

# 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. Саженьюк\*\*, 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 находятся 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 Pu 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 Pu 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 Pu в горячих частицах значительно выше, чем в пробах почвы. Доля аморфных (не силикатных) форм Pu, 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

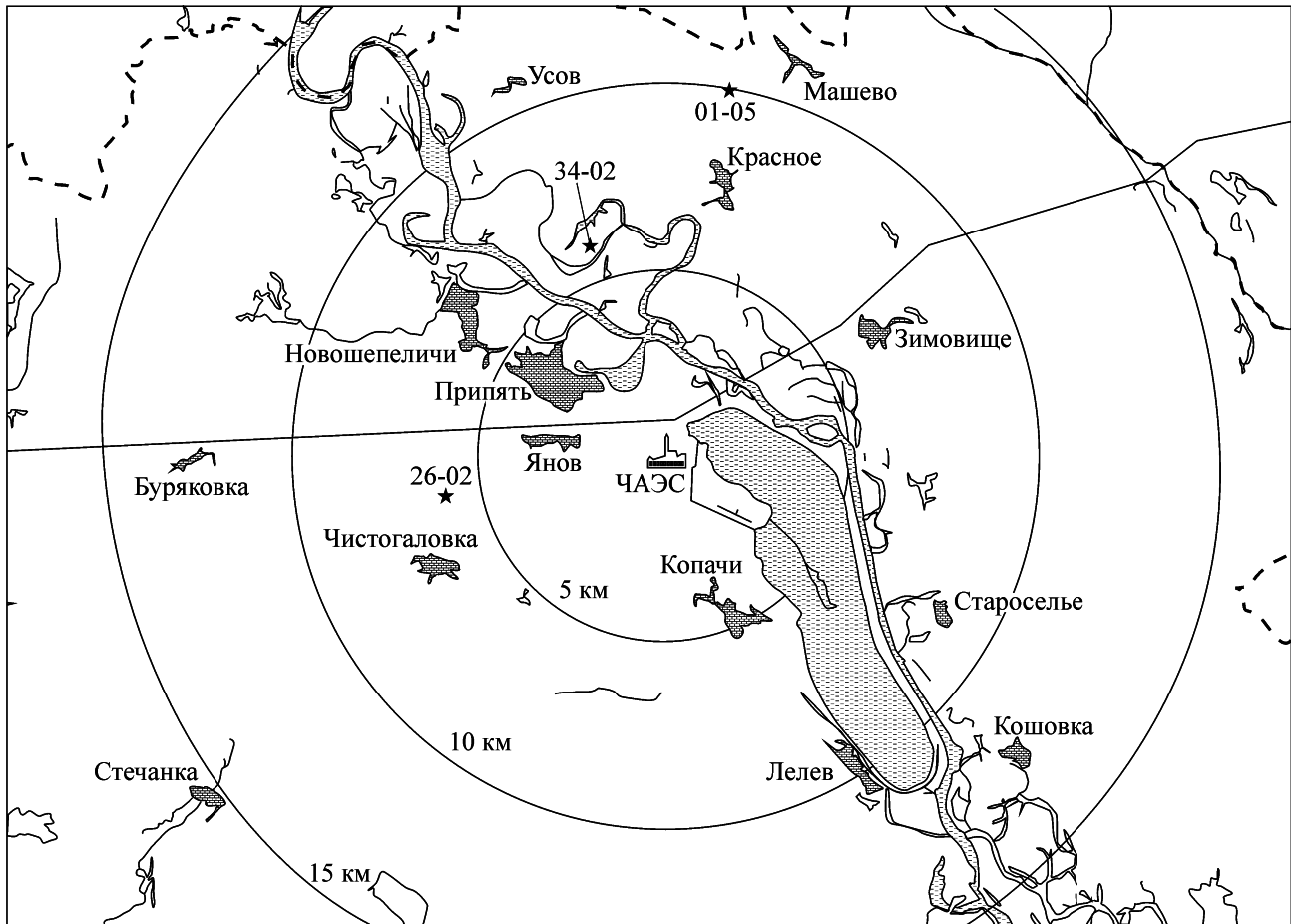


Рис. 1. Карта-схема расположения участков отбора проб почвы.

почвы и менее 10% могут быть мобильными. Для  $^{90}\text{Sr}$  показано, что в верхних слоях почвенных разрезов он в основном находится в легковыведряемых 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  $\text{HCl}$ ) 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  $\text{Pu}$ ,  $\text{Am}$  и  $\text{Sm}$  чернобыльских выпадений с различными компонентами поглощающего почвенного комплекса в почвах, где эти элементы первоначально были аккумулярованы 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  $^{244}\text{Sm}$  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 паспортизированных 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 (H <sub>2</sub> 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 прокаливании, %
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 (кБк/м<sup>2</sup>) 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°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°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°C (фракция VI);

7) остаток почвы после всех экстракций озоляли при 550°C и обрабатывали смесью 8 моль/л  $\text{HNO}_3$  + 0.2 моль/л HF 2 ч при 95°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-

нуклидов, а также количество радионуклидов, связанных с оксидными формами Fe и Mn (3), 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 аликвоты 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.

Агрохимические свойства почв определяли по общеизвестным методикам [18]. В табл. 1 приведены некоторые агрохимические 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 аликвотах 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±90	220±40	10.2±1.1	4.9±0.5	11.0±1.6	0.63±0.07
ЗС 26-02 ( $n = 5$ )	1570±220	870±360	16.7±4.8	7.4±2.2	18.5±5.7	0.83±0.28
СС 01-05 ( $n = 6$ )	260±10	46±7	2.2±0.3	1.1±0.1	2.1±0.5	0.12±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 плутония 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 наиболее прочно 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

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

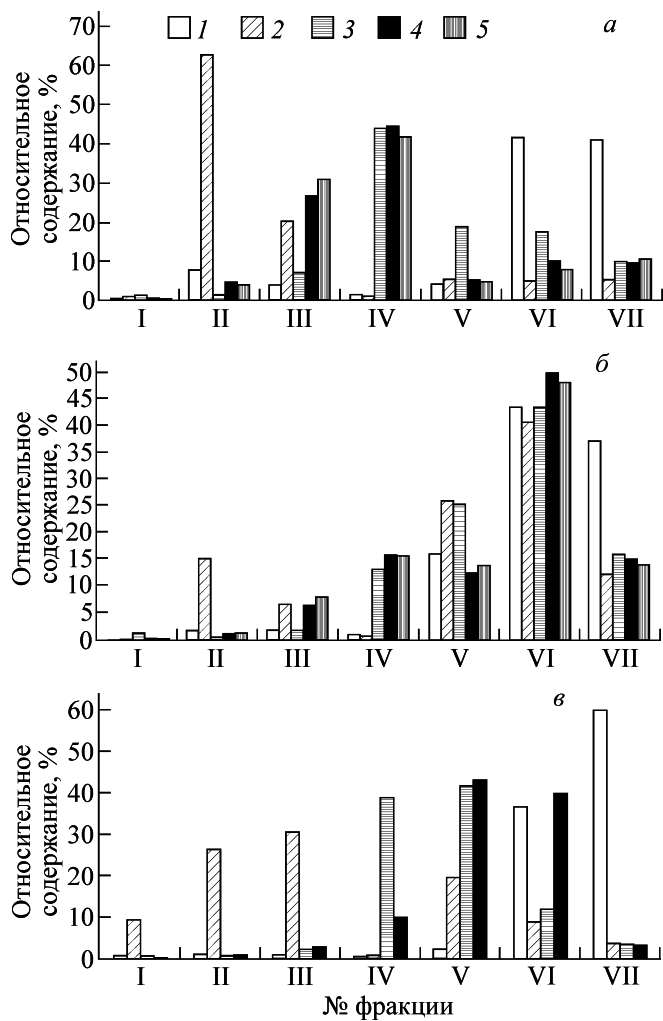
Шифр пробы	$^{137}\text{Cs}$	$^{90}\text{Sr}$	$^{238}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}$	$^{244}\text{Cm}$
СЗС 34-02	74	22	0.48	1.08	0.062
ЗС 26-02	92	52	0.44	1.11	0.050
СС 01-05	118	21	0.50	0.95	0.055
Расчет [19]	83	68	0.53	1.2	0.09

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, *a*, распределение различных радионуклидов по фракциям выщелачивающих растворов для проб почвы, отобранных на участке СЗС 34-02, носит специфический характер.  $^{137}\text{Cs}$  прочно 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%  $\text{HAc}$ . До 5–7%  $^{90}\text{Sr}$  переходит во фракции V–VII.

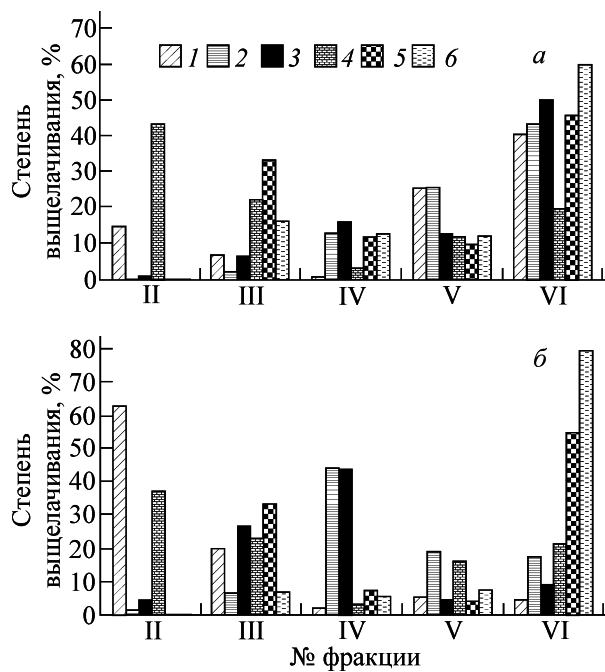
Основное содержание Pu приурочено к фракциям IV – 45%, V – 19%, VI – 18% и VII – 10%. Распределение  $^{241}\text{Am}$  и  $^{244}\text{Cm}$  по фракциям выщелачивающих растворов в пределах ошибки определения одинаковое. С точки зрения химических свойств Am и Cm здесь ничего неожиданного нет, так как 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



**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  $\text{HAc}$ ; 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  $\text{HF}$ . Почва: а, б – дерново-подзолистая песчаная; в – торфяно-болотная. Шифр пробы: а – СЗС 34-02, б – ЗС 26-02, в – 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, б. 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), Ca (4), Fe (5), Al (6) по фракциям выщелачивающих растворов II–VI. Дерново-подзолистая песчаная почва. Шифр пробы: а – ЗС 26-02, б – 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, в 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 одними и 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 Pu различными реагентами\* из проб почв и донных отложений, процент от суммарного содержания в пробе

Реагент	% Pu	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	Следы	
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 Pu 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 Pu 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 Pu 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., Горяченко Т. А., Мясоедов Б. Ф. // Радиохимия. 1997. Т. 39, N 5. С. 464–470.
- [3] Кривохатский А. С., Смирнова Е. А., Авдеев В. А., Трифионов 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] Рыбалка И. Э., Курсенко 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] Ageev V. A., Выричек С. Л., Левшин Е. Б. и др. // Докл. НАН Украины. 1994. N 1. С. 60–66.
- [9] Ageev V. A., Одинцов А. А., Саженюк А. Д., Сацюк В. А. // Агроекологічний журн. 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] Ageev V. A., 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] Ageev V. A., Ключников А. А., Одинцов А. А. и др. А. С. N 1701047 СССР. 1991.
- [18] Арипушкина 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., Спиринов Д. А., Базылев В. В. и др. // Экология. 1995. N 2. С. 110–113.