

ОТНОШЕНИЕ АКТИВНОСТИ $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ В ПОЧВАХ ЗОНЫ ОТЧУЖДЕНИЯ ЧАЭС

А. А. Одинцов, А. А. Ключников

Институт проблем безопасности АЭС НАН Украины, Чернобыль

По данным радиохимических анализов более тысячи проб почвы на содержание радионуклидов плутония изучено распределение отношений активности $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ в почвах зоны отчуждения ЧАЭС. Показано, что отношение активности $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ в почвах 30-километровой зоны в целом постоянно, соответствует расчетным значениям для «среднего» топлива 4-го блока ЧАЭС и составляет на 2005 г. $0,448 \pm 0,004$.

Введение

При определении загрязнения объектов окружающей среды радионуклидами важно знать источник их поступления в экосистемы. Наиболее простой метод определения источника поступления в объекты окружающей среды плутония - это метод, основанный на определении изотопных отношений активности $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ и $^{241}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ [1 - 5]. В настоящее время содержание долгоживущих альфа-излучающих изотопов плутония ^{238}Pu , ^{239}Pu и ^{240}Pu обусловлено поступлением при глобальных выпадениях после испытаний оружейных ядерных зарядов, выбросах на предприятиях ядерного топливного цикла и АЭС, аварии на ЧАЭС [2, 4, 6 - 8]. Отношение активности ^{238}Pu к активности $^{239+240}\text{Pu}$ в почвах, загрязненных в результате глобальных выпадений, хорошо известно и составляет $0,04 \pm 0,02$ [2, 4]. Локальные участки с высокими уровнями загрязнений, образовавшиеся в результате аварий на АЭС и заводах по переработке отработавшего ядерного топлива, характеризуются специфическим радионуклидным составом, характерным для каждого конкретного случая. В настоящее время для определения источника поступления радионуклидов плутония в окружающую среду на территориях, пострадавших в результате аварии на ЧАЭС, используют отношение активности $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ [2].

Как правило, при определении плотностей загрязнения почв изотопами плутония приводят данные по сумме изотопов $^{239+240}\text{Pu}$ или $^{238+239+240}\text{Pu}$ [6]. Данных о содержании ^{238}Pu ($T_{1/2}$ 87,7 лет) в почвах ближней зоны ЧАЭС сравнительно немного. Результаты определения соотношения активности $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$, основанные на анализе небольшого количества проб, имеют значительный разброс значений (от 0,35 до 0,65) и не могут быть использованы при оценке вклада чернобыльских выпадений в загрязнение территорий радионуклидами плутония за пределами зоны отчуждения ЧАЭС.

Целью настоящей работы являлось получение дополнительных данных об отношениях активности $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ в почвах зоны отчуждения ЧАЭС на основе прямых радиохимических анализов.

Экспериментальная часть

С 1989 по 1997 г. проводилось комплексное изучение содержания ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ и ^{241}Am в почвах 30-километровой зоны ЧАЭС [8 - 14]. Пробы почвы отбирались по узлам реперной сети 30-километровой зоны ЧАЭС за исключением точек, попадающих на водоемы (304 участка) [8]; по узлам картографической сетки масштаба 1:100000 (900 участков), что обеспечивает их равномерное распределение на исследуемой территории [9]; по осям основных следов радиоактивных выпадений с шагом 2 - 3 км (77 участков) [13].

Определение содержания радионуклидов ^{238}Pu и $^{239+240}\text{Pu}$ и отношения их активности в пробах почвы производили альфа-спектрометрическими измерениями источников плутония после ионообменного выделения и очистки плутония от мешающих изотопов тория и америция. Источники готовили электроосаждением плутония на диски из полированной нержавеющей стали. Радиохимическая методика и характеристики измерительной аппаратуры

подробно изложены в работах [9 - 11]. В качестве примера на рис. 1 и 2 приведены альфа-спектры источников плутония, выделенного из почвы, отобранной в зоне отчуждения ЧАЭС. При низком содержании ^{238}Pu отношение $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ равно 0,2 (см. рис. 1) и при высоком содержании ^{238}Pu отношение $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ равно 0,56 (см. рис. 2)

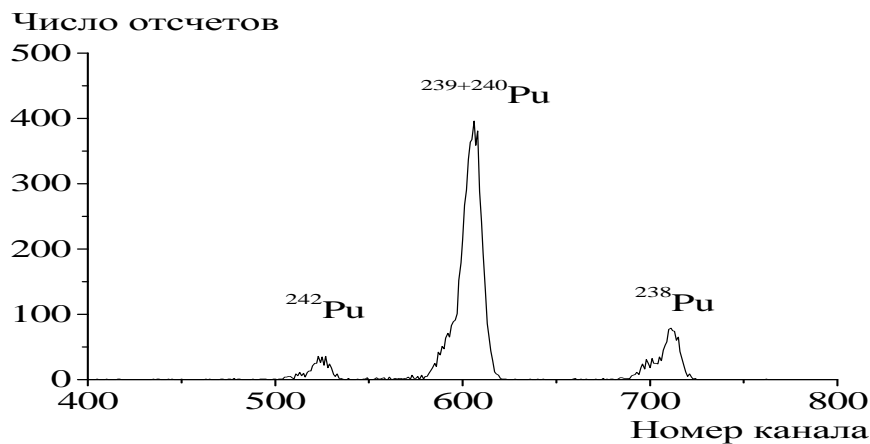


Рис. 1. Альфа-спектр источника плутония с низким содержанием ^{238}Pu (отношение активности $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu} = 0,2$).

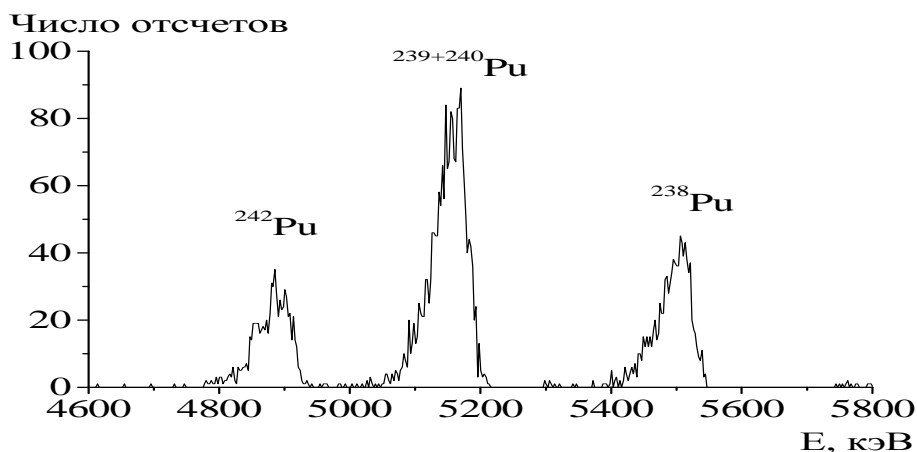


Рис. 2. Альфа-спектр источника плутония с высоким содержанием ^{238}Pu (отношение активности $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu} = 0,56$).

Результаты и обсуждение

Для определения плотности загрязнения почв зоны отчуждения ЧАЭС радионуклидами плутония и америция был проведен радиохимический анализ проб почвы на содержание ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ и ^{241}Am , отобранных на 1280 участках. На основании полученных данных были построены первые карты загрязнения 30-километровой зоны ЧАЭС радионуклидами $^{239+240}\text{Pu}$ и ^{241}Am по результатам прямых радиохимических анализов [13, 14].

В настоящей работе приводится анализ данных о соотношении активности $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ в почвах зоны отчуждения ЧАЭС на обследованных участках. Распределение отношений активности $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ в пробах почвы, отобранных по точкам реперной сети, показано на рис. 3, а. Среднее значение отношения $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ равно $0,515 \pm 0,073$ при нормальном распределении значений разброс составлял $\pm 14\%$ на 1990 г. ($N = 304$).

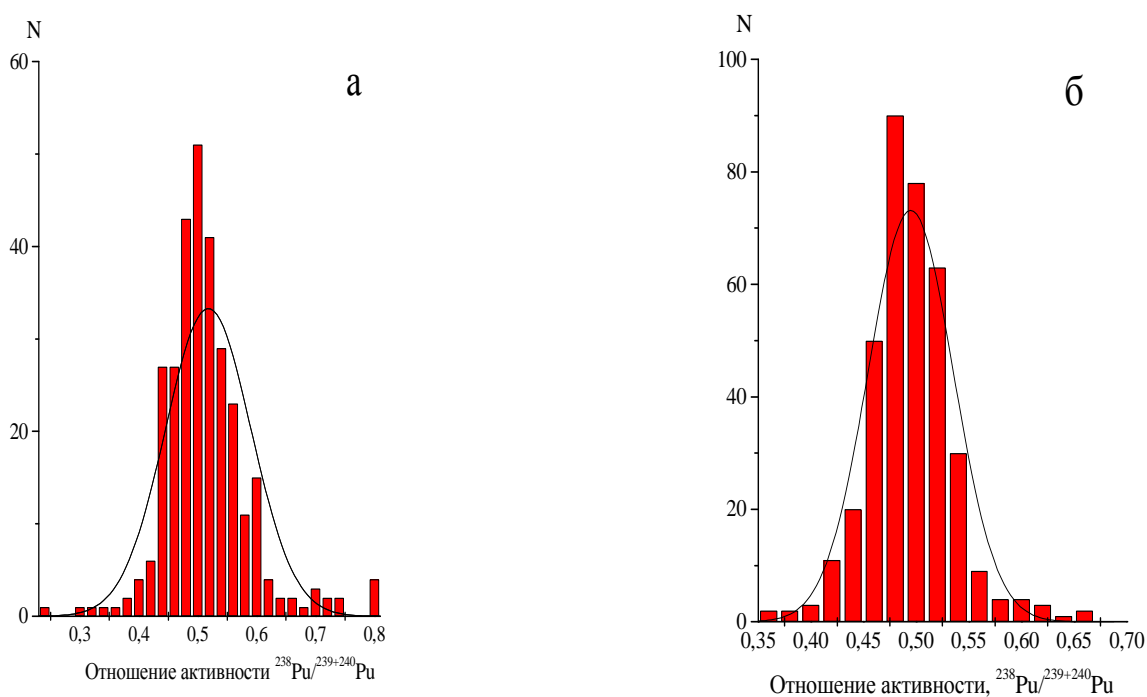


Рис. 3. Гистограмма распределения отношения активности ^{238}Pu к активности $^{239+240}\text{Pu}$ в почвах зоны отчуждения на 1990 г. (а) и 1992 г. (б).

Распределение отношений активности $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ в пробах почвы, отобранных по регулярной сетке, показано на рис. 3, б. Среднее значение этого отношения равно $0,495 \pm 0,041$ ($\pm 8,3\%$) на 1992 г. ($N = 372$).

Для проб, отобранных по основным следам радиоактивных выпадений - западному, северо-западному, юго-западному, южному и северо-восточному - отношение активности $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ в среднем составляло $0,476 \pm 0,033$ ($\pm 6,9\%$) на 1996 г. (распределение отношений показано на рис. 4). Следует отметить, что отношение $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ имеет характерное значение для каждого следа выпадений.

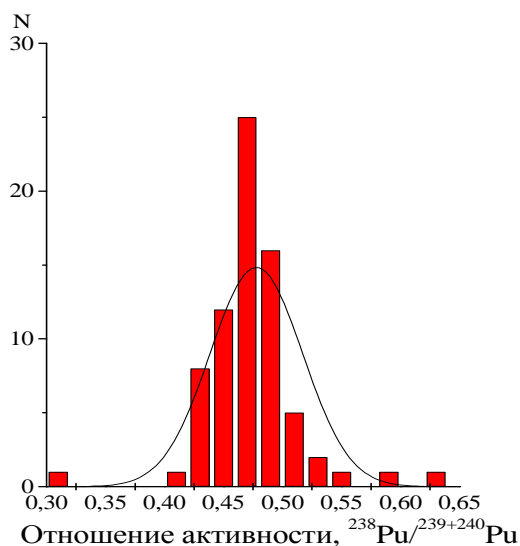


Рис. 4. Гистограмма распределения отношения активности ^{238}Pu к активности $^{239+240}\text{Pu}$ в почвах зоны отчуждения по основным следам радиоактивных выпадений на 1996 г.

Сравнение данных, представленных на рис. 3 и 4, показывает, что с увеличением времени после аварии на ЧАЭС (26.04.86) от четырех до 10 лет происходит некоторое сужение границ разброса значений отношения активности $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ от 14 до 7 %. Это можно объяснить растворением топливных частиц в почве и уменьшением вклада крупных «горячих» частиц в формирование радионуклидного спектра в отбираемых на радиохимический анализ навесок почвы.

В настоящее время существует ряд работ, посвященных расчету наработки радионуклидов в реакторе 4-го блока ЧАЭС за время его штатной работы. На основании данных по накоплению в облученном топливе 4-го блока ЧАЭС ^{238}Pu - $6,8 \cdot 10^6$ и ^{242}Cm $1,9 \cdot 10^8$ Бк/г U [15] можно рассчитать динамику изменения содержания ^{238}Pu в топливе и выпадениях в зоне отчуждения ЧАЭС. Результаты расчета на 100 лет представлены на рис. 5.

Изменение отношения активности $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ в почвах зоны отчуждения ЧАЭС в зависимости от времени, прошедшего после аварии на ЧАЭС (с учетом накопления ^{238}Pu при распаде ^{242}Cm), показано на рис. 6. Кривая 1 - расчет по исходным данным накопления ^{238}Pu - $6,8 \cdot 10^6$ Бк/г U, $^{239+240}\text{Pu}$ $13,2 \cdot 10^6$ Бк/г U и ^{242}Cm $1,9 \cdot 10^8$ Бк/г U [15], отдельные точки 2 - экспериментально определенные значения в настоящей работе. Как видно на рис. 6, экспериментально определенные значения меньше расчетных. Это свидетельствует о том, что радиоактивные выпадения топливной компоненты в зоне отчуждения ЧАЭС имеют меньшее выгорание, чем расчетная величина для “среднего” топлива реактора 4-го блока ЧАЭС.

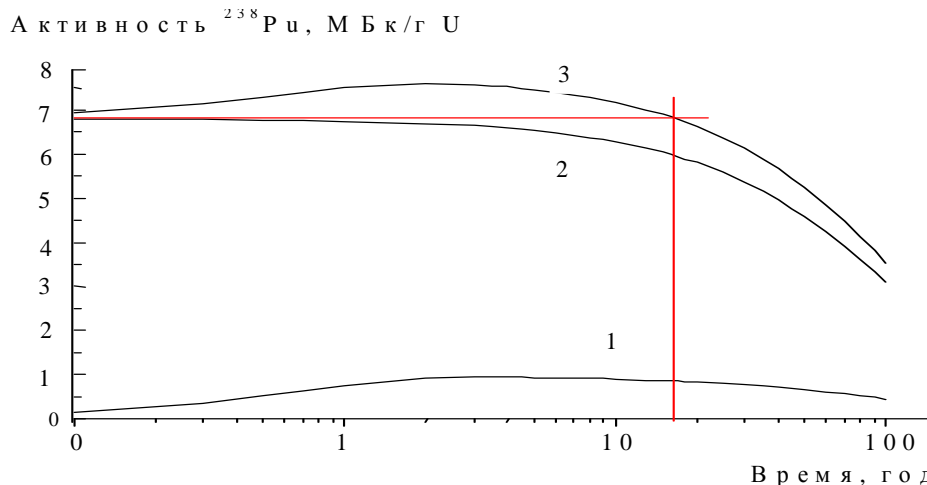


Рис. 5. Динамика изменения содержания ^{238}Pu в чернобыльских выпадениях: 1 - накопление ^{238}Pu при распаде ^{242}Cm ; 2 - распад ^{238}Pu , наработанного в топливе 4-го блока ЧАЭС к моменту аварии; 3 - суммарное изменение содержания ^{238}Pu в чернобыльских выпадениях.

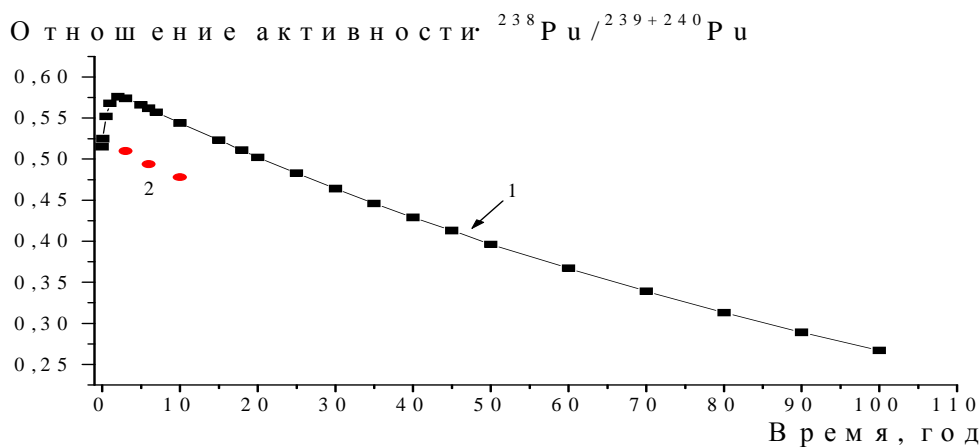


Рис. 6. Изменение отношения активности $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ в почве 30-километровой зоны ЧАЭС в зависимости от времени прошедшего после аварии на ЧАЭС: 1 - расчет по наработке ^{238}Pu и $^{239+240}\text{Pu}$ [15]; 2 - экспериментально определенные значения на 1990, 1992 и 1996 гг.

Поле распределения отношений активностей $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ в почве 30-километровой зоны ЧАЭС, отобранной по точкам реперной сети (шаг отбора 10^0 и расстояние от ЧАЭС 5, 6, 7, 8,3, 10, 12, 14,5, 17, 20, 25, 30 км), показано на рис. 7.

Как видно на рис. 7, отношение активности $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ изменяется в широком диапазоне от 0,3 до 0,7. При увеличении расстояния от ЧАЭС для отдельных следов радиоактивных выпадений отношение $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ увеличивается.

Соотношение между плотностью загрязнения почв зоны отчуждения ЧАЭС по основным следам радиоактивных выпадений радионуклидами ^{238}Pu и $^{239+240}\text{Pu}$ на 1996 г. показано на рис. 8.

Рис. 7. Поле распределения отношений активности $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ в почвах 30-километровой зоны ЧАЭС.

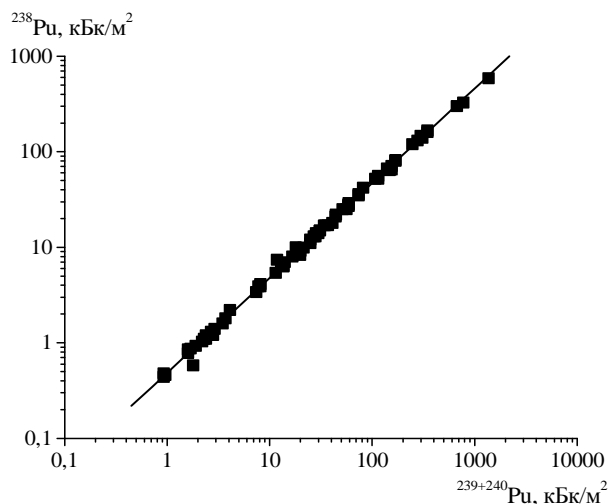


Рис.8. Соотношение между плотностью загрязнения почвы зоны отчуждения ЧАЭС ^{238}Pu и $^{239+240}\text{Pu}$.

Как следует из рис. 8, зависимость плотности загрязнения ^{238}Pu от плотности загрязнения $^{239+240}\text{Pu}$ хорошо описывается линейным уравнением регрессии $Y = 1,93 + 0,435X$ (коэффициент парной корреляции $R = 0,999$). Плотности загрязнения почв зоны отчуждения ^{238}Pu и $^{239+240}\text{Pu}$ в зависимости от расстояния от ЧАЭС и направления выброса изменяются от 0,4 до 700 и от 0,8 до 1400 кБк/м² соответственно.

В таблице приведен расчет отношения активности $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ в почвах зоны отчуждения ЧАЭС на 2005 г. на основании полученных данных в настоящей работе и работе [7]. В работе [7] определено, что в почвах 30-километровой зоны ЧАЭС отношение плотности загрязнения $^{239+240}\text{Pu}$ к ^{238}Pu на 1 января 2000 г. составляло $2,14 \pm 0,04$.

Отношение активности $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ в почвах 30-километровой зоны ЧАЭС, отн. ед.

Время измерений	Отношение $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$	Расчет на 2005 г.
1990	$0,515 \pm 0,073$	0,453
1992	$0,495 \pm 0,041$	0,447
1996	$0,476 \pm 0,033$	0,443
2000 [7]	$0,467 \pm 0,009$	0,449
Среднее		0,448

Как следует из таблицы, экспериментальные данные, полученные в настоящей работе, хорошо согласуются с данными работы [7], которые были получены в более позднее время. Исходя из экспериментальных данных, полученных в настоящей работе, рассчитано отношение активности $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ в почвах 30-километровой зоны ЧАЭС на 2005 г., которое равно $0,448 \pm 0,004$.

Полученные экспериментальные данные могут быть использованы для расчета отношения $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ в почвах 30-километровой зоны ЧАЭС на любой момент времени, а также для оценки вклада чернобыльских выпадений в загрязнение территорий, пострадавших в результате аварии на ЧАЭС за пределами зоны отчуждения ЧАЭС, где загрязнение почв плутонием обусловлено суперпозицией глобальных и чернобыльских радиоактивных выпадений. При радиационном мониторинге территорий вблизи АЭС, для оценки выбросов радионуклидов плутония в окружающую среду, необходимо производить определение изотопного состава плутония как в почве, так и в аэрозольных выбросах.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Holm E., Rioseco J., Pettersson H.* Fallout of transuranium elements following the Chernobyl accident // J. Radioanal. Nucl. Chem. Art. – 1992. – Vol. 156, No1. – P. 183 – 200.
2. *Holm E.* Plutonium in the Baltic Sea // Appl. Radiat. Isot. – 1995. – Vol. 46, No 11. – P. 1225 – 1229.
3. *Беляев Б.Н., Гаврилов В.М., Домкин В.Д. и др.* Изотопный состав плутония в почве и возможности идентификации источников загрязнения // Атомная энергия. – 1997. – Т. 83, № 4. – С.298 - 303.
4. *Степанов А.В., Цветков О.С., Тишков В.П. и др.* Изотопный состав плутония в донных осадках норвежского и гренландского морей и идентификация источников загрязнения // Атомная энергия. – 1999. - Т. 87, № 4. – С. 286 - 294.
5. *Беляев Б.Н., Домкин В. Д., Иванова Л. М. и др.* Изотопный состав и плотность отложений плутония в почвах в окрестностях Санкт-Петербурга // Радиохимия. – 2001. – Т. 43, № 2. – С. 184 – 187.
6. *Лебедев И.А., Мясоедов Б.Ф., Павлоцкая Ф. И., Френкель В.Я.* Содержание плутония в почвах европейской части страны после аварии на Чернобыльской АЭС // Атомная энергия. – 1992. – Т. 72, № 6. – С. 593 - 599.
7. *Кашипаров В. О., Лундін С. М., Зварич С. І. та др.* Викид та забруднення території радіонуклідами у складі паливних часток // Бюлетень екологічного стану зони відчуження та зони безумовного (обов'язкового) відселення. - 2002. - № 2 (20). - С. 22 – 32.
8. *Левшин Е.Б., Базавов Д. А., Агеев В. А. и др.* Уточнение ареала распределения изолиний ПДУ, радионуклидов плутония и стронция-90 вокруг ЧАЭС: (Отчет) / ИЯИ АН Украины, ГР № 02900049852. - Киев, 1990. – 90 с.
9. *Агеев В.А., Выричек С.Л., Левшин Е.Б. и др.* Распределение трансураниевых элементов в 30-километровой зоне ЧАЭС // Докл. НАН Украины. - 1994. - № 1. - С. 60 - 66.
10. *Агеев В.А., Выричек С.Л., Одинцов А.А.* Определение плотности загрязнения почв 30-километровой зоны ЧАЭС плутонием-241 // Ядерная и радиационная безопасность. - 1999. - Т. 2, вып. 2. - С. 28 - 41.
11. *Лашко А.П., Лашко Т.Н., Одинцов А.А., Хоменков В.П.* Изотопный состав плутония в почвах зоны отчуждения // Атомная энергия. – 2001.- Т. 91, № 6. – С. 443 - 448.
12. *Агеев В.А., Ключников А.А., Одинцов А.А. и др.* Способ определения содержания плутония, продуктов деления урана и трансураниевых элементов в объектах окружающей среды: А.с. SU 1701047. МКІ G21G4/04.
13. *Агеев В.А., Выричек С.Л., Гайдар А.В. и др.* Загрязнение территории зоны отчуждения ЧАЭС основными долгоживущими радионуклидами // Объект Укрытие - 10 лет. Основные результаты научных исследований. – Чернобыль, 1996. - С. 140 - 147.
14. *Левшин Е.Б., Агеев В.А., Гайдар А.В. и др.* Трансураниевые элементы в зоне отчуждения // Бюлетень екологічного стану зони відчуження та зони безумовного (обов'язкового) відселення. - 1999. - № 13. - С. 57 - 59.
15. *Герасько В.Н., Ключников А.А., Корнеев А.А. и др.* Объект “Укрытие”. История, состояние и перспектива – К.: Интерграфик, 1997. - 224 с.

Поступила в редакцию 23.03.05,
после доработки – 04.04.05.

19 7 ВІДНОШЕННЯ АКТИВНОСТІ $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ В ҐРУНТАХ ЗОНИ ВІДЧУЖЕННЯ ЧАЕС

О. О. Одінцов, О. О. Ключников

За даними радіохімічних аналізів зразків ґрунту (понад тисячу) на вміст радіонуклідів плутонію вивчено розподіл відношень активності $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ в ґрунтах зони відчуження ЧАЕС. Показано, що відношення активності $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ в ґрунтах 30-кілометрової зони в цілому постійно й відповідає розрахунковим значенням для «середнього» палива 4-го блока ЧАЕС і складає на 2005 р. $0,448 \pm 0,004$.

19 7 RATIO $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ IN SOILS OF CHERNOBYL NPP EXLUZIV ZONE

О. О. Odintsov, O. O. Klyuchnykov

On data's of chemical analyses more than thousand tests of ground on the contents of radionuclides of plutonium the allocation of the relations of activity $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ in soils of exclusive zone ChNPP is investigated. Is shown, that the relation of activity $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ in soils of a 30-kilometer area as a whole constantly and corresponds to design values for "average" fuel of 4-th block ChNPP and makes on 2005 $0,448 \pm 0,004$.

