

РОМАНЧУК Л.Д., д-р с.-г. наук

E-mail: LRomanchuk@rambler.ru

Житомирський національний агроекологічний університет

ОСОБЛИВОСТІ НАКОПИЧЕННЯ ^{127}I ТА ^{129}I , ЇХ МІГРАЦІЯ В ГЛИБОКИХ ПРОФІЛЯХ ҐРУНТУ ПОЛІССЯ УКРАЇНИ

Викладені результати досліджень на вміст ^{127}I та ^{129}I у ґрунтах на різних територіях Українського Полісся та їх міграція в ґрунтових профілях. Встановлено, що концентрація ^{127}I становила від 0,42 до 8,0 мг/кг і найвищий його вміст був у верхньому 0-20-сантиметровому шарі. Різниця його концентрації в профілі ґрунту варіює в широких межах ~ 10 разів.

Ключові слова : ^{127}I , ^{129}I , ґрунт, радіонукліди, ґрунтові профілі.

Постановка проблеми та аналіз останніх досліджень і публікацій. Йод (від грец. Iodes – фіолетовий) відкритий у 1811 році Б. Куртуа (Париж, Франція). Йод – твердий чорний неметал, з блиском. Атомний номер 53, відносна атомна маса – 126,90447; поширений у природі майже повсюди, переважно у вигляді йодистих солей натрію, кальцію, магнію, але розсіяно. Вміст в організмі людини (маса тіла 70 кг) становить 12-20 мг. Природний йод складається з одного стабільного ізотопу ^{127}I . Радіоактивні ізотопи з масовими числами 115-126 і 128-141.

Аналіз ^{129}I у зразках з навколишнього середовища, зокрема в ґрунтах, дає можливість провести ретроспективну дозиметрію опромінення, викликаного короткоживучими ізотопами йоду, такими як ^{131}I , через довгий час після того, як радіонукліди були викинуті в навколишнє середовище внаслідок різного роду аварій. Існує декілька вимог щодо того, як можна провести ретроспективну дозиметрію ^{129}I , який потрапив у навколишнє середовище в результаті аварії. Він не повинен був зникнути з аналізованих ґрунтових горизонтів через міграцію в більш глибокі шари ґрунту, і його слід відрізнити від радіоактивних опадів, які потенційно мали місце до аварії [6,7].

Метою досліджень було вивчити поведінку в навколишньому середовищі різних радіонуклідів, які потрапили туди внаслідок Чорнобильської аварії, а також дослідити рівень радіаційного опромінення мешканців сильно забруднених районів в Північній Україні і можливість використання ^{129}I як індикатора для визначення рівня випадіння ^{131}I після Чорнобильської аварії [1,2,8].

Довгоживучий радіонуклід ^{129}I ($T_{1/2}=15,7$ Ма, $E_{\beta\text{max}}=0,2$ MeV, $E_{\gamma}=39,58$ keV, $I_{\gamma}=0,0752$) утворюється в природі завдяки індукованому космічному випромінюванню розпаду ксенону в атмосфері та спонтанному розщепленню у геосфері. Встановлено, що загальна природна кількість ^{129}I в літосфері складає 50000 кг (327 ТБк) [238]. Встановлено також, що з цієї кількості лише 263 кг (1,7 ТБк) знаходяться у вільному стані в атмосфері, гідросфері та біосфері, змішуючись зі стабільним ^{127}I [4,6]. Природні кількості ^{129}I повсюди та постійно змінювались через викиди його в навколишнє середовище в результаті антропогенної діяльності. ^{129}I антропогенного походження утворюється, в першу чергу, як результат розщеплення ^{235}U та ^{239}Pu з ізобаричними потужностями розщеплення, індукованого термальними нейтронами 0,68 % і 1,6 % відповідно. Йод утворюється при термальному розщепленні ^{235}U з ізотопними співвідношеннями $^{131}\text{I}/^{129}\text{I}$ $i=3,82$ та $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$, що $=6,06$ [4,5].

Було підраховано, що кількість ^{129}I , який потрапив у навколишнє середовище внаслідок вибухів ядерної зброї, коливається між 43 кг (0,28 ТБк) та 150 кг (0,98 ТБк) [236, 243, 253]. А. Шмідт та ін. [335] в 1998 р. встановили, що внаслідок Чорнобильської аварії у навколишнє середовище потрапило менше 2 кг (0,013 ТБк) ^{129}I . Більша кількість ^{129}I антропогенного походження в доквітлі пояснюється викидами переробних заводів. Наприклад, близько 3500 кг (23 ТБк) ^{129}I було випущено у навколишнє середовище переробними заводами Європи до 2000 р., 70 % з цієї кількості припадає на переробний завод в Гаазі [6,7,8]. Із всієї кількості ^{129}I , що потрапив у навколишнє середовище з Гаазького заводу, 97 % припадає на рідкі викиди. Для порівняння: на Селлафільдському заводі рідких викидів було 85 %. Велика кількість антропогенного ^{129}I все ще знаходиться у відпрацьованому ядерному паливі. Як підраховано, в 1990 р. його було 5660 кг (37 ТБк) [3]. Відомі факти викидів у навколишнє середовище на

американських військових переробних заводах [309, 310], практично не існує жодних публікацій про аналогічні заводи в колишньому СРСР та інших східних країнах.

Антропогенний ^{129}I потрапляє в кругообіг йоду в навколишньому середовищі та змінює природні ізотопні кількості йоду. Природні співвідношення $^{129}\text{I} / ^{127}\text{I}$, у океанічному шарі, що змішується, були змінені у всьому світі на 2 порядки, приблизно $1,5 \times 10^{-12}$ [4,7], близько до 10^{-10} в регіонах, віддалених від місць, де траплялись ці викиди, та на цілі порядки в сторону збільшення в районах, близьких до джерел викидів. І хоча ці зміни мають безпосереднє відношення до радіоекології лише в регіонах, що розташовані в безпосередній близькості до переробних заводів, їх слід ретельно моніторити, а потенціал ^{129}I як антропогенного ізотопного маркера процесів, що відбуваються в навколишньому середовищі, повинен бути використаний повністю. Це потребує детального розуміння базових значень доатомної ери, антропогенних змін, радіоекології ^{129}I та інваеронментальної хімії йоду. І все ж, радіоекологія ^{129}I все ще недостатньо зрозуміла через аналітичні і методологічні проблеми [6,7].

Матеріали та методика досліджень. Для дослідження концентрації ^{127}I та ^{129}I були відібрані та досліджені ґрунти із різних горизонтів Північної України. Ділянки, де проводився відбір зразків, охоплюють райони, які постраждали від випадіння радіоактивних речовин під час Чорнобильської аварії – це сильно забруднені території Народницького та Коростенського районів. Ділянки де проводили відбори проб в Коростенському районі зі щільністю випадіння ^{137}Cs між 185-555 кБк/м² (5-15 Кі/км²); ділянки у Народницькому районі з щільністю випадіння ^{137}Cs між 555-1480 кБк/м² (> 15 Кі/км²).

Зразки ґрунту відбирали на ділянках площею 1×1 м методом «конверту» відповідно до загальноприйнятої методики. На кожній ділянці було відібрано по 7 зразків ґрунту, взятих з території площею в 4 км². Для того щоб взяти ґрунтові профілі, вибирали ґрунтово-перегнійні кубики розміром 20 × 20 см. Зразки відбирали на глибину 45 см з поверхневою площею 1 × 1 м, залишивши ґрунтові колонки розміром 20 × 20 по кутках. Ці колонки поділили на секції з інтервалом в 1 см у верхньому 5-см шарі, потім розбили на 5-см сегменти на глибину до 25 см, а кінцева секція – до глибини 40 см.

Активність ^{127}I та ^{129}I в ґрунтах визначали за допомогою радіохімічного аналізу нейтронної активації та іонної хроматографії в центрі радіаційного захисту та радіоекології Ганноверського університету (Німеччина). Загальні значення повних аналізів ^{129}I були встановлені за допомогою йоду Вудварда, який використовувався як уловлювач мікроелементів.

Дослідження проводили на базі науково-дослідного інституту регіональних екологічних проблем Житомирського національного агроєкологічного університету та центру радіаційного захисту та радіоекології Ганноверського університету (Німеччина).

Результати досліджень та їх обговорення. Для визначення вмісту ^{127}I і ^{129}I на різних глибинах у міру зростання, підраховують за рівнянням в одиницях, г/м² та мБк/м² (1):

$$A_f(d_{\max}, d_{\min}) = \int_{d_{\max}}^{d_{\min}} C(d)p(d)dd, \quad (1)$$

де $d_{\max} = 40$ см – максимальна глибина відбору проб зразка;

d_{\min} – глибина верхнього шару секції, де проводиться відбір, питома радіоактивність або концентрація маси на глибині d ^{129}I і ^{127}I відповідно та $p(d)$ – щільність всієї маси сухого ґрунту на глибині d .

Нашими дослідженнями встановлено, що концентрація ^{127}I в ґрунтах Народницького та Коростенського районів варіювала в межах від 0,42 до 8,0 мг/кг (рис. 1).

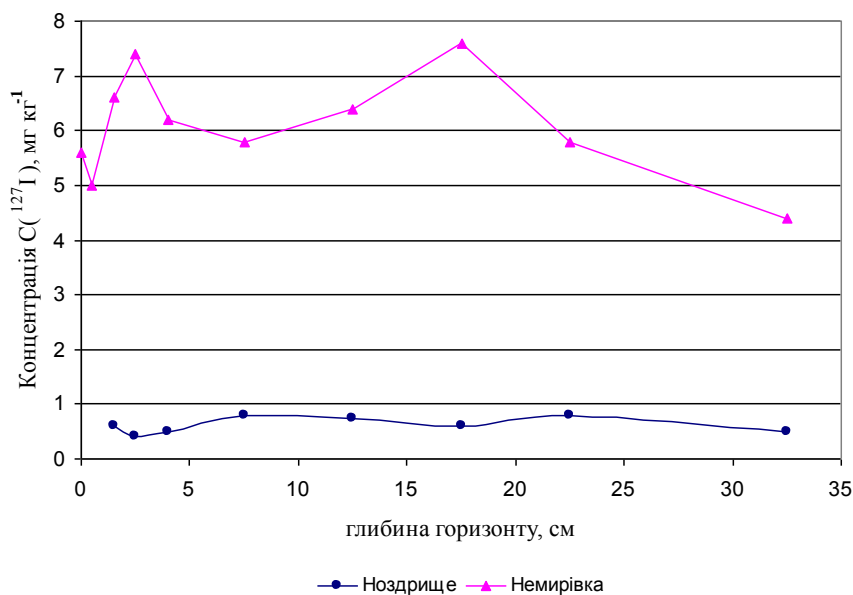


Рис. 1. Концентрація ^{127}I в ґрунті с. Ноздрище Народницького р-ну та с. Немирівка Коростенського р-ну по глибині горизонту.

Концентрація ^{127}I в ґрунті с. Ноздрище була в межах 0,42 мг/кг і по профілю ґрунту його концентрація майже не змінювалась. У с. Немирівка концентрація ^{127}I у верхньому шарі ґрунту сягала майже до 8,0 мг/кг і на глибині 30 см була 4,2 мг/кг.

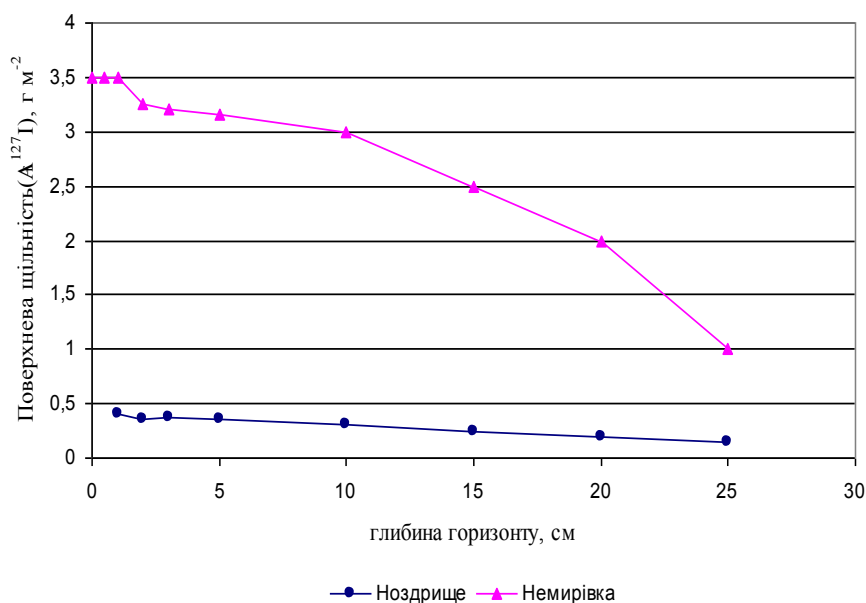


Рис. 2. Поверхнева щільність ^{127}I в ґрунтах с. Ноздрище Народницького р-ну та с. Немирівка Коростенського р-ну по глибині горизонту.

За умов, що всі радіонукліди містяться у профілях ґрунту на глибині $d_{\max}=40$ см, то їх загальний рівень D підраховуємо за формулою (2):

$$D \approx A_F(d_{\max}, 0) = \int_{d_{\max}}^0 C(d)p(d)$$

Залежність вмісту ^{127}I від глибини ґрунтового профілю, по мірі зростання, показано на рисунку 3. Різниця в його концентрації в профілі ґрунту варіює в широких межах ~ 10 разів. Це здається досить неймовірним. Різні концентрації йоду в повітрі та опадах можна очікувати тільки на дуже великих ділянках суші (материках і т.д.). Таким чином, виявлену таку велику різницю можна пояснити тільки різними властивостями ґрунту та гідрологічними умовами. Низька концентрація ^{127}I та, внаслідок цього, низький загальний рівень радіоактивності вказують на значні втрати природного йоду протягом часу перебування в атмосфері. Висока концентрація ^{127}I та високий загальний рівень радіоактивності, вказують на знижену, але все ще неможливу для підрахунку втрату йоду. Отже, по йоду краще підраховувати реальну інтегральну щільність випадіння стабільного йоду. Високий загальний рівень радіоактивності вказує на меншу міграцію на глибину і на більш ефективну сорбцію або акумуляцію у певному ґрунті, низький рівень – на більшу міграцію і менш активну сорбцію або акумуляцію.

Як наслідок різних процесів переміщення, задіяних у міграції йоду в ґрунтах, припускається, що довготривалі випадіння в осадах ^{127}I призводять до зменшення рівня його вмісту на різних глибинах у міру зростання глибини ґрунту. Рівень радіоактивності ^{127}I на різних глибинах погано узгоджується з очікуваними даними (рис. 3). Рівень ^{127}I значно зменшується з рівнем глибини по ґрунтовому профілю між 19 і 24 см. Загальний рівень ^{127}I коливається від 0,39 до 3,4 г/м². Його рівень на різних глибинах зменшується майже втричі, в цілому по глибинних профілях. Після такого висновку постає дуже важливе питання: чи є зони з водоненасиченим ґрунтом надійним сховищем для ^{129}I з метою ретроспективної дозиметрії ^{131}I .

Вміст ^{129}I в ґрунтах. Оскільки вміст ^{129}I в зразках з навколишнього середовища, зокрема в ґрунтах, дає можливість провести ретроспективну дозиметрію радіоактивного опромінювання, викликаного короткоживучими ізотопами йоду, такими як ^{131}I , через тривалий час після того, як радіонукліди були викинуті в навколишнє середовище внаслідок різного роду аварій, то наші дослідження присвячені саме визначенню вмісту ^{129}I та міграції його в ґрунтах Північної України, яка постраждала внаслідок аварії на Чорнобильській АЕС (рис. 3-5).

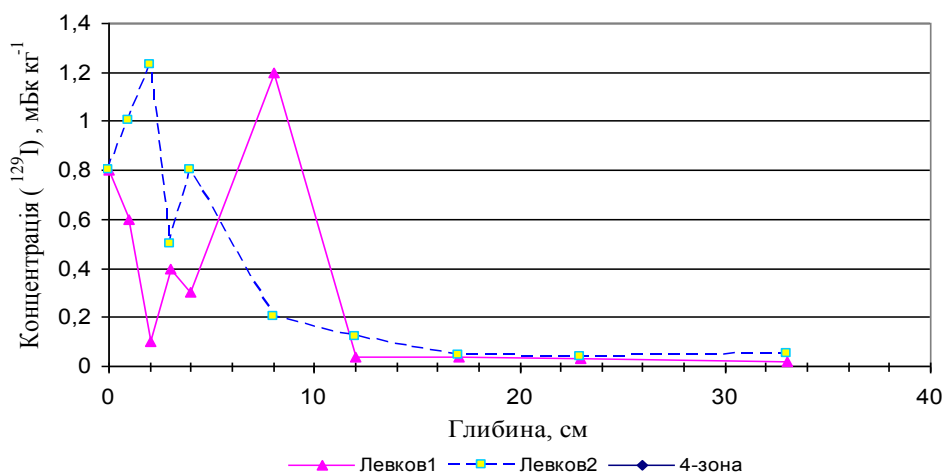


Рис. 3. Питомі радіоактивності ^{129}I у глибинних профілях населених пунктів Житомирського району.

Встановлено, що питома радіоактивність ^{129}I у глибинних профілях охоплює майже 4 рівні величини, коливаючись у широких межах.

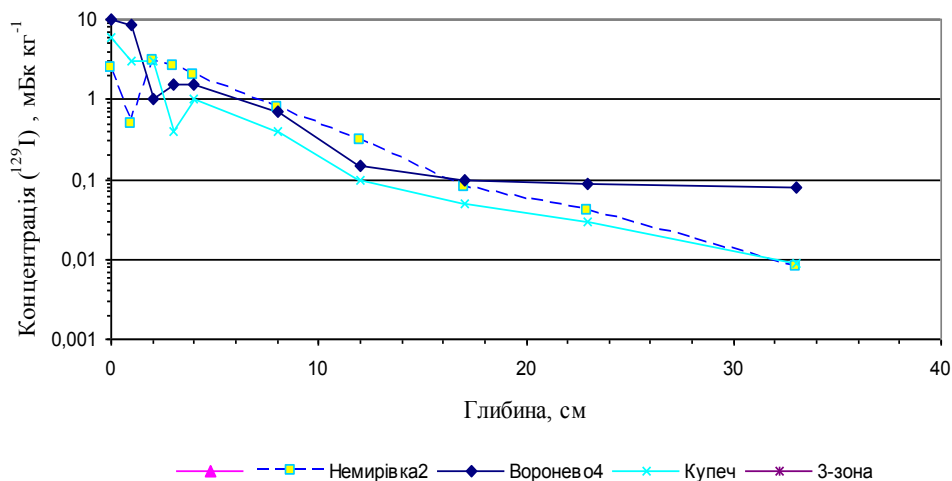


Рис. 4. Питома радіоактивність ^{129}I у глибинних профілях населених пунктів Коростенського району.

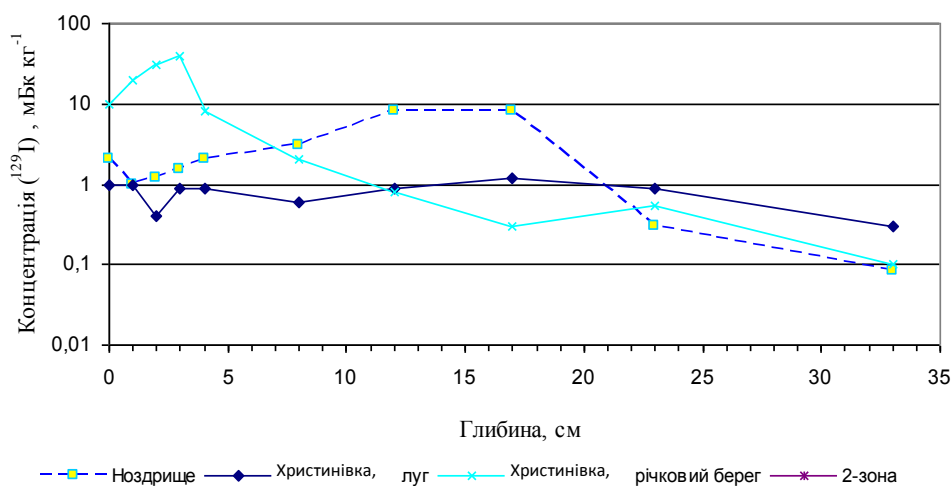


Рис. 5. Питома радіоактивність ^{129}I у глибинних профілях населених пунктів Народицького району.

Залежність питомої радіоактивності ^{129}I від глибини ґрунтового профілю на територіях з різними щільностями забруднення показано на рис. 3-5. На територіях, які були не значно забруднені Чорнобильськими опадами, вона варіює від ~ 1 мБк/кг на поверхні ґрунту до $\sim 0,01$ мБк/кг⁻¹ в найнижчому шарі. Питома радіоактивність ^{129}I зменшується майже рівномірно і постійно. Профіль з с. Вороневе показав, що питома активність становила від 10 до 0,1 мБк/кг, а з населених пунктів Немирівки, Купеч та Чернянки – від 1 до 0,01 мБк/кг.

Профілі з сіл Ноздрище та Христинівки, які розташовані у 2-ій зоні, значно відрізняються від інших. Профіль з берега річки Уж у с. Христинівці показує, що вміст ^{129}I був максимальним – 24,5 мБк/кг у шарі 2–3 см, потім йде рівномірне зменшення до 0,1 мБк/кг. У профілі на луках у с. Христинівці загальний рівень питомої радіоактивності ^{129}I відносно низький (1,1-0,2 мБк/кг).

Висновки. 1. Різниця між загальним рівнем радіоактивності у ґрунтах Полісся України показує, що значна кількість природного йоду, яка існувала протягом тисячоліть, проникла у різних місцевостях у більш глибокі, насичені водою, ґрунтові зони завдяки індивідуальним властивостям ґрунту, гідрологічним умовам та гідродинамічній дисперсії.

2. Вміст стабільного ізотопу ^{127}I в ґрунтах Народицького району коливається в межах від 0,42 до 0,78 мг/кг і по всій глибині ґрунтового профілю майже не змінюється. В ґрунтах Коростенського району цей показник становив близько 8,0 мг/кг і на глибині 30 см його концентрація зменшилась удвічі.

3. Після незначного віддалення від поверхні, дані по ^{129}I показують максимум на глибині від 10 до 30 см. Питома радіоактивність змінюється на 1 порядок величини по усьому профілю, у той час, як в інших профілях питома радіоактивність знижується на 2 порядки.

СПИСОК ЛІТЕРАТУРИ

1. Application of ^{129}I as indicator for the reconstruction of the ^{131}I content in human thyroid glands as a consequence of the Chernobyl accident / V. Mironov, V. Kudriaschov, M. Drugatschenok [et al.]. – Minsk: Belarussian Academy of Science, Institute for Radiobiology, 1999.
2. Priester B.S. Actual problems of food-production under the conditions of the radioactive contamination of the Ukrainian Territory / B.S. Priester // Problems of agricultural radioecology / ed. N.A. Lostchilov. – Kiev: Ukrainian Institute for Scientific, Technical and Economic Information and Ukrainian Research Institute for Agricultural Radiology, 1992. – P. 71-88.
3. Randa Z. Mushrooms — significant source of internal contamination by radiocaesium / Z. Randa, J. Benada ; ed. G. Desmet [et al.]. —London, New York: Elsevier Applied Science, 1990. — P. 202–209.
4. Rao U. Sources and reservoirs of anthropogenic Iodine-129 in western New York / U. Rao, U. Fehn // Geochim Cosmochim Acta. – 1999. – 63. – P. 1927-38.
5. Roberts M.L. ^{129}I interlaboratory comparison / M.L. Roberts, M.W. Caffee, I.D. Proctor // Nucl Instrum Methods Phys Res. – 1997. – B. 123. – P. 367-70.
6. RNAA and AMS of iodine-129 in environmental materials — comparison of analytical methods and quality assurance / S. Szidat, A. Schmidt, J. Handl, D. Jakob, R. Michel, H-A. Synal et al. // Kerntechnik. – 2000. – 65. – P. 160-7.
7. Analysis of iodine-129 in environmental materials: quality assurance and applications / S. Szidat, A. Schmidt, J. Handl, D. Jakob, R. Michel, H-A. Synal et al. // J Radioanal Chem. – 2000. – 244. – P. 45-50.
8. Szidat S. 2000. Iod-129: Probenvorbereitung, Qualitätssicherung und Analyse von Umweltmaterialien. PhD thesis, Univ. of Hanover 2000 [Electronic resource]. – Available at: <http://edok01.tib.uni-hannover.de/edoks/e002/3221721 IX.pdf>.

Особенности накопления ^{127}I и ^{129}I , их миграция в глубоких профилях ґрунта Полесья Украины

Л.Д. Романчук

Представлены результаты исследований содержания ^{127}I и ^{129}I в почвах на разных территориях Украинского Полесья и их миграция в почвенном профиле. Установлено, что концентрация ^{127}I составляла от 0,42 до 8,0 мг/кг и высокое его содержание было в верхнем 0-20-см слое. Разница его концентрации в профиле почвы варьирует в широких пределах ~ 10 раз.

Ключевые слова: ^{127}I , ^{129}I , почва, радионуклиды, почвенные профили.

The peculiarities of ^{127}I and ^{129}I accumulation and migration in deep soil profiles of Ukrainian Polissya

L. Romanchuk

The paper present the results of the investigation into the content of ^{127}I and ^{129}I in soil on various territories of Ukrainian Polissya and their migration in soil profiles. It has been established that ^{127}I concentration varies from 0.72 to 8.0 mg/kg and its highest content was in the upper 0-20 sm layer. The difference in its concentration in the soil profile varies within broad boundaries – 10 times.

Keywords: ^{127}I , ^{129}I , soil, radionuclides, soil profiles.