

# Изучение ассоциации $^{90}\text{Sr}$ , $^{137}\text{Cs}$ , $^{239+240}\text{Pu}$ , $^{241}\text{Am}$ и $^{244}\text{Cm}$ с почвенным поглощающим комплексом почв, типичных для ближней зоны Чернобыльской АЭС

© А. А. Одинцов\*, А. Д. Саженюк\*\*, В. А. Сацюк\*\*

\* ГСП «Техноцентр», Чернобыль

\*\* Институт ядерных исследований НАНУ, Киев

Получено 17.12.2002

УДК 621.039

Методом последовательных экстракций изучена ассоциация основных долгоживущих радионуклидов  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$  и  $^{244}\text{Cm}$  с различными компонентами поглощающего почвенного комплекса в почвах ближней зоны ЧАЭС на западном, северо-западном и северном следах радиоактивных выпадений. Показано, что в песчаных почвах поймы р. Припять на северо-западном следе выпадений более 85%  $^{90}\text{Sr}$ , 55%  $^{239+240}\text{Pu}$ , 75%  $^{241}\text{Am}$  и  $^{244}\text{Cm}$  связано с различными компонентами поглощающего почвенного комплекса и находится в потенциально мобильных формах. На узком западном следе выпадений 80–85% активности радионуклидов  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$  и  $^{244}\text{Cm}$  находится в составе топливных «горячих» частиц. Степень ассоциации радионуклидов  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$  и  $^{244}\text{Cm}$  с различными компонентами поглощающего почвенного комплекса в основном зависит от физико-химических свойств радионуклидов и почв.

Радиоактивное загрязнение почв ближней зоны Чернобыльской АЭС (ЧАЭС) продуктами деления урана (ПДУ) и трансурановыми элементами (ТУЭ) обусловлено их выпадениями в составе диспергированного ядерного топлива 4-го блока ЧАЭС. Согласно работе [1], выброс формировался в течение 9 сут в процессе горения графита, окисления поврежденного топлива и выноса радиоактивных продуктов за пределы реактора. По существующим на сегодняшний день представлениям с крупными частицами связано лишь 25% активности выброса. Остальная его часть характеризуется более мелкими (несколько микрон) частицами, эта форма выброса существенно более многообразна как по радионуклидному составу, так и по составу носителя. Под влиянием внешних факторов (атмосферные осадки, почвенный раствор, воздействие микромицет и др.) в почве происходит выщелачивание радионуклидов из топливных частиц и растворение урановой матрицы «горячих» частиц, в результате чего наблюдается перераспределение радионуклидов между различными компонентами поглощающего почвенного комплекса.

В работе [2] изучены формы нахождения Ри в почвах и горячих частицах, отобранных в 30-километровой зоне ЧАЭС в 1987–1988 гг. из почв и с поверхности растений. Было показано, что во всех исследованных природных объектах независимо от источников поступления Ри обнаружен в одних и тех же формах. Содержание водорастворимых, обменных (1 моль/л  $\text{CH}_3\text{COONH}_4$ , pH 4.8) и подвижных (1 моль/л HCl) форм Ри в горячих частицах значительно выше, чем в пробах почвы. Доля аморфных (не силикатных) форм Ри, определенных в пробах почвы при обработке

отдельных навесок раствором Тамма [ $\text{H}_2\text{C}_2\text{O}_4 + (\text{NH}_4)_2\text{C}_2\text{O}_4$ ], составляла 9–86%.

На основании данных по выщелачиванию  $^{144}\text{Ce}$  и  $^{154}\text{Eu}$  растворами различного состава [3] можно полагать, что разрушилось не менее 20% топливных частиц в пробе вертикального разреза почвы с глубины 1.0–2.0 см, отобранной в районе «Рыжего леса» в 1991 г.

Изучению мобильных форм и ассоциации с компонентами поглощающего почвенного комплекса  $^{90}\text{Sr}$  и  $^{137}\text{Cs}$  посвящен ряд работ. В работах [4, 5] показано, что в пробах почвы, отобранных в ближней зоне ЧАЭС, основное количество (75–90%)  $^{137}\text{Cs}$  связано с фракциями, растворимыми в  $\text{H}_2\text{O}_2$  и  $\text{HNO}_3$ , а также прочно фиксировано на минеральном остатке. Заметного изменения в распределении  $^{137}\text{Cs}$  по различным фракциям в пробах, отобранных в 1990 и 1995 гг., не наблюдается [5].

Мобильность  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{90}\text{Sr}$  чернобыльских выпадений в почвах Украины, Беларуси и России была определена методом последовательных экстракций в работе [6]. Определено, что 40–98%  $^{90}\text{Sr}$  легко переходит в первые фракции выщелачивающих растворов (дистиллированная вода; 1 моль/л  $\text{CH}_3\text{COONH}_4$ , pH 7; 1 моль/л  $\text{CH}_3\text{COONa}$ , pH 5). По модифицированной схеме последовательных экстракций определена ассоциация радионуклидов  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{90}\text{Sr}$  с компонентами почв, отобранных в центральной Норвегии, т.е. на значительном расстоянии от эпицентра Чернобыльской аварии. На основании полученных данных в работе [7] сделан вывод, что радиоактивные изотопы цезия прочно фиксированы на минеральной матрице

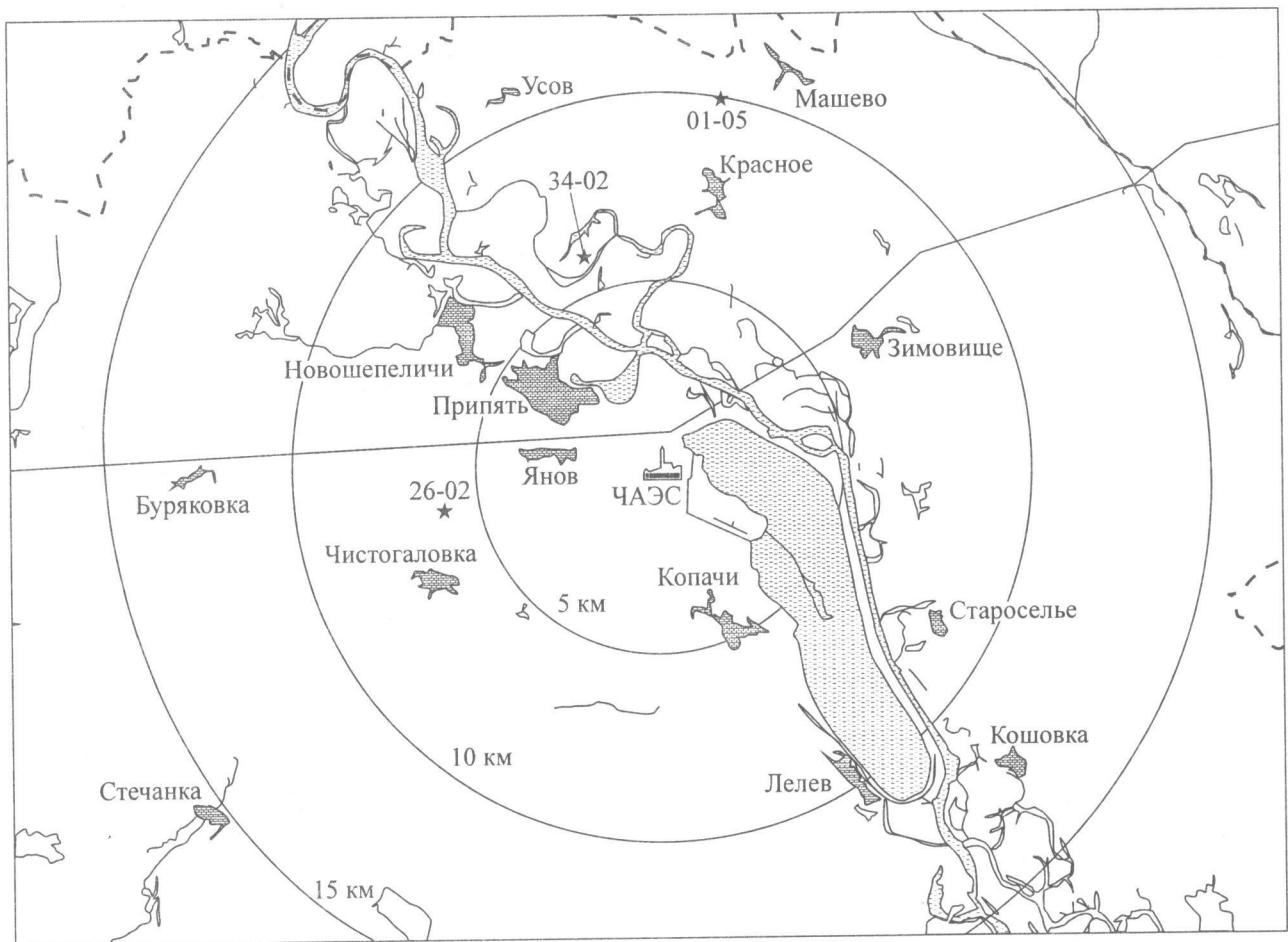


Рис. 1. Карта-схема расположения участков отбора проб почвы.

почвы и менее 10% могут быть мобильными. Для  $^{90}\text{Sr}$  показано, что в верхних слоях почвенных разрезов он в основном находится в легковыщелачиваемых формах, доля обменного  $^{90}\text{Sr}$  составляла 40–70%. Количество водорастворимых, обменных (1 моль/л  $\text{CH}_3\text{COONH}_4$ , pH 4.8) и кислоторастворимых (1 моль/л HCl) форм  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$  и  $^{241}\text{Am}$  в послойных пробах (0–6 см) различных типов почв ближней зоны ЧАЭС было определено ранее [8, 9].

В настоящее время имеется относительно мало данных об ассоциации Pu, Am и Cm чернобыльских выпадений с различными компонентами поглощающего почвенного комплекса в почвах, где эти элементы первоначально были аккумулированы в составе топливных частиц.

Цель настоящей работы заключается в изучении ассоциации  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$  и  $^{244}\text{Cm}$  с компонентами поглощающего почвенного комплекса почв, характерных для западного, северо-западного и северного следов радиоактивных выпадений ближней зоны ЧАЭС.

## Экспериментальная часть

В настоящей работе при проведении последовательных обработок почвы выщелачивающими растворами за основу была принята модифицированная схема Tessier A. [10], различные варианты которой широко использовались при определении мобильных форм  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{90}\text{Sr}$  чернобыльских выпадений и ассоциации их с различными компонентами почвы [4–7, 11, 12].

Пробы почв были отобраны летом 1995 г. на паспортизованных полигонах, расположенных в северо-западном направлении ( $340^\circ$ ) на расстоянии 6 км от ЧАЭС (шифр СЗС 34-02), северном ( $10^\circ$ ) на расстоянии 10 км от ЧАЭС (шифр СС 01-05) и на участке реперной сети 30-километровой зоны отчуждения, азимут  $260^\circ$ , радиус 6 км (шифр ЗС 26-02), западный след радиоактивных выпадений. Карта-схема расположения участков пробоотбора представлена на рис. 1. Места отбора проб подбирали таким образом, чтобы были представлены участки 30-километровой зоны ЧАЭС, загрязненные радионуклидами на различных стадиях

Таблица 1. Некоторые свойства почв

Почва	pH ( $\text{H}_2\text{O}$ )	C <sub>орг</sub> , %	Ca <sup>2+</sup> обменный, мг-экв/100 г почвы	Fe <sup>3+</sup> , мг/100 г почвы	Потери при про-каливании, %
Дерново-слабоподзолистая песчаная, СЗС 34-02	5.0	1.1	0.46	210	3.4
Дерново-подзолистая песчаная, ЗС 26-02	4.8	3.8	0.77	150	7.2
Торфяно-болотная, СС 01-05	5.4	65	21	1910	76

аварийного выброса. Плотность загрязнения почвы изотопами плутония ( $\text{kБк}/\text{м}^2$ ) на исследуемых участках СС 01-05:  $^{239+240}\text{Pu}$  25,  $^{241}\text{Pu}$   $1.6 \cdot 10^3$ ; СЗС 34-02:  $^{239+240}\text{Pu}$  280,  $^{241}\text{Pu}$   $1.8 \cdot 10^4$ ; ЗС 26-02:  $^{239+240}\text{Pu}$  200,  $^{241}\text{Pu}$   $1.4 \cdot 10^4$  [13].

Последовательность обработки проб почв и составы выщелачивающих растворов были подобраны с учетом ранее проведенных исследований выщелачивания плутония из проб почв и донных отложений [14–16].

Навески почвы массой 2.5–3.0 г из верхнего слоя 0–2 см (по 3 пробы с каждого участка) последовательно обрабатывали следующими реагентами при соотношении твердой и жидкой фаз Т : Ж = 1 : 10:

- 1) дистиллированной водой, pH 5.6, 24 ч при комнатной температуре и периодическом перемешивании (фракция I);
- 2) 1 моль/л  $\text{CH}_3\text{COONH}_4$  ( $\text{NH}_4\text{Ac}$ ), pH 7, 2 ч при комнатной температуре (фракция II);
- 3) 0.04 моль/л  $\text{NH}_2\text{OH} \cdot \text{HCl}$  в 25 об%  $\text{CH}_3\text{COOH}$  ( $\text{HAc}$ ) в течение 6 ч при  $80^\circ\text{C}$  (фракция III);
- 4) 0.2 моль/л  $(\text{NH}_4)_2\text{C}_2\text{O}_4$  + 0.1 моль/л  $\text{H}_2\text{C}_2\text{O}_4$ , pH 3.2 (раствор Тамма), 1 ч при комнатной температуре (фракция IV);
- 5) 30%-ный  $\text{H}_2\text{O}_2$  при pH 2 ( $\text{HNO}_3$ ) в течение 6 ч при  $80^\circ\text{C}$ , затем 3.2 моль/л  $\text{NH}_4\text{Ac}$  в 20%-ной  $\text{HNO}_3$  0.5 ч при комнатной температуре (фракция V);
- 6) 7 моль/л  $\text{HNO}_3$  в течение 6 ч при  $80^\circ\text{C}$  (фракция VI);

7) остаток почвы после всех экстракций озоляли при  $550^\circ\text{C}$  и обрабатывали смесью 8 моль/л  $\text{HNO}_3$  + 0.2 моль/л HF 2 ч при  $95^\circ\text{C}$  с последующей обработкой  $\text{HNO}_3$ , насыщенной  $\text{H}_3\text{BO}_3$  (фракция VII).

После 2–6 обработок выщелачивающими растворами остаток почвы промывали дистиллированной водой для удаления остатков предыдущего реагента. Супернатант отделяли от остатка почвы центрифугированием при 6000 об/мин с последующим фильтрованием через плотный бумажный фильтр.

Обработка почвы данными выщелачивающими растворами позволяет определить количество водорастворимых (1) и обменных (2) форм радио-

изотопов, а также количество радионуклидов, связанных с оксидными формами Fe и Mn (3), с полуторными оксидами Fe и Al ( $\text{R}_2\text{O}_3$ ) (4), переходящих в раствор при окислении органического вещества почвы (5) и прочно фиксированных на минеральных компонентах почвы и находящихся в составе «горячих» топливных частиц (6, 7).

Содержание  $^{137}\text{Cs}$  в навесках почвы, выщелачивающих растворах и твердом остатке почв измеряли на  $\gamma$ -спектрометрической установке на базе полупроводникового детектора серии GMX-30190 (эффективность 32.5%, разрешение 1.89 кэВ на линии 1.33 МэВ), многоканального буфера 919 Spectrum Master фирмы ORTEC и персонального компьютера.

Радиохимическое определение содержания  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$  и  $^{244}\text{Cm}$  во всех растворах и навесках почвы производили по методике [17], позволяющей определять все радионуклиды из одной навески почвы или одной аликовоты раствора. Активность  $\alpha$ -излучающих радионуклидов Pu, Am и Cm измеряли на восьмиканальном  $\alpha$ -спектрометре Octete PC фирмы ORTEC с полупроводниковым кремниевым детектором серии Ultra с эффективностью регистрации  $>25\%$ . Собственный фон для области энергий выше 3 МэВ не более 1 имп/ч, энергетическое разрешение 19 кэВ на линии 5486 кэВ ( $^{241}\text{Am}$ ). Радиометрическое определение  $^{90}\text{Sr}$  после радиохимического выделения производили с помощью  $\beta$ -радиометра Robotron 20046.

Агрехимические свойства почв определяли по общепринятым методикам [18]. В табл. 1 приведены некоторые агрехимические свойства почв. Как видно из табл. 1, почвы на всех участках кислые с pH 4.8–5.4, содержание органического углерода на участках СЗС 34-02 и ЗС 26-02, где почвы дерново-подзолистые песчаные, находится в пределах 1–4%, а на участке СС 01-05 с торфяно-болотной почвой – 65%. Следует отметить высокое содержание железа – порядка 1.9 г на 100 г почвы в почвах участка СС 01-05, что на порядок выше, чем на других исследуемых участках.

В аликовотах растворов после 2–6 экстракций на плазменном спектроанализаторе с индуктивно возбужденной плазмой (ICP) JY32 (Jobin Yvon) определяли содержание в жидкой фазе Ca, Fe и

Таблица 2. Содержание радионуклидов в исследуемой почве, Бк/г (слой 0–2 см)

Шифр полигона	$^{137}\text{Cs}$	$^{90}\text{Sr}$	$^{239+240}\text{Pu}$	$^{238}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}$	$^{244}\text{Cm}$
СЗС 34-02 ( $n = 8$ )	$750 \pm 90$	$220 \pm 40$	$10.2 \pm 1.1$	$4.9 \pm 0.5$	$11.0 \pm 1.6$	$0.63 \pm 0.07$
ЗС 26-02 ( $n = 5$ )	$1570 \pm 220$	$870 \pm 360$	$16.7 \pm 4.8$	$7.4 \pm 2.2$	$18.5 \pm 5.7$	$0.83 \pm 0.28$
СС 01-05 ( $n = 6$ )	$260 \pm 10$	$46 \pm 7$	$2.2 \pm 0.3$	$1.1 \pm 0.1$	$2.1 \pm 0.5$	$0.12 \pm 0.2$

Al, которые могут являться неизотопными носителями для радионуклидов Sr, Pu, Am и Cm.

### Результаты и обсуждение

Удельное содержание радионуклидов  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$  и  $^{244}\text{Cm}$  в пробах почв (верхний слой 0–2 см), определенное по 5–8 навескам массой 2.5–3 г, приведено в табл. 2. Как видно из табл. 2, для навесок почвы, отобранной на западном следе выпадений (ЗС 26-02), наблюдается значительное, до 40–50%, отклонение значений содержания радионуклидов в параллельных навесках почвы, обусловленное нахождением их в составе различных по размеру топливных частиц. В почвах, отобранных на северо-западном (СЗС 34-02) и северном (СС 01-05) следах выпадений, разброс значений содержания радионуклидов в навесках почвы не превышает 10–15% и определяется в основном погрешностью измерения.

Для описания радионуклидных характеристик различных радиоактивных продуктов аварии на ЧАЭС чаще всего используют коэффициент фракционирования  $^{95}\text{Zr}$ ,  $^{106}\text{Ru}$  и  $^{137}\text{Cs}$  по отношению к тугоплавкому  $^{144}\text{Ce}$  [1]. Также достаточно информативным в отношении происхождения продуктов аварии и режима их образования является определение отношений активностей изотопов plutonia к  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{144}\text{Ce}$ . В данной работе в качестве реперных радионуклидов взяты  $^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$ , так как они нарабатывались во время штатной работы реактора по реакциям  $^{238}\text{U}(n,\gamma)^{239}\text{U} \xrightarrow{\beta} ^{239}\text{Np} \xrightarrow{\beta} ^{239}\text{Pu}(n,\gamma)^{240}\text{Pu}$  и наиболееочно связаны с урановой матрицей топливосодержащих выпадений. В табл. 3 приведено отношение активностей  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$  и  $^{244}\text{Cm}$  к активности  $^{239+240}\text{Pu}$ . Отношения активностей радионуклидов  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{244}\text{Cm}$  к активности  $^{239+240}\text{Pu}$ , за исключением  $^{90}\text{Sr}$ , в пробах почвы

хорошо согласуются с расчетными значениями по их наработке в доаварийном топливе 4-го блока ЧАЭС [19]. Значительный дефицит  $^{90}\text{Sr}$  (на участке СЗС 34-02 отношение  $^{90}\text{Sr}/^{239+240}\text{Pu}$  в 3 раза меньше расчетного) объясняется вертикальной миграцией  $^{90}\text{Sr}$  в нижние слои почвенных горизонтов. Так, по данным изучения вертикального распределения радионуклидов на полигоне СЗС 34-02 в 1992 г., в верхнем слое 0–2 см содержалось менее 40%  $^{90}\text{Sr}$ , в то время как содержание  $^{241}\text{Am}$  и  $^{239+240}\text{Pu}$  составляло более 85% [8].

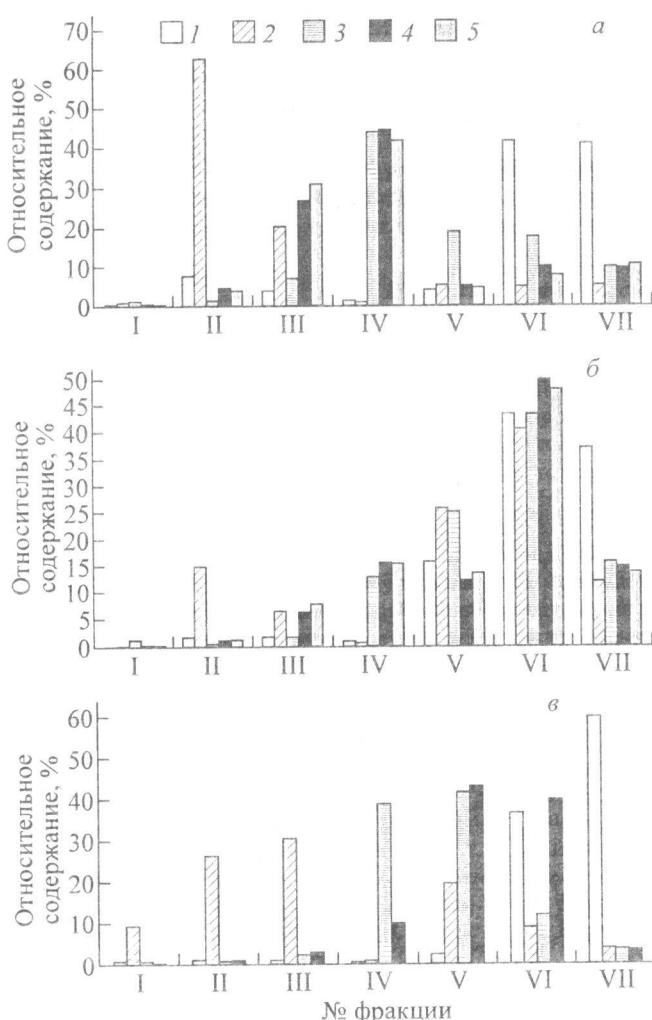
На рис. 2 представлены усредненные результаты последовательных обработок 3 навесок почвы с каждого участка по описанной выше схеме. Содержание радионуклидов в выщелачивающих растворах приведено в процентах к суммарному содержанию во всех растворах и твердом остатке. На рис. 2 не показано распределение  $^{238}\text{Pu}$  по различным фракциям (во всех пробах и растворах содержание  $^{238}\text{Pu}$  определялось), так как оно совпадает с  $^{239+240}\text{Pu}$ .

Как видно на рис. 2, а, распределение различных радионуклидов по фракциям выщелачивающих растворов для проб почвы, отобранных на участке СЗС 34-02, носит специфический характер.  $^{137}\text{Cs}$ очно фиксирован на минеральном остатке почвы и переходит в растворимое состояние только при обработке почвы 7 моль/л  $\text{HNO}_3$  и 8 моль/л  $\text{HNO}_3 + 0.2$  моль/л  $\text{HF}$ . Количество обменных форм  $^{137}\text{Cs}$  не превышает 10%. Доля обменных форм  $^{90}\text{Sr}$  составляет 60–65%, и порядка 20%  $^{90}\text{Sr}$  выщелачивается при обработке почвы 0.04 моль/л  $\text{NH}_2\text{OH} \cdot \text{HCl}$  в 25 об% НАс. До 5–7%  $^{90}\text{Sr}$  переходит во фракции V–VII.

Основное содержание Pu приурочено к фракциям IV – 45%, V – 19%, VI – 18% и VII – 10%. Распределение  $^{241}\text{Am}$  и  $^{244}\text{Cm}$  по фракциям выщелачивающих растворов в пределах ошибки определения одинаковое. С точки зрения химических свойств Am и Cm здесь ничего неожиданного нет, так как эти элементы являются химическими аналогами. Можно было ожидать некоторых различий ввиду различной истории образования этих радионуклидов:  $^{244}\text{Cm}$  нарабатывался во время штатной работы реактора, а  $^{241}\text{Am}$  на 95% является продуктом  $\beta$ -распада  $^{241}\text{Pu}$  и накапливался в течение времени, прошедшего после аварии на ЧАЭС. В исследуемой почве 25–30%  $^{241}\text{Am}$  и

Таблица 3. Отношение активности радионуклидов к активности  $^{239+240}\text{Pu}$  в пробах почвы

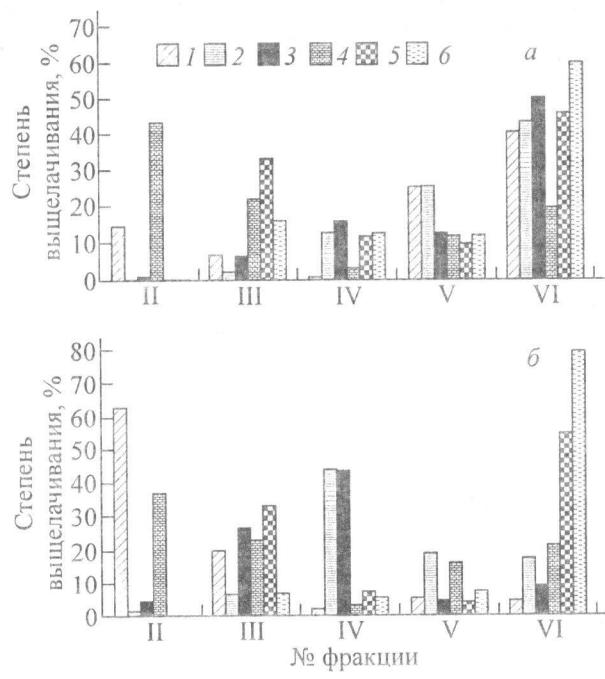
Шифр пробы	$^{137}\text{Cs}$	$^{90}\text{Sr}$	$^{238}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}$	$^{244}\text{Cm}$
СЗС 34-02	74	22	0.48	1.08	0.062
ЗС 26-02	92	52	0.44	1.11	0.050
СС 01-05	118	21	0.50	0.95	0.055
Расчет [19]	83	68	0.53	1.2	0.09



**Рис. 2.** Содержание радионуклидов в выщелачивающих растворах, % от содержания в исходной пробе. Фракция, выщелачивающий раствор: I –  $\text{H}_2\text{O}$ ; II –  $\text{NH}_4\text{Ac}$ , pH 7; III – 0.04 моль/л  $\text{NH}_2\text{OH}\cdot\text{HCl}$  в 25%-ной НАс; IV – 0.2 моль/л  $(\text{NH}_4)_2\text{C}_2\text{O}_4$  + 0.1 моль/л  $\text{H}_2\text{C}_2\text{O}_4$ , pH 3.2; V – 30%-ный  $\text{H}_2\text{O}_2$ , pH 2; VI – 7 моль/л  $\text{HNO}_3$ ; VII – 8 моль/л  $\text{HNO}_3$  + 0.2 моль/л HF. Почва: *a*, *b* – дерново-подзолистая песчаная; *c* – торфяно-болотная. Шифр пробы: *a* – СЗС 34-02, *b* – ЗС 26-02, *c* – СС 01-05. Нуклид: 1 –  $^{137}\text{Cs}$ , 2 –  $^{90}\text{Sr}$ , 3 –  $^{239+240}\text{Pu}$ , 4 –  $^{241}\text{Am}$ , 5 –  $^{244}\text{Cm}$ .

$^{244}\text{Cm}$  связано с оксидными формами Fe и Mn (фракция III) и 40–45% – с полуторными оксидами Fe и Al (фракция IV).

Распределение радионуклидов по фракциям выщелачивающих растворов для почвы, отобранной на западном следе выпадений, показано на рис. 2, *b*. Распределение радионуклидов принципиально отличается от полученного для проб почвы, отобранных на северо-западном следе выпадений. Основное количество практически всех радионуклидов  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$  и  $^{244}\text{Cm}$  переходит в растворимое состояние только при



**Рис. 3.** Распределение  $^{90}\text{Sr}$  (1),  $^{239+240}\text{Pu}$  (2), Am (3), Cs (4), Fe (5), Al (6) по фракциям выщелачивающих растворов II–VI. Дерново-подзолистая песчаная почва. Шифр пробы: *a* – ЗС 26-02, *b* – СЗС 34-02.

обработке почвы сильным окислителем [30%-ный  $\text{H}_2\text{O}_2$ , pH 2 ( $\text{HNO}_3$ ) при  $80^\circ\text{C}$ ] и 7 моль/л  $\text{HNO}_3$ . Известно, что  $\text{UO}_2$  хорошо растворяется в  $\text{HNO}_3$  с концентрацией выше 4 моль/л. То есть в данном случае синхронный переход в раствор радионуклидов означает растворение топливной матрицы.

На рис. 2, *c* представлено распределение радионуклидов по различным компонентам торфяно-болотной почвы, отобранной на северном следе радиоактивных выпадений. Для данного участка, представленного почвой с высоким содержанием органического вещества, с одной стороны, и ионов железа – с другой, наблюдается высокое содержание водорастворимого  $^{90}\text{Sr}$  и в отличие от проб СЗС 34-02 и ЗС 26-02 – максимальная ассоциация  $^{90}\text{Sr}$  с оксидными формами Fe и Mn (фракция III). Основное количество Pu переходит в растворимое состояние при растворении полуторных окислов и разложении органического вещества почвы.

На рис. 3 показано распределение основных почвообразующих элементов Ca, Fe и Al по фракциям II–VI в песчаных почвах участков ЗС 26-02 и СЗС 34-02. Как видно на рис. 3,  $^{90}\text{Sr}$  и Ca ассоциированы с теми же фракциями, однако мобильных форм  $^{90}\text{Sr}$  значительно больше, чем Ca. Следует отметить, что для исследованных проб почвы Pu и Am в отличие от Fe переходят в растворимое состояние не только при растворении оксидных форм Fe и Mn, но и при обработке поч-

**Таблица 4.** Выщелачивание Ри различными реагентами\* из проб почв и донных отложений, процент от суммарного содержания в пробе

Реагент	% Ри	Литература
1. 0.05 CaCl <sub>2</sub>	<0.05	[14] (техногенные загрязнения)
2. 0.5 Ac	0.6	
3. 0.1 Na <sub>4</sub> P <sub>2</sub> O <sub>7</sub>	35	
4. (NH <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> C <sub>2</sub> O <sub>4</sub> /H <sub>2</sub> C <sub>2</sub> O <sub>4</sub> , pH 3	44	
5. Остаток	20	
1. 0.1 MgCl <sub>2</sub>	13	[20] (глобальные выпадения)
2. 0.3 NaCit + Na <sub>2</sub> S <sub>2</sub> O <sub>4</sub>	51	
3. 0.1 NaOH	4.4	
4. LiF + H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub>	6.6	
5. Остаток	25	
1. 1 MgCl <sub>2</sub> , pH 7	0.12	[16] (техногенные загрязнения)
2. 1 NaAc, HAc, pH 4.5	4.2	
3. 0.04 NH <sub>2</sub> OH·HCl в 25%-ной HAc	29	
4. 30%-ный H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> , pH 2	11	
5. Остаток HF/HNO <sub>3</sub>	56	
1. 0.05 CaCl <sub>2</sub>	0.2	[15] (техногенные загрязнения)
2. 0.5 Ac	0.3	
3. 0.1 Na <sub>4</sub> P <sub>2</sub> O <sub>7</sub>	38	
4. 0.17 (NH <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> C <sub>2</sub> O <sub>4</sub> + 0.1 H <sub>2</sub> C <sub>2</sub> O <sub>4</sub>	47	
5. Остаток HF + HNO <sub>3</sub>	9.5	
1. H <sub>2</sub> O	0.2	[21] (техногенные загрязнения, восточно-уральский радиоактивный след)
2. 1 NH <sub>4</sub> Ac, pH 4.8	0.3	
3. 1 HCl	3.1	
4. 30%-ный H <sub>2</sub> O <sub>2</sub>	67	
5. (NH <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> C <sub>2</sub> O <sub>4</sub> /H <sub>2</sub> C <sub>2</sub> O <sub>4</sub> , pH 3	26	
6. 0.5 NaOH		
7. Остаток	3.4	
1. H <sub>2</sub> O	1.3	Настоящая работа (чернобыльские выпадения, 30-километровая зона ЧАЭС)
2. 1 NH <sub>4</sub> Ac, pH 7	1.5	
3. 0.04 NH <sub>2</sub> OH·HCl в 25%-ной HAc	6.9	
4. (NH <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> C <sub>2</sub> O <sub>4</sub> /H <sub>2</sub> C <sub>2</sub> O <sub>4</sub> , pH 3	43	
5. 30%-ный H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> , pH 2	19	
6. 7 HNO <sub>3</sub>	18	
7. Остаток 8 HNO <sub>3</sub> + 0.2 HF	10	

\* Концентрация указана в моль/л, для данных работы [20] – г-экв/л.

вы 0.2 моль/л (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>C<sub>2</sub>O<sub>4</sub> + 0.1 моль/л H<sub>2</sub>C<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, вероятно, за счет образования растворимых комплексных соединений. Основное количество Fe и Al ассоциировано с минеральной составляющей почвы и переходит в растворимое состояние при обработке почвы HNO<sub>3</sub>.

Экспериментальных данных об ассоциации Am с различными компонентами почв и донных отложений практически нет. Сравнение полученных результатов для выщелачивания из почв Ри чернобыльских выпадений с имеющимися литературными данными для почв и донных отложений, загрязненных в результате глобальных выпадений и техногенных загрязнений в результате переработки облученного ядерного топлива, приведено в табл. 4. Как видно в табл. 4, независимо от источника поступления основная доля Ри переходит в растворимое состояние при обработке почвы ре-

агентами, используемыми для перевода в растворимое состояние полуторных оксидов и аморфных соединений Fe, а также при растворении или разложении органического вещества почвы. Количество потенциально мобильных форм Ри и Am в песчаных почвах ближней зоны ЧАЭС по северо-западному следу выпадений значительно превышает аналогичные значения для глобальных выпадений.

Изучение распределения радионуклидов по различным компонентам поглощающего почвенного комплекса позволяет прогнозировать их поведение в аналогичных ландшафтно-геохимических условиях.

### Список литературы

- [1] Богатов С. А., Боровой А. А., Дубасов Ю. В., Ломоносов В. В. // Атом. энергия. 1990. Т. 69, N 1. С. 36–40.
- [2] Павлоцкая Ф. И., Горяченкова Т. А., Мясоедов Б. Ф. // Радиохимия. 1997. Т. 39, N 5. С. 464–470.
- [3] Кривохатский А. С., Смирнова Е. А., Авдеев В. А., Трифонов В. А. // Радиохимия. 1994. Т. 36, N 1. С. 71–75.
- [4] Andersson K. G., Roed J. // J. Environ. Radioact. 1994. Vol. 22, N 3. P. 183–196.
- [5] Рыбalka И. Э., Кирсенко В. М., Кутлахметов Ю. А. // Докл. НАН Украины. 1997. N 10. С. 187–191.
- [6] Salbu B., Oughton D. H., Ratnikov A. V. // Health Phys. 1994. Vol. 67, N 5. P. 518–528.
- [7] Riise G., Bjornstad H. E., Lien H. N. et al. // J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles. 1990. Vol. 142, N 2. P. 531–538.
- [8] Агеев В. А., Выричек С. Л., Левшин Е. Б. и др. // Докл. НАН Украины. 1994. N 1. С. 60–66.
- [9] Агеев В. А., Одинцов А. А., Саженюк А. Д., Сацюк В. А. // Агробиологічний журнал. 2001. N 2. С. 68–74.
- [10] Tessier A., Campbell P. G. C., Bisson M. // Anal. Chem. 1979. Vol. 51, N 7. P. 844–851.
- [11] Salbu B., Bjornstad H. E., Krekling T. // Environmental Contamination Following a Major Nuclear Accident. Vienna: IAEA. 1990. P. 171–172.
- [12] Strand P., Ratnicov A., Firsakova S. // Environmental Impact of Radioactive Releases: Proc. Symp. Vienna: IAEA, May 8–12, 1995. SM-339/147P. P. 689–691.
- [13] Агеев В. А., Выричек С. Л., Одинцов А. А. // Ядерная и радиационная безопасность. 1999. Т. 2, N 2. С. 28–41.
- [14] McDonald P., Cook G. T., Baxter M. S., Thomson J. C. // J. Environ. Radioact. 1990. Vol. 12. P. 285–298.
- [15] Matkar V. M., Narayanan U., Bhat I. S., Pillai K. C. // J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles. 1992. Vol. 156, N 1. P. 119–127.
- [16] Mudge S., Hamilton-Taylor J., Kelly M., Bradshaw K. // J. Environ. Radioact. 1988. Vol. 8. P. 217–237.
- [17] Агеев В. А., Ключников А. А., Одинцов А. А. и др. А. с. N 1701047 СССР. 1991.
- [18] Аринушкина Е. В. Руководство по химическому анализу почв. М.: Изд-во МГУ, 1970. 479 с.
- [19] Герасько В. Н., Ключников А. А., Корнеев А. А. и др. Объект «Укрытие». История, состояние и перспективы. Киев: Интерграфик, 1997. 224 с.
- [20] Alberts J. J., Wahlgren M. A., Orlandini K. A., Durbahn C. A. // J. Environ. Radioact. 1989. Vol. 9. P. 89–103.
- [21] Мартюшов В. В., Спирин Д. А., Базылев В. В. и др. // Экология. 1995. N 2. С. 110–113.