

RADIONUCLIDE MIGRATION AND FORMS TRANSFORMATION MECHANISMS IN TYPICAL LANDSCAPES OF CONTAMINATED TERRITORY IN BRYANSK REGION.

Starodubov A.

Federal State Unitary Enterprise «VIMS» («All-Russian Scientific-Research Institute Of Mineral Resources Named After N.M. Fedorovsky»), Moscow, Russia, lab@u238.ru

Migration and forms transformation mechanisms of ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{241}Am , $^{239+240}\text{Pu}$ and radioactive particles in the zone of suspended water have been established by radio-ecological monitoring integrated approach.

^{137}Cs and ^{90}Sr has reached the depth of ground waters. Inflow of ^{90}Sr in ground waters is more intensive than ^{137}Cs . Speed of migration and inflow increase in the biggest part of typical landscapes.

Transuranium elements migration characteristics are similar to ones of ^{137}Cs , lower for Pu and higher for Am.

Primary “hot” particles at present are located deeper than 10 cm. They consist of CsCl with CsCl crystal structure, Cs_2O , UO_2 .

In topsoil (0 – 5 cm) radionuclides are in disperse state and in reformed particles consisted of CsCl with NaCl crystal structure.

At substantial depth (50 – 70 cm) Cs is associated with iron hydroxide and decomposed organic matter. Primary “hot” particles are also found here.

Microfloras active participation in radioactive particles degradation and CsCl crystal structure changing has been determined.

ЗАКОНОМЕРНОСТИ МИГРАЦИИ И ТРАНСФОРМАЦИИ ФОРМ НАХОЖДЕНИЯ ТЕХНОГЕННЫХ РАДИОНУКЛИДОВ В ТИПИЧНЫХ ЛАНДШАФТАХ ЗАГРЯЗНЁННОЙ ЧАСТИ БРЯНСКОЙ ОБЛАСТИ

Стародубов А.В.

ФГУП «ВИМС», Москва, Россия, lab@u238.ru

Применение комплексного подхода к радиационному мониторингу на загрязнённой чернобыльскими выпадениями части Брянской области позволило выявить закономерности миграции и преобразования форм радионуклидов в зоне аэрации.

Лаборатория изотопных методов анализа ФГУП «ВИМС» совместно с ФГУП «Геоцентр-Брянск» проводят радиоэкологические исследования в Брянской области с конца 80-х годов. Наиболее интенсивно работы проводились в 1992 — 2006 годах, главным образом на территории двух специализированных полигонов — Деменка и Кожаны, расположенных в западной части области.

Для обобщения и систематизации многолетних данных о миграции ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{241}Am , $^{239+240}\text{Pu}$ в зоне аэрации полученной в результате послонного отбора и анализа нами использован «метод моментов» [4, 5].

Сущность метода состоит в описании экспериментально полученного распределения радионуклидов по вертикальным разрезам зоны аэрации некоторым вероятностным распределением, представляющим собой вероятность достижения тем или иным радионуклидом глубины с координатой X в произвольный момент наблюдения t от начала миграции. «Метод моментов» позволяет рассчитать и оценить представительные параметры миграции радионуклида с учетом фактических

ландшафтно- геоморфологических условий участка исследования.

Наиболее важными из них являются следующие:

1. Положение «центра масс» (X_c , см) – средневзвешенное значение пространственной координаты эмпирического распределения радионуклида в почвенном профиле за время t .

2. Средняя скорость переноса радионуклида (V_c , см/год), вычисляемая по формуле $V_c = X_c/t$. Среднее значение X_c вычисляется согласно уравнению соответствующей линии регрессии в координатах: ось абсцисс – t (время от момента загрязнения, лет), ось ординат – X_c , см.

3. Дисперсия радионуклида (D_m , см²) относительно дневной поверхности – среднеквадратичное рассеяние (отклонение) радионуклида от изначально загрязненной дневной поверхности на глубину.

4. Средняя скорость изменения дисперсии (рассеяния) радионуклида относительно дневной поверхности (V_D , см²/год), вычисляемая по формуле $V_D = D_m/t$. Среднее значение D_m вычисляется согласно уравнению соответствующей линии регрессии в координатах: ось абсцисс – t (время от момента загрязнения, лет), ось ординат – D_m , см².

Первые три параметра являются стандартными для классического варианта «метода моментов» [4, 5], а четвертый (средняя скорость изменения дисперсии) предложен автором для оценки скорости движения переднего фронта радионуклидов в зоне аэрации, обусловленного «быстрой» компонентой, то есть наиболее подвижной фазой радиоактивного загрязнения [6].

Преимуществом параметров, определяемых с помощью «метода моментов» перед аналогами или умозрительным определением является их высокая воспроизводимость и возможность работы с данными без «вписывания» их в заранее определенную модель массопереноса. Это является принципиальным моментом при обработке многолетних данных, полученных в естественных полевых условиях, а не при идеализированных условиях модельного эксперимента.

Для выявления закономерностей миграции анализируемых радионуклидов во времени были построены графики распределения экспериментальных значений X_c , V_c , D_m , V_D в соответствии с периодами опробования, как на примере (Рис. 1). Для полученных распределений вычислялась и строилась линия регрессии линейного или экспоненциального типа в программе SigmaPlot v.10 для MS Windows. Оценка достоверности аппроксимации осуществлялось по методу R^2 .

Рис. 1. Увеличение дисперсии ^{137}Cs и ^{90}Sr в аллювиально-дерновой почве на суглинистом основании, 2-я надпойменная терраса.

Анализ результатов по более чем 2000 проб показывает, что, несмотря на положение центров масс ^{137}Cs и ^{90}Sr в пределах первых десяти сантиметров зоны аэрации, к настоящему моменту произошло проникновение радионуклидов на значительные глубины, сопоставимые с уровнем грунтовых вод для данных ландшафтов (от 0 до 8 метров).

Из типичных для Брянской области ландшафтных зон наименьшей подвижностью ^{137}Cs характеризуются моренные ландшафты с зоной аэрации, представленной дерново-подзолистыми и дерново-подзолистыми частично оглеенными почвами. В этих условиях центр масс радиоцезия не покинул первых 20 см зоны аэрации и средняя скорость его переноса очень мала – 0,09 см/год.

Примерно такие же показатели отмечены для лугово-болотной почвы на суглинистом основании. Более высокие показатели миграции ^{137}Cs зафиксированы в дерново-подзолистой и дерново-подзолистой частично оглеенной почвах. В оглеенных

почвах миграционная способность радиоцезия ниже, чем в неоглеенных, что особенно проявлено в степени рассеяния радионуклида.

Почвы, подвергавшиеся до радиоактивного загрязнения перепахиванию, значительно хуже удерживают радиоцезий по сравнению с ненарушенными. Показатели дисперсии здесь значительно выше, несмотря на прекращение хозяйственной деятельности на этих землях сразу после загрязнения.

По степени проницаемости для радиоцезия изученные типы почв располагаются в следующей последовательности (от большей к меньшей): болотная низинная торфяная → аллювиальная дерновая → дерново-подзолистая → луговая болотная → дерново-подзолистая оглеенная.

Все рассмотренные виды зон аэрации являются хорошо проницаемыми для ^{90}Sr – средние скорости его рассеяния весьма значительны: 14 – 37 см²/год. В целом, показатели скоростей миграции для ^{90}Sr значительно выше, чем для ^{137}Cs во всех рассмотренных ландшафтах. Лишь для болотной низинной торфяной почвы поймы средние скорости переноса ^{137}Cs и ^{90}Sr примерно равны. Дисперсия ^{137}Cs в этих ландшафтных условиях максимальна, однако дисперсия ^{90}Sr значительно больше.

По степени проницаемости для радиостронция изученные типы почв можно представить в виде ряда (от большей к меньшей): аллювиальная дерновая → болотная низинная торфяная → дерново-подзолистая → дерново-подзолистая оглеенная → луговая болотная.

Данные, полученные за период наблюдений, демонстрируют сложность и высокую интенсивность процессов, происходящих при многолетнем нахождении ^{90}Sr в зоне аэрации (сорбция – десорбция на различных компонентах, повторный вынос ^{90}Sr на дневную поверхность растительностью и другие), вследствие которых скорость миграции ^{90}Sr могла быть переменной в первые после выпадений 10 лет. Вместе с тем, с 1995 года автором зарегистрировано ускорение процесса проникновения ^{90}Sr вглубь зоны аэрации и далее, в грунтовые воды за счет постепенного выноса все больших количеств этого радионуклида из почвенных горизонтов, являющихся геохимическими барьерами. Для болотной низинной торфяной и дерново-подзолистой частично оглеенной почв такими барьерами являются органогенные и глеевые горизонты, а для аллювиальной дерновой на суглинистом основании – глинистые минералы.

Для дерново-подзолистой оглеенной почвы выявлены тенденции к снижению средних скоростей вертикального переноса ^{137}Cs и ^{90}Sr , а также к снижению средней скорости дисперсии ^{137}Cs . Поэтому для данного типа почв попадание ^{137}Cs в грунтовые воды будет маловероятным. Для остальных характерных типов почв, представленных на загрязнённой территории Брянской области процесс поступления ^{137}Cs в грунтовые воды происходит с различной интенсивностью, зависящей от установленных миграционных характеристик.

Таким образом, ни одна из исследованных зон аэрации в настоящее время не обеспечивает полной защиты грунтовых вод от ^{90}Sr .

Расчётные параметры заглужения осколочных продуктов деления в грунтовые воды подтверждается фактическим обнаружением их в подземных водах.

Исследованиями, выполненными лабораторией изотопных методов анализа в 1990 – 1993 годах, было установлено наличие «горячих» частиц в верхних 2 – 5 см почвы [2]. Количество частиц в 1 грамме почвы составляло от 20 – 30 до 1500, размером 0,6 – 0,8 мкм. Дополнительные исследования радионуклидного состава показали, что примерно 15 – 20 % из этих частиц являются топливными, содержащими изотопы Pu, Am, U, Sr, а 85 % - конденсационными, с активностью, обусловленной в основном ^{137}Cs .

Миграционные характеристики трансурановых элементов (ТУЭ) в исследованных ландшафтных условиях сходны с характеристиками ^{137}Cs , для изотопов Pu они чуть

ниже, для ^{241}Am – немного выше. Аналогично ^{137}Cs , наибольшее проникновение ТУЭ вглубь зоны аэрации произошло на антропогенно нарушенной почве. Относительно небольшая разница в параметрах миграции между этими радионуклидами связана с современным накоплением ^{241}Am из ^{241}Pu , а также нахождением ТУЭ в «горячих» частицах.

В ближайшей перспективе, когда основная часть ^{241}Pu распадётся, можно ожидать существенно больших уровней активности ^{241}Am в более глубоких почвенных горизонтах по сравнению с изотопами Pu.

Две наиболее крупные частицы из поверхностного горизонта полигона «Кожаны» были исследованы электронно-микроскопическим методом [3].

Установлено, что обе эти частицы имеют размеры 10 — 15 мкм и представлены топливным типом: в основном они состоят из диоксида U, кроме того, в них обнаружены следы Cs, Ti, Ca, Fe.

Число частиц конденсационного и сорбционного происхождения к 1998 году существенно уменьшилось. Вероятно, значительная их часть разрушилась за счёт механических деструктивных процессов с образованием более мелких частиц и высвобождением содержащихся в них радионуклидов — ^{137}Cs и ^{90}Sr .

Рутениевые частицы к середине 90-х годов полностью утратили радиоактивность из-за небольшого времени полураспада ^{106}Ru .

Для выяснения современного пространственного распределения радионуклидов чернобыльских выпадений в 2004 году автором были произведены β -, γ -авторадиографические исследования проб, отобранных на контрольных площадках с различных по глубине почвенных горизонтов. В результате выявлено большое количество активных микрочастиц, сконцентрированных до глубины 10 – 15 см (по отдельным шурфам до 60 — 70 см) на всех площадках, за исключением фоновых [1].

Интенсивность проявления «горячих» частиц на авторадиографиях отвечает удельной активности ^{137}Cs в соответствующем образце. Поэтому автор предположил, что природа этих частиц обусловлена цезием. Произведенные дополнительные исследования отдельных частиц из препаратов гамма- спектрометрическим и бета-радиометрическим методами подтвердили это предположение — практически вся бета-активность частиц обусловлена ^{137}Cs .

Так же выявилась обратная зависимость между удельной активностью ^{137}Cs в препарате и активностью этого радионуклида в отдельных частицах проб с площадки, расположенной рядом с населённым пунктом Заборье. Активность многочисленных мелких частиц из верхних почвенных горизонтов составляет 0,1 – 0,3 Бк по ^{137}Cs , при удельной активности проб до 90 Бк/г, а активность немногочисленных частиц с глубины 50 – 60 см составляет 2,2 – 2,5 Бк, что на порядок выше, чем в верхних горизонтах. Удельная активность грунта с этих глубоких горизонтов составляет 1,6 КБк/кг. То есть практически 100 % активности ^{137}Cs в этом почвенном горизонте сосредоточено в одиночных, достаточно активных микрочастицах. На радиографиях это проявляется как несколько крупных потемнений на плёнке при минимальной фоновой засветке.

Для детального исследования природы этих частиц они были выделены из препаратов и подвергнуты анализу методами сканирующей и растровой электронной микроскопии, что позволило установить наличие частиц различного состава и морфологии. Среди них есть как остатки первичных «горячих» частиц выпадений топливного происхождения (дисперсные), так и заново образованные агрегаты Cs.

Частицы первичных выпадений находятся в настоящее время главным образом на глубине порядка 10 см. Они представляют собой глобулы, состоящие из оксида урана и хлорида цезия (Рис 2-Б). Причём внутри глобул находится CsCl с кристаллической структурой CsCl, а на периферии – со структурой NaCl. Законсервированные в

графитизированном от длительного облучения гумусе, частицы также состоят из CsCl с кристаллической структурой CsCl. Следовательно, Cs в первоначальных частицах выпадений был в виде CsCl со структурой CsCl. При разрушении первичных частиц и образовании новых агрегатов его кристаллическая структура изменяется на NaCl, по всей видимости, под воздействием почвенной микрофлоры, которая во множестве присутствует в препаратах «горячих» частиц (Рис 3). Структура кристаллов CsCl, обнаруженных внутри бактерий, имеет дифракционную картину NaCl.

В верхнем слое почвы (до 5 см) первичные частицы выпадений не были зафиксированы. По всей видимости, в верхних почвенных горизонтах процесс разрушения первичных частиц протекает значительно быстрее, чем в более глубоких слоях. Поэтому для верхних почвенных горизонтов характерны как перерабатываемые, так и уже переработанные микрофлорой вторично сформированные формы частиц, состоящих из CsCl с кристаллической структурой NaCl (Рис. 2-А).

Рис. 2. Изображения радиоактивных частиц полученные с помощью электронного микроскопа. А — плотный многофазный агрегат частиц, глубина 0-2,5 см. Кубики CsCl со структурой NaCl, обломочная частица (белая стрелка), кварц (черная стрелка); Б — округлое обособление частицы CsCl со структурой CsCl (белая стрелка) и переотложенное мелкозернистое обособление CsCl со структурой NaCl (чёрная стрелка), глубина 7,5-10 см.

Рис. 3. Взаимодействие почвенной микрофлоры с ^{137}Cs чернобыльского происхождения: А - панцирь от микрофауны, в котором видны частички CsCl со структурой CsCl (глубина 7,5-10 см); Б — разрушенная в вакууме бактерия, которая накопила в себе CsCl со структурой натрий хлора (одиночная стрелка); (глубина 50-60 см).

В наиболее глубоком из опробованных слоёв – 50 — 65 см, частицы в основном ассоциированы с гидроокислами железа и гумусом. Частицы в основном представлены CsCl со структурой CsCl и, реже, со структурой NaCl. Также выявлены частицы из глобул оксида урана и частицы, в состав которых входит оксид цезия Cs_2O .

Наличие гумуса, а также не разрушенных частиц первичных выпадений на глубине более полуметра свидетельствует об их проникновении туда с поверхности, возможно также за счёт процесса лессиважа – вертикального переноса частиц без разрушения по профилю дерново-подзолистых почв. При проникновении в глубь почвы они концентрируются на гидроксидах железа в песке, образуя хорошо заметные на автордиографиях частицы с активностью ^{137}Cs на порядок больше, чем в частицах из верхних горизонтов.

Таким образом, проведённые исследования позволили достоверно выявить механизмы и закономерности миграции осколочных продуктов деления и трансураниевых элементов в зоне аэрации типичных ландшафтов района исследований. Эти данные послужили основой для создания прогноза дозовой нагрузки на местное население [7].

Литература

1. Бахур А.Е., Зуев Д.М., Стародубов А.В. И др. Комплексные радиоизотопные исследования в зоне долговременного радиоактивного загрязнения Брянской области//Радиоактивность и радиоактивные элементы в среде обитания человека: Материалы II международной конференции,-Томск, 2004 г., С.70-74.
2. Бахур А.Е. Трансураниевые элементы в почвах юго-запада Брянской области/А.Е.Бахур, Г.Н.Лагутин, С.Б.Гоголь и др.//Геологический вестник центральных регионов России.-2001.-№2.- С.34-38.
3. Дубинчук В.Т. О чернобыльских горячих частицах//Геологический вестник центральных регионов

России.-2001.-№2.-С.86-87.

4. *Рогачевская Л. М., Дубинчук В. Т. Применение метода моментов для вычисления факторов задержки радионуклидов в грунтах зоны аэрации по данным радионуклидных профилей. / Геологическое изучение и использование недр: Научн. Техн. Информ. Сб. ЗАО «Геоинформмарк». – М. – 2000. – Вып. 3. – С. 65 – 77.*
5. *Рогачевская Л. М. Крупномасштабная оценка и прогнозирование уязвимости грунтовых вод черновобильским ^{137}Cs в пределах экспериментального полигона на зараженной территории (Брянская область). / Геологический вестник регионов России. – М. – 2001. – № 2 (15). – С. 67 – 73.*
6. *Стародубов А.В. Миграция ^{137}Cs и ^{90}Sr в ландшафтах Брянской области: вероятностно-статистический подход в обработке данных многолетнего мониторинга почв, загрязненных черновобильскими выпадениями./ АНРИ.-2007.-№2 (49), С.49 – 52.*
7. *Стародубов А.В. Оценка и прогнозирование радиационно-экологического состояния природной среды в зоне Чернобыльского загрязнения : на примере Брянской области : автореферат дис. ... кандидата геолого-минералогических наук : 25.00.36., 23 с.*