобыльских радиоактивных выпадений, показали ограниченность области применения ранее полу-

ченных закономерностей поведения радионуклидов. Так, на топливных следах радиоактивных выпадений радионуклиды отличались существенно меньшей мобильностью и биологической доступностью по сравнению с конденсационной формой выпадений (как глобальных, так и чернобыльских). Поэтому применение в первые годы Чернобыльской аварии ранее полученных закономерностей приводило к завышению результатов прогноза миграции радионуклидов в ближней зоне (наиболее сильно это проявлялось для ^{90}Sr). Со временем происходило (и происходит) растворение топливных частиц, что приводит к увеличению загрязнения растительности ^{90}Sr и его миграции в поверхностные и грунтовые воды. До настоящего времени основной вынос радиоактивности с территории зоны отчуждения обусловлен ^{90}Sr , выщелачиваемым из топливных частиц [2].

Отсутствие знаний о поведении в окружающей среде радионуклидов, выпавших в составе матрицы частиц облученного ядерного топлива, не позволяло в полной мере корректно оценивать радиологическую обстановку в ближней зоне и спрогнозировать ее изменение в будущем, а также оптимизировать применяемые контрмеры.

Все это обуславливает актуальность изучения поведения в окружающей среде радионуклидов, находящихся в составе топливной компоненты аварийного выброса ЧАЭС как для ликвидации последствий Чернобыльской аварии, так и использования ее опыта для других аварийных гипотетических ситуаций с выбросом частиц облученного ядерного топлива, а также при его захоронении. Выброс аналогичных чернобыльских топливных частиц может происходить при авариях на предприятиях ядерно-топливного цикла при транспортировке топлива, разрушении ядер-

© Д. М. Бондарьков, И. Н. Вишнеvский,
В. А. Желтоножский, М. В. Желтоножская, П. Н. Музалев, 2016

ных реакторов и хранилищ отработанного ядерного топлива и т.п. Особую актуальность изучение процессов образования топливных частиц и поведения в окружающей среде радионуклидов в их составе приобрело после беспрецедентных террористических актов в США в 2001 г. и угроз использования в террористических актах «грязных» бомб.

Методы исследований и результаты

В данной работе представлены результаты по изучению вертикальной миграции радионуклидов в образцах, отобранных в 2014 - 2015 гг.

Для исследований выбраны участки на территории полигона «Рыжий лес», характеризующиеся двумя типами почв: дерново-слабоподзолистые пылевато-песчаные почвы и болотные минеральные глинисто-песчаные почвы. Мощность дозы в местах отбора была одинаковой и составляла 1000 мкР/ч на поверхности и на высоте 1 м. Участки были выбраны на территории без антропогенного воздействия, чтобы можно было рассматривать миграцию радионуклидов в естественной среде. Отбор проб проводился методом «конверта». Расстояние между вершинами «конвертов» было 4 м. Таким образом всего было опробовано 6 «конвертов». В каждой точке отбора был извлечен керн до глубины 30 см. Керн, глубиной 30 см, делился на образцы послойно: первые два слоя глубиной по 2 см, затем два слоя глубиной по 3 см и 4 слоя по 5 см. Активности ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{241}Am и изотопов плутония во всех образцах были измерены спектрометрическими методами [3, 4].

Все исследования миграции радионуклидов проводились по нерадиохимической методике. Гамма- и альфа-активность в этой методике изучаются из данных о интенсивности гамма- и рентгеновских лучей в области энергий 14 - 60 кэВ. Это позволило уменьшить систематические ошибки при измерениях радионуклидов в образцах различной толщины и массы и определять полную альфа-активность изотопов плутония и ^{241}Am . Для определения полной активности плутония используется тот факт, что в результате альфа-распада изотопов плутония с вероятностью около 25 % возбуждается ряд низкоэнергетических состояний соответствующих изотопов урана с энергией, меньшей энергии связи К-электронов. Распад этих состояний происходит посредством внутренней конверсии гамма-лучей E2-мультипольности с последующим испусканием характеристического рентгеновского излучения с энергией, лежащей в диапазоне 13 - 23 кэВ.

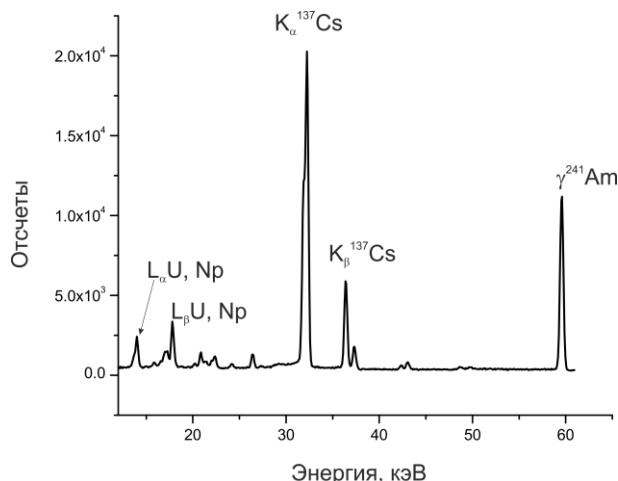


Рис. 1. Фрагмент гамма-спектра чернобыльских выпадений в верхнем слое почвы.

Характерный фрагмент гамма-спектров чернобыльских выпадений в верхнем слое разреза представлен на рис. 1. По спектру мы видим, какие изотопы есть в выпадениях. В низкоэнергетической области хорошо определяются пики 14 и 18 кэВ (L_{α} и L_{β} U, Np); 32 кэВ K_{α} Вa (^{137}Cs); ^{241}Am - 59 кэВ.

Из полученных нами данных были получены распределения активности изотопов до глубины 30 см (рис. 2). В целом разброс значений активности на одной и той же глубине в пределах рядом расположенных «конвертов» не превышал 15 - 20 %. Поэтому на рисунке приведены характерные распределения активности для разных типов почв, для одного из кернов в «конверте».

Скорость вертикальной миграции изотопов плутония в наших исследованиях подобна скорости вертикальной миграции ^{241}Am , как это наблюдалось и ранее [5]. Поэтому дальнейший анализ мы проводили с данными о ^{241}Am , так как погрешность измерений концентрации активности ^{241}Am не превышает 5 %. В то же время уже на глубине 10 - 15 см погрешность в данных о активности изотопов плутония достигает 15 - 20 %.

В увлажненных болотных минеральных глинисто-песчаных почвах основной вклад ^{241}Am прослеживается только до глубины 20 см. Мы наблюдали ^{241}Am в этих почвах и на глубине 30 см, однако вклад ^{241}Am становится соизмерим с вкладом глобальных выпадений [6] и при определении параметров, характеризующих миграцию ^{241}Am чернобыльского происхождения, его можно не учитывать.

Для сухой дерново-слабоподзолистой пылевато-песчаной почвы «Рыжего леса» мы видим подобную миграцию цезия, стронция и америция до глубины 30 см. Изотопы идут как бы единым ансамблем, что позволяет предположить, что мигрирует топливная микрочастица.

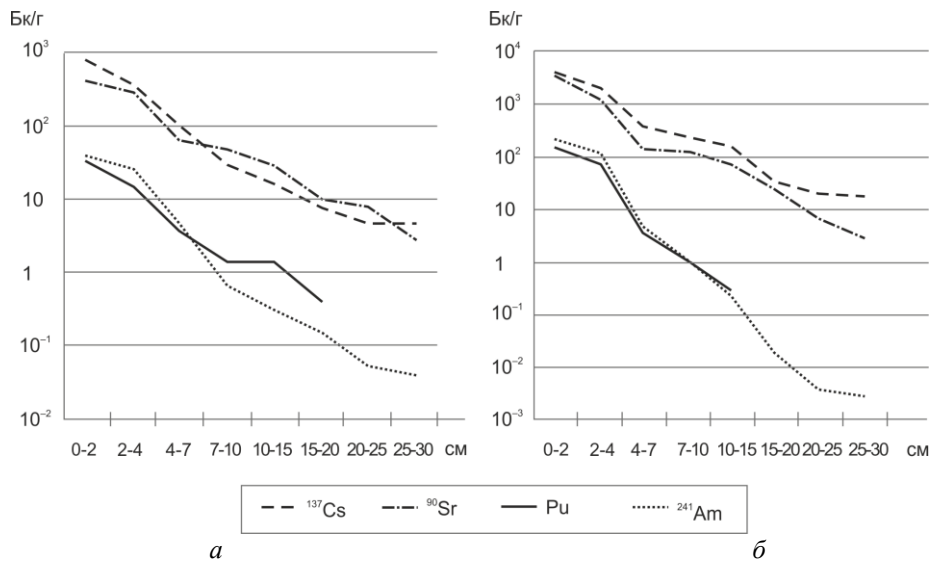


Рис. 2. Характерные распределения активности цезия, стронция, америция и изотопов плутония в некоторых типах почв «Рыжего леса» до глубины 30 см: *а* - дернистая пылепесчаная почва, отбор - май 2015 г.; *б* - болотная минеральная оглинено-песчаная почва, отбор - октябрь 2014 г.

Из полученных данных можно определить периоды экологического полуочищения 5-сантиметрового слоя почвы, для этого используется конвективно-диффузионная модель миграции

радионуклидов в почве. В рамках этой модели распределение радионуклидов описывается выражением[7]

$$C(x,t) = C_0 \left\{ \frac{1}{\sqrt{\pi \cdot D \cdot t}} \exp\left(-\frac{(x - V \cdot t)^2}{4 \cdot D \cdot t}\right) - \frac{V \cdot x}{D} \exp\left(-\frac{V \cdot x}{D}\right) \left[1 - \operatorname{erfc}\left(\frac{x + V \cdot t}{2\sqrt{D \cdot t}}\right) \right] \right\},$$

где C_0 , $C(x, t)$ – содержание радионуклида в почвенном слое x в начальный момент времени и время t , $\text{см}^2 \cdot \text{год}^{-1}$; D – коэффициент диффузии радионуклида; V – скорость направленного переноса радионуклида с током влаги, $\text{см} \cdot \text{год}^{-1}$.

Данные приведены в табл. 1. Периоды полуочищения америция близки к периодам полуочищения цезия и коррелируют между собой независимо от типа почв в разрезе. Это тоже говорит в пользу гипотезы о том, что значительное количество цезия, стронция и америция находится в виде «горячих» частиц.

Описывая приведенным выражением полученные нами распределения, были рассчитаны периоды полуочищения 5-сантиметровых слоев почвы на исследуемых участках.

Таблица 1. Периоды полуочищения верхних корнеобитаемых горизонтов некоторых видов почв «Рыжего леса»

Участки	¹³⁷ Cs, год	⁹⁰ Sr, год	²⁴¹ Am, год	Pu, год
Болотная минеральная оглинено-песчаная почва в «Рыжем лесу» на 2001 - 2002 гг.	28 ± 3	21 ± 4	25 ± 3	100 ± 20
Болотная минеральная оглинено-песчаная почва в «Рыжем лесу» на 2014 - 2015 гг.	27 ± 3	36 ± 5	55 ± 7	74 ± 20
Дернистая пылепесчаная почва в «Рыжем лесу» на 2001 - 2002 гг.	58 ± 6	46 ± 7	42 ± 7	100 ± 35
Дернистая пылепесчаная почва в «Рыжем лесу» на 2014 - 2015 гг.	61 ± 10	42 ± 7	62 ± 9	56 ± 20

Из наших данных следует, что скорость перемещения активности радионуклидов по глубине практически не изменилась по сравнению с данными, полученными 10 лет назад [5]. Это указывает на то, что параметры вертикального переноса,

полученные в результате использования модифицированной конвективно-диффузионной модели переноса могут успешно использоваться и для текущих радиоэкологических оценок.

Для определения форм нахождения радионуклидов ^{90}Sr , ^{137}Cs в образцах использовался метод последовательных экстракций. Для этого с обобщенных образцов первого и второго проботоров отбирались по три воздушно-сухие навески массой 10 г каждая. Проведенная гамма-спектрометрия показала, что отличие удельной активности ^{137}Cs и ^{241}Am между обобщенными образцами и отобранными из них аликвот не превышала 15 %. Последовательность выщелачивания образцов и состав растворов было подобрано с учетом результатов исследований, полученных при выщелачивании чернобыльских радионуклидов [8].

Выщелачивания проводилось в трех повторах для каждого проботора при соотношению твердой и жидкой фаз 1:5.

Щелочи, полученные при проведении экстракций, отделялись от твердого остатка в центрифуге при скорости вращения 6000 об/мин. После декантации растворы фильтровались через бумажный фильтр «синяя лента». После выщелачивания

твердые остатки промывали дистиллированной водой и полученную промывку после центрифугирования и фильтрования объединяли с соответствующим раствором щелочи. Фильтры после фильтрования объединяли с твердыми остатками. Для определения в щелочах содержания ^{137}Cs применялся гамма-спектрометрический метод, Sr определялся бета-радиометрическим методом после радиохимического выделения.

Измерение активности ^{137}Cs выполняли на гамма-спектрометре в составе полупроводникового детектора из сверхчистого германия с разрешением 0,57 кэВ для энергии гамма-квантов 122 кэВ (гамма-линия ^{57}Co). Детектор имеет бериллиевое окно толщиной 500 мкм.

Бета-радиометрические измерения ^{90}Sr проводили на низкофоновом бета-радиометре УМФ-1500 сразу после его радиохимического выделения по методике осаждения. В табл. 2 приведены полученные результаты.

Таблица 2. Соотношения мобильных форм ^{90}Sr и ^{137}Cs в почве ближней зоны ЧАЭС*

Наименование	NH_4Ac	HCl	HNO_3	Σ ($\text{NH}_4\text{Ac} + \text{HCl}$)
Содержание ^{90}Sr в экстрактах, % от суммы четырех экстракций				
Б 0-2	34,5	19,8	5,8	54,3
Б 2-4	41,9	22,7	21,5	64,6
Содержание ^{137}Cs в экстрактах, % от суммы четырех экстракций				
Б 0-2	3,8	1,5	5,1	5,3
Б 2-4	3,3	1,4	4,4	4,7

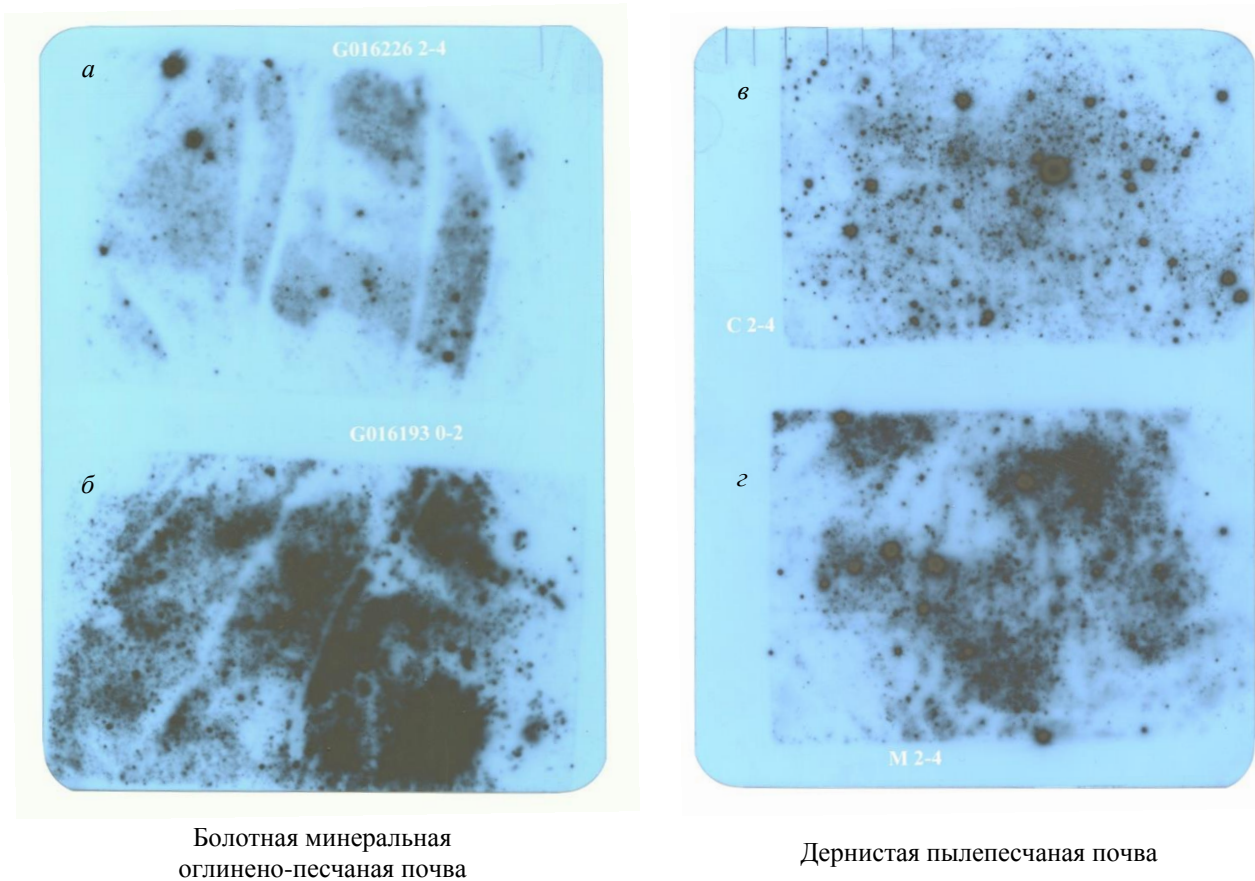
* Относительная погрешность не превышала 10 % для ^{137}Cs и 15 % для ^{90}Sr .

В целом доминирует выщелачивание ^{90}Sr , как и наблюдалось все эти годы после аварии.

Радиографические исследования проводились для визуализации чернобыльских топливных частиц в образцах почвы и оценки их дисперсного состава. Для этого с воздушно-сухих навесок образцов готовились запаянные в тонкий полиэтилен препараты, максимально приближенные к монослойным, что экспонировались в течение 750 ч в рентгеновской пленке РП-У («Аника», Украина). Проявления и фиксация пленки выполнялась в соответствии с рекомендациями производителя. Изображения на пленках пятен потемнения от радиоактивного излучения «горячих» частиц оцифровывались с помощью сканера Epson V330Photo в отраженном свете с разрешением 600 точек на дюйм и в дальнейшем анализировались в программной среде «ImageJ» (рис. 3).

Для оценки дисперсного состава топливных частиц использовалась экспериментальная зависимость между диаметром пятен потемнения (в

пикселях) и дозой (произведение активности ^{90}Sr (Бк) в топливных частицах на время экспозиции). Зависимость была получена при экспозиции на рентгеновской пленке в течение разного времени линейки из единичных топливных частиц. Данные частицы были выделены из образцов почвы и воздушных фильтров и для каждой из них предварительно была измерена активность ^{90}Sr инструментальным способом. На рис. 4 представлены полученные распределения «горячих» частиц. Из наших результатов видно, что максимум распределения «горячих» частиц сместилось на 1 - 1,5 мкм по сравнению с распределением [1] в 2000-е годы. На наш взгляд, с учетом данных о формах нахождения стронция в почвах можно сделать вывод, что для топливных частиц в настоящее время доминирует процесс выщелачивания. Это хорошо вписывается в гипотезу об уменьшении размеров «горячих» частиц, объясняющую миграцию ^{90}Sr , ^{137}Cs и ^{241}Am в виде компактных структур.



Болотная минеральная
оглиненно-песчаная почва

Дернистая пылепесчаная почва

Рис. 3. «Горячие» частицы в почве.

Авторадиография (а – слой 2 - 4 см болотной минеральной оглиненно-песчаной почвы; б – слой 0 - 2 см болотной минеральной оглиненно-песчаной почвы; в – слой 2 - 4 см дернистой пылепесчаной почвы; г – слой 0 - 2 см дернистой пылепесчаной почвы).

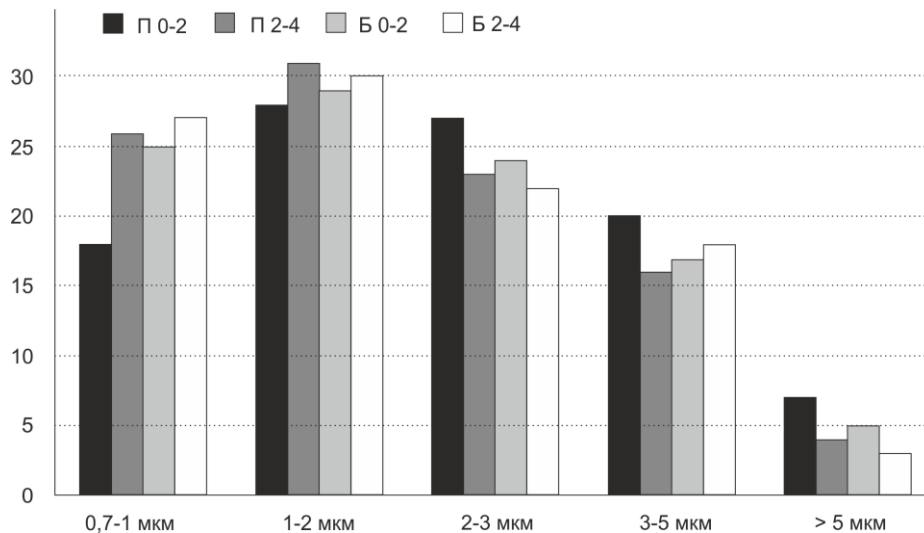


Рис. 4. Гистограмма распределения по размерам «горячих» частиц (П0-2 – слой 0 - 2 см дернистой пылепесчаной почвы; П2-4 – слой 2 - 4 см дернистой пылепесчаной почвы; Б0-2 – слой 0 - 2 см болотной минеральной оглиненно-песчаной почвы; Б2-4 – слой 2 - 4 см болотной минеральной оглиненно-песчаной почвы).

Выводы

1. Получены новые данные о вертикальной миграции радионуклидов на сильнозагрязненных территориях украинского Полесья в 2014 - 2015 гг.
2. Определены периоды полураспада верх-

них корнеобитаемых горизонтов почв от ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{241}Am и изотопов плутония.

3. Определены мобильные формы нахождения ^{90}Sr и ^{137}Cs в дернистой пылепесчаной и болотной минеральной оглиненно-песчаной почвах «Рыжего леса».

4. Показано, что скорость миграции радионуклидов слабо изменилась по сравнению с 2000 гг. Показано доминирование процессов выщелачивания ^{90}Sr .

5. Радиографическим методом исследован дисперсный состав топливных частиц в двух верхних слоях почв исследуемого полигона. По-

казано уменьшение размеров топливных частиц по сравнению с 2000 г. с 3 до 1,5 мм.

В заключение авторы выражают благодарность А. А. Одинцову и В. П. Процаку за помощь в проведении работ в определении форм нахождения в почвах ^{90}Sr и ^{137}Cs , а также измерения размеров топливных частиц.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Кашипаров В.А.* Радиологическая значимость топливной компоненты чернобыльских радиоактивных выпадений // Проблемы чернобыльской зоны відчуження. - 2009. - Вип. 9. - С. 5 - 22.
2. *Иванов Ю.А.* Анализ факторов, определяющих долговременную динамику миграции радионуклидов в почвенно-растительном покрове // Проблемы чернобыльской зоны відчуження. - 2009. - Вип. 9. - С. 23 - 39.
3. *Бондарьков М.Д., Иванов Ю.А., Желтоножский В.А., Желтоножская М.В.* Определение содержания плутония в пробах 30-км зоны Чернобыльской АЭС // Атомная энергия. - 2006. - Т. 100, Вып. 2. - С. 146 - 150.
4. *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 - 407.
5. *Бондарьков М.Д., Гацак С.П., Желтоножская М.В. и др.* Вертикальная миграция радионуклидов на территории чернобыльских полигонов // Проблемы безпеки атомних електростанцій і Чорнобиля. - 2006. - Вип. 6. - С. 155 - 163.
6. *Бондарьков М.Д., Желтоножская М.В.* Изучение глобальных выпадений, связанных с атомными взрывами // Проблемы безпеки атомних електростанцій і Чорнобиля. - 2006. - Вип. 5. - С. 157 - 160.
7. *Махонько К.П.* Вид профилей концентрации продуктов деления в почве при глобальных и локальных выпадениях // Радиоактивные изотопы в почве и растениях. - М.-Л.: Колос, 1969. - С. 48 - 56.
8. *Процак В.П., Одинцов О.О.* Оцінка форм знаходження чернобыльських радіонуклідів у донних відкладеннях водойми-охолоджувача ЧАЕС // Ядерна фізика та енергетика. - 2014. - Т. 15, № 3. - С. 259 - 268.

**Д. М. Бондарьков, И. М. Вишневецкий, В. О. Желтоножский,
М. В. Желтоножская, П. Н. Музальов**

Институт ядерних досліджень НАН України, Київ

ВИВЧЕННЯ ПОВЕДІНКИ РАДІОНУКЛІДІВ НА СИЛЬНОЗАБРУДНЕНИХ ПОЛІГОНАХ 5-КІЛОМЕТРОВОЇ ЗОНИ ЧАЕС

Проведено дослідження поведінки радіонуклідів у ґрунтах полігону «Рудий ліс» у ближній 5-кілометровій зоні ЧАЕС у 2014 - 2015 рр. Отримано параметри вертикальної міграції та визначено періоди напівочищення верхнього 5-сантиметрового шару ґрунтів. Оцінено форми знаходження ^{90}Sr і ^{137}Cs , а також дисперсний склад паливних частинок чорнобильського походження. Показано, що поведінка радіонуклідів описується в рамках конвективно-дифузійної моделі, а параметри цієї моделі слабо змінюються за останнє десятиріччя.

Ключові слова: радіоактивне забруднення, вертикальна міграція, радіонукліди, форми знаходження радіонуклідів, дисперсний розподіл паливних частинок.

**D. M. Bondarkov, I. M. Vyshnevskiy, V. O. Zheltonozhskiy,
M. V. Zheltonozhskaya, P. M. Muzalev**

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

STUDIES OF RADIONUCLIDES BEHAVIOR ON HEAVILY CONTAMINATED 5-KM ZONE OF ChNPP

Studies of the radionuclides behavior in the soils of "Red Forest" landfill in the nearest 5-km ChNPP zone were carried out during 2014 - 2015. The parameters of vertical migration and halftimes of upper 5-cm soil layer decontamination were obtained. Forms of occurrence of ^{90}Sr and ^{137}Cs , as well as the disperse composition of the Chernobyl origin fuel particles were evaluated. Behavior of radionuclides described in conditions of the convection-diffusion model and the parameters of the model slightly changed over the past decade.

Keywords: contamination, vertical migration, radionuclides, speciation of radionuclides dispersed distribution of the fuel particles.

REFERENCES

1. *Kashparov V.A.* // Problemy chornobil's'koi zony vidchuzhennya. - 2009. - Iss. 9. - P. 5 - 22. (Rus)
2. *Ivanov Yu.A.* // Problemy chornobil's'koi zony vidchuzhennya. - 2009. - Iss. 9. - P. 23 - 39. (Rus)
3. *Bondarkov M.D., Ivanov Yu.A., Zheltonozhskij V.A., Zheltonozhskaya M.V.* // Atomnaya energiya. - 2006. - Vol. 100, Iss. 2. - P. 146 - 150. (Rus)
4. *Zheltonozhskaya M.V., Kulich N.V., Lipskaya A.I. et al.* // Yaderna fizyka ta energetyka (Nucl. Phys. At. Energy). - 2012. - Vol. 13, No. 4. - P. 403 - 407. (Rus)
5. *Bondarkov M.D., Gashchak S.P., Zheltonozhskaya M.V. et al.* // Problemy bezpeky atomnykh elektrostantsij i Chornobylya. - 2006. - Iss. 6. - P. 155 - 163. (Rus)
6. *Bondarkov M.D., Zheltonozhskaya M.V.* // Problemy bezpeky atomnykh elektrostantsij i Chornobylya. - 2006. - Iss. 5. - P. 157 - 160. (Rus)
7. *Makhonko K.P.* // Radioactive isotopes in soil and plants. - Moskva-Leningrad: Kolos, 1969. - P. 48 - 56. (Rus)
8. *Protsak V.P., Odintsov O.O.* // Yaderna fizyka ta energetyka (Nucl. Phys. At. Energy). - 2014. - Vol. 15, No. 3. - P. 259 - 268. (Ukr)

Надійшла 14.06.2016

Received 14.06.2016