

**VILNIAUS UNIVERSITETAS**  
**FIZIKOS FAKULTETAS**  
**BENDROSIOS FIZIKOS IR SPEKTROSKOPIJOS KATEDRA**

Ernius Karolis Kapačinskas

Radioaktyviosios taršos Cs-137, Pu-238, Pu-239 ir Pu-240 iškritų vertikaliojo pasiskirtymo  
Lietuvos dirvožemiuose ir ežerų dugno nuosėdose tyrimas

Antrosios pakopos studijų baigiamasis darbas

studijų programa – APLINKOS IR CHEMINĖ FIZIKA

Studentas

Ernius Karolis Kapačinskas

Darbo vadovas

Dr. Evaldas Maceika

Recenzentas

Dr. Marina Konstantinova

Katedros vedėjas

Prof., Dr. (HP) Valdas Šablinskas

Vilnius 2016

# Turinys

Įvadas.....	3
Darbo tikslas ir uždaviniai.....	4
Darbo tikslas.....	4
Uždaviniai.....	4
1. Literatūros apžvalga.....	5
1.1 Cezis.....	5
1.2 Plutonis.....	5
1.3 Didieji $^{137}\text{Cs}$ ir plutonio izotopų kilmės šaltiniai.....	6
1.4 Radionuklidų migracija dirvožemyje.....	8
1.5 Ilgaamžių radionuklidų vertikaliosios migracijos dirvožemyje modelių analizė.....	9
1.6 FEP analizė, kamerų modelis ir pagrindinės sąvokos.....	10
1.7 Sorbcijos procesas ir radioaktyviųjų teršalų pasiskirstymo koeficientas.....	11
1.8 Radiocezio vertikaliosios sklaidos tyrimai.....	12
1.9 Plutonio vertikaliosios sklaidos tyrimai.....	18
2. Eksperimento aprašymas.....	22
Eksperimento planavimas.....	22
Mėginių surinkimas ir bandinių paruošimas.....	22
13 pav. Bandinys paruoštas matavimui.....	23
Plutonio izotopų bandinių paruošimas ir radiocheminė analizė.....	23
Radioaktyvumo matavimai.....	26
3. Rezultatai, jų analizė ir aptarimas.....	28
Ežerų dugno nuosėdų matavimų rezultatai.....	28
Dirvožemio matavimų rezultatai.....	32
Išvados.....	34

Santrauka Lietuviškai .....	35
Summary in English .....	36
Literatūros sąrašas .....	37
Priedai .....	40
1 Priedas. <sup>137</sup> Cs skilimo į schema [42] .....	40
2 Priedas Cezio vertikaliosios migracijos profiliai Lenkijoje, 2003 m [8].....	41
3 Priedas. Drūkšių ežero dugno nuosėdų matavimų rezultatai.....	42
4 Priedas. Paršelio ežero dugno nuosėdų matavimų rezultatai.....	43
5 Priedas. Paršelio ežero sauso kranto matavimų rezultatai .....	44
6 Priedas. Paršelio ežero kranto matavimų rezultatai.....	45

## Ivadas

Radioaktyvioji tarša transuraniniais elementais dabartiniu metu yra aktuali problema visame pasaulyje. Branduolinių ginklų bandymu metu ir dėl įvairių branduolinių objektų ir jų avarijų į aplinką pateko daug antropogeninės kilmės radionuklidų. Radionuklidai, esantys aplinkoje kuria gyventojų apšvitą, todėl svarbu nustatyti jų kiekį žmogų supančioje aplinkoje. Vienas iš pagrindinių apšvitos būdų yra išorinė apšvita dėl dirvožemyje esančių ilgaaamžių radionuklidų.

Antropogeninės kilmės radionuklidai atsirado dėl branduolinio ginklo bandymų, reaktorių eksploatacijos bei avarijų ir branduolinio kuro perdirbimo gamyklų veiklos. Vieni iš radiologiškai pavojingiausių radionuklidų yra  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$  šiame darbe ir tirsime jų vertikalią migraciją dirvožemyje. Radiocezio ir Plutonio izotopų patekimas į aplinką – tai branduolinių avarijų, tokių kaip Fukušimos Daiiči ir Černobylio avarija, pasekmė bei atmosferoje vykdyti branduolinio ginklo bandymai.

Radionuklidų migracija – sudėtingas procesas, kurį lemia daug fizikinių ir cheminių procesų: difuzija, konvekinė pernaša, dirvožemio struktūrinių dalelių ir įvairių organinių junginių gertis ir atvirkštinė gertis. Vertikaliai migracijai aprašyti taikomi matematiniai modeliai: konvekcijos ir dispersijos, kamerų, atgalinio srauto.

Šiame darbe išnagrinėta literatūra susijusi su  $^{137}\text{Cs}$  ir plutonio izotopų migracija, palyginti mėginiai keliose Lietuvos vietose, atliktas eksperimentas ir pavaizduoti šių elementų migracijos profiliai.

Radionuklidų prasiskverbimas į dirvožemį priklauso nuo kritulių kiekio, šis procesas dažniausiai labai lėtas. Dirvoje esantys radioaktyvūs elementai įsiskverbia į augalų šaknis tokiu pat principu kaip ir stabilieji izotopai. Didžiausią reikšmę augalams turi paviršinis 30 cm sluoksnis, kuris ir tiriamas šiame darbe.

Radioaktyviosios medžiagos, nusėdusios ežerų dugne, gali vėl iš dugno pereiti į vandenį, jei jame radionuklidų koncentracija sumažėja, o iš vandens radioaktyviosios medžiagos patenka į mikroflorą.

Vertikalią radionuklidų migraciją tiriami todėl, kad būtų galima įvertinti, kaip greitai radionuklidai pasieks gruntinius vandenis, taigi, sąlygos gyventojų apšvitą.

## **Darbo tikslas ir uždaviniai**

### **Darbo tikslas**

Eksperimentiškai ištirti radiocezio ir plutonio izotopų vertikaliąją sklaidą dirvožemyje, bei ežero dugno nuosėdose

### **Uždaviniai**

1. Išanalizuoti  $^{137}\text{Cs}$  ir plutonio izotopų vertikaliąją sklaidą ir palyginti su panašiais tyrimais Lietuvoje ir kitose valstybėse
2. Eksperimentiškai nustatyti  $^{137}\text{Cs}$  ir Plutonio izotopų aktyvumų pasiskirstymo priklausomybes nuo gylio keliuose paimtuose bandiniuose.
3. Įvardinti pagrindinius  $^{137}\text{Cs}$  ir Plutonio izotopų migraciją lemiančius veiksnius remiantis tiriamais bandiniais.

## 1. Literatūros apžvalga

Šiame skyriuje apžvelgti didžiausi  $^{137}\text{Cs}$  ir plutonio izotopų kilmės šaltiniai, jų atsiradimo priežastys. Svarbi šio skyriaus dalis yra migracijos procesų bei modeliavimo priemonių paaiškinimas. Paskutiniame poskyryje išnagrinėti vertikaliosios sklaidos tyrimai, jie palyginti tarpusavyje bei su rezultatais Lietuvoje.

### 1.1 Cezis

Cezis yra minkštas sidabriškai baltas metalas. Cezis turi daug izotopų, nuo  $^{125}\text{Cs}$  iki  $^{145}\text{Cs}$ , vienintelis stabilus yra  $^{133}\text{Cs}$ , o radioekologiškai svarbiausias jų yra  $^{137}\text{Cs}$ . Šis izotopas yra atropogeninės kilmės, didžiausi jo kiekiai buvo išmesti į atmosferą branduolinių ginklų bandymų metu ir dėl branduolinių objektų eksploatacijos.

Cezio izotopai labai lengvai patenka į organizmą pro plaučius ir burną. Ceziui patekus į kraują, jis kaupiasi raumenyse, ten jo būna apie 52% viso kiekio. Jei cezis į organizmą patenka nuolatos (pvz. Kvėpuojant užterštu oru), jis organizme kaupiasi tik iki tam tikros ribos. Ceziui patekus į organizmą vienu metu (visa dozė gaunama iškart) kiekvieną mėnesį jo pasišalina 80%. Jei cezis į organizmą patenka nuolat – nusistovi pasišalinimo ir patekimo pusiausvyrą.

Principinė cezio skilimo schema pateikiama 2 priede.

### 1.2 Plutonis

Plutonis yra sidabrinės-baltos spalvos radioaktyvusis metalas. Vienas plutonio kilogramas prilyginamas 22 milijonams kilovatvalandžių šiluminės energijos. Šiuo metu yra atrasta dvidešimt plutonio izotopų. Šis elementas pasižymi ypač dideliu radiologiniu poveikiu aplinkai ir gyventojams, nes turi labai ilgai pusėjimo trukmę:

- Plutonio izotopas  $^{244}\text{Pu}$  yra ilgaamžiškiausias, jo pusėjimo trukmė 80,8 milijonų metų
- $^{242}\text{Pu}$  – 373300 metų
- $^{239}\text{Pu}$  pusėjimo trukmė yra 24110 metų.
- Kitų izotopų pusėjimo trukmės neviršija 7000 metų.

Plutonis yra išskirtinai atropogeninės kilmės, pagrindiniai jo šaltiniai yra branduolinio ginklo bandymai atmosferoje ir avarijos branduoliniuose objektuose, pagrindiniai šaltiniai Lietuvoje – branduolinio ginklo bandymai atmosferoje šiaurės pusrutulyje ir Černobylio avarija.

Plutonis turi 8 metastabilias būsenas, kurių pusėjimo trukmė mažesnė nei viena sekundė ir turi keturis oksidacinius laipsnius. Šiam elementui taip pat būdinga oksidacinio laipsnio kaita. Kai vyrauja oksidacinė terpė, galima aptikti IV, V, VI, o kai vyrauja redukcinė – III.

Plutonis naudojamas:

- Kaip medžiaga branduolinėms bomboms
- Kaip branduolinis kuras ir kaip žaliava jam gaminti
- Dūmų (dujų) sensoriuose
- Kituose energijos šaltiniuose (erdvėlaiviuose, širdies ritmo stimulatoriuose)

Plutonio radionuklidai į gyvą organizmą gali patekti prarijus ar įkvėpus jų, tačiau jie gali patekti ir per atviras žaizdas.

### 1.3 Didieji $^{137}\text{Cs}$ ir plutonio izotopų kilmės šaltiniai

**Branduolinio ginklo bandymai.** Pirmasis branduolinio ginklo bandymas „Trinity“ įvyko 1945 metų Liepos 16 dieną. Yra keturi branduolinio ginklo bandymų tipai:

1. Atmosferinis – ginklas išbandomas atmosferoje, dažniausiai ginklas būdavo patalpinamas ant bokšto, metamas iš lėktuvo, prikabinamas prie baliono.
2. Požeminis – branduolinis ginklas užkasamas ir susprogdinamas, tai buvo dažniausias bandymų metodas.
3. Egzoatmosferinis – ginklai raketų pagalba pakeliami už atmosferos ribų susprogdinami.
4. Povandeninis – Ginklai sprogdinami po vandeniu.

Ginklų bandymų atmosferoje metu į stratosferą pateko apie  $960 \cdot 10^{15}$  Bq  $^{137}\text{Cs}$ . Iškritų į žemės paviršių tankis sudarė vidutiniškai  $3,14 \cdot 10^3$  Bq/m<sup>2</sup> [1].

Per branduolinio ginklo bandybus į atmosferą buvo išmesta maždaug 10000 kg plutonio.

**Branduolinės jėgainės.** Radioaktyvieji cezio izotopai  $^{137}\text{Cs}$  ir  $^{134}\text{Cs}$  gaminasi kuro strypuose dėl branduolių dalijimosi, skilimo ir aktyvacijos. Radioceziis gali būti išskirtas iš panaudoto branduolinio kuro įleidus azoto rūgštis. 1 MW elektrinės galios sukuria net 130 TBq  $^{137}\text{Cs}$ , o 2000 metais visose pasaulio branduolinėse jėgainėse sukaupta apie  $10^{21}$  Bq  $^{137}\text{Cs}$ . Saugiai veikiant elektrinei  $^{137}\text{Cs}$  į aplinką

patenka labai mažai. Eksperimentiškai įvertinta, kad PWR reaktoriuje 1 GW elektrinės galios į aplinką išmetama apie 30 GBq  $^{137}\text{Cs}$ . [1].

Branduolinės jėgainės per metus pagamina apie 70-75 tonas plutonio per metus.

**Fukušimos Daiiči avarija.** 2011 m. Kovo 11 d., 14:26 val. įvyko 9.0 balų pagal Richterio skalę žemės drebėjimas, kuris sukėlė cunamį, o šis – stipriai apgadino Fukušimos Daiiči branduolinę jėgainę. Žemės drebėjimo metu 1, 2 ir 3 reaktoriai veikė, o kiti trys 4, 5 ir 6 buvo šaltojo išjungimo būsenoje periodiniam patikrinimui ir techninei priežiūrai.

1, 2 ir 3 reaktoriai po žemės drebėjimo išsijungė automatiškai, o atsarginiai generatoriai automatiškai įsijungė, tam kad būtų galima kontroliuoti elektroniką ir aušinimo sistemas. Cunamio bangos ir potvynis sugadino atsarginius generatorius, reikalingus reaktorių aušinimui.

Kadangi aušinimo procesas buvo nutrauktas, aukšta temperatūra didžiąją dalį vandens pavertė garais, taigi kai kurie kuro strypai perkaito, atvirai sąveikavo su vandens garais ir ėmė gaminti vandenilį. Tam, kad išvengtų kuro žalos, operatoriai įleido vandens iš išorinių šaltinių. Pirmiausia įleido jūros vandens, o vėliau ir švaraus vandens. Tačiau įleistas vanduo pavirto garais ir dar labiau padidino slėgį po kiautu. Operatoriai išventiliavo šias dujas į atmosferą. Įvyko keturi vandenilio sproginiai:

- Kovo 11 d. pirmajame reaktoriuje
- Kovo 14 d. trečiajame reaktoriuje.
- Kovo 15 dieną įvyko dar du sproginiai – ketvirtojo reaktoriaus kuro baseine ir antrajame reaktoriuje.

Gaisrai ir galimi daliniai reaktoriaus šerdies išsilydimai lėmė radioaktyvaus skilimo produktų išmetimą į atmosferą. Dėl to ir į orą, ir į vandenį pateko radionuklidai. NISA (*ang. Nuclear and Industrial Safety Agency*) duomenimis  $^{137}\text{Cs}$  į atmosferą buvo išmesta nuo  $6,1 \cdot 10^{15}$  Bq iki  $1,3 \cdot 10^{16}$  Bq

Avarijos pasekmės buvo prognozuojamos 4 lygio INES skalėje (*ang. International Nuclear Event Scale*), tačiau vėliau pakeltos iki didžiausio – 7 lygmens, nors išmestų radioaktyvių medžiagų kiekis sudarė vos 10% Černobylio avarijos išmestų radioaktyvių medžiagų kiekio.

**Černobylio avarija.** Įvyko 1986 metais balandžio 26 d., ketvirtajame Černobylio atominės elektrinės bloke, dabartinės Ukrainos teritorijoje. Tai – didžiausia avarija branduolinės energetikos



istorijoje, vertinant pagal žuvusiųjų skaičių ir ekonominę žalą. Vienos avarijos priežasties, kuri suvienytų visus branduolinės fizikos ekspertus – nėra, tačiau ekspertai sutinka dėl bendro avarijos scenarijaus.

Ketvirtasis blokas, veikęs beveik 3 metus turėjo būti sustabdytas suplanuotam remontui atlikti, tačiau prieš sustabdant reaktorių buvo planuota atlikti eksperimentą, kurio tikslas – išsiaiškinti, ar esant avarinei situacijai ir užgesus reaktoriui, iš inercijos besisukantis turbinos rotorius galės pagaminti užtekinai elektros energijos, kol įsijungs atsarginis dyzelinis variklis. Eksperimento metu buvo padarytos kelios neleistinos klaidos, o tarp jų – išjungta automatinė avarinė išjungimo sistema. Dėl klaidingų operatoriaus veiksmų, galia pradėjo staigiai didėti ir reaktorius tapo nevaldomas. Įvyko galingas sproginimas, kurio metu iš reaktoriaus išskriejo grafito gabalai ir sukėlė 30 gaisro židinių. Šių židinių gesinimui priskiriama 31 auka.[2]

Radioaktyviosios medžiagos į aplinką pasklido vos per 10 dienų, šį pasklidimą galima suskirstyti į 4 fazes [3]:

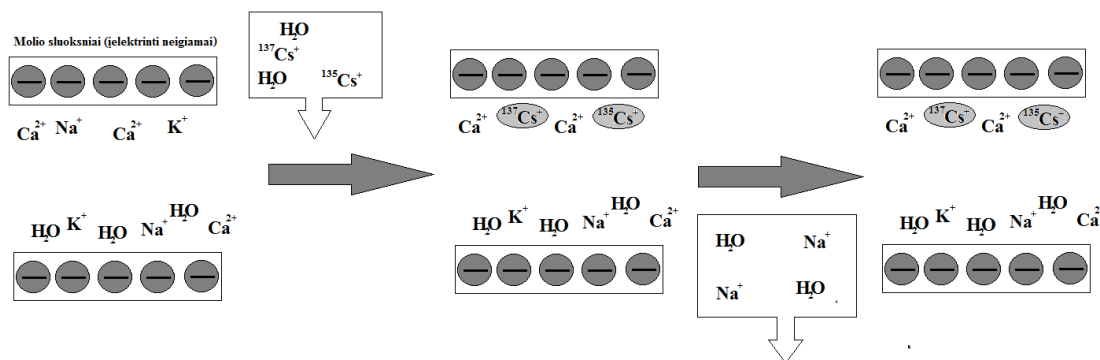
1. Pirmoji diena – įvykus sproginimui ir gaisro į aplinką pateko 25% radionuklidų.
2. Kitos 5 dienos – dėl gesinamo gaisro ir reaktoriaus šaldymo radioaktyviųjų medžiagų pasklidimas sumažėjo 6 kartus. Vyko gesinimas smėliu iš sraigtasparnių.
3. Kitos 4 dienos – Reaktoriaus kuras vėl įkaito iki 2000 laipsnių Celsijaus, išmetų kiekis pasiekė 70% primini.
4. Viso, praėjus 9 dienoms – išmetų kiekis į atmosferą tesiekė vos 1% pirminio.

Viso į aplinką buvo išmesta  $14 \cdot 10^{18}$  Bq, iš jų  $^{137}\text{Cs}$  buvo  $0,085 \cdot 10^{18}$  Bq [3]. Iškritos pasiskirstė 200 000 km<sup>2</sup> plote, apie 70% sudarė Rusijos, Baltarusijos bei Ukrainos teritorijos.

Plutonio per šią avariją buvo išmesta labai mažai, 5-6 kg.

#### 1.4 Radionuklidų migracija dirvožemyje

Nuo dirvožemio tipo priklauso efektyvusis difuzijos koeficientas ir radionuklidų vertikalios migracijos greitis. Kadangi efektyvusis difuzijos koeficientas skirtingiems dirvožemiams skiriasi, taigi santykinis radionuklido aktyvumas turi savitą sklaidos profilį. Radionuklidai gali arba migruoti pernešami vandens, arba prisitvirtinti prie dirvožemio struktūrinių dalių. Radiocezio jonai sąveikauja su dirvožemio dalelėmis grįžtamaisiais jonų mainais (žr. 1 pav.)



1 pav. Radiocezio fiksacija dirvožemyje [4]

Fiksacija pasireiškia tuo, kad ji sumažina radionuklidų patekimą į gruntinius vandenis, o tai reiškia ir į žemės ūkio produktus, kuriuos vartoja žmonės ar gyvūnai. Tačiau fiksacija yra grįžtamasis procesas, todėl ilginiui radioceziu vis tiek gali būti užteršti maisto produktai ir vanduo.

Radioaktyviųjų medžiagų migracija dirvožemyje priklauso tiek nuo dirvožemio charakteristikos (struktūros, pH), tiek nuo fizinių ir cheminių pačių medžiagos savybių. Dažniai pakanka dirvožemį suklasifikuoti pagal struktūrinių dalelių dydį: žvyras (> 2mm), smėlis (0,05-2mm), priesmėlis, priemolis (0.002 - 0.05 mm), molis (< 0.002 mm). Didžiausią reikšmę augalams turi paviršinis (ariamasis) – maždaug 30 cm gylio sluoksnis.

Radioaktyviosios medžiagos, patekusios ant dirvos iš pradžių telkiasi viršutiniame sluoksnyje. Prasiskverbimas giliau priklauso nuo kritulių kiekio. Šis procesas dažniausiai yra labai lėtas

## 1.5 Ilgaamžių radionuklidų vertikaliosios migracijos dirvožemyje modelių analizė

Vertinant ilgalaikę radionuklidų migraciją dažniausiai naudojamas vienas iš šių metodų:

1. **Kamerų** – taikomas, jei apie vertikalią radionuklidų sklaidą yra sukaupta pakankamai eksperimentinių matavimų duomenų įvairiais laiko momentais. Taikant šį metodą daroma prielaida, kad radionuklidai yra tolygiai pasklidę tam tikro storio dirvožemio sluoksniuose. Taip pat, daroma prielaida, kad radionuklido pernaša iš pirmojo sluoksnio į antrąjį yra proporcinga pirmajame sluoksnyje sukaupiamam radionuklido aktyvumui, bet nepriklauso nuo aktyvumo antrajame.

Aktyvumo pernaša laikui bėgant galima aprašyti tokia pirmos eilės diferencialinių lygčių sistema:

$$\frac{dA_1(t)}{dt} = d_s - [\lambda_r + k_{12}]A_1(t) \quad (1)$$

$$\frac{dA_1(t)}{dt} = -[\lambda_r + k_{i,i+1}]A_1(t) + k_{i,i+1} + A_{i-1}(t) \quad (2)$$

2. **Atgalinio srauto** – taikomas norint įvertinti ilgalaikius dirvožemio taršos pokyčius dėl radionuklidų vertikaliosios migracijos (abiem kryptimis).

$$\frac{dA_1(t)}{dt} = d - [\lambda_r + k_{12}]A_1(t) + k_{21}A_2(t) \quad (3)$$

$$\frac{dA_i(t)}{dt} = -[\lambda_r + k_{i,i+1} + k_{i,i-1}A_i(t) + k_{i-1,i}A_{i-1}(t) + k_{i+1,i}A_{i+1}(t)] \quad (4)$$

### 3. Konvekcijos ir dispersijos

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} - kC - \lambda C \quad (5)$$

$$\frac{\partial B}{\partial t} = kC - \lambda C \quad (6)$$

čia: D - difuzijos koeficientas, k - spartos koeficientas (iš judrios į surištąją fazę), λ- Cs gyvavimo trukmė, z - vertikalioji koordinatė (gylis). Koeficientai D ir k yra pastovūs, priklausantys nuo grunto charakteristikų.

#### 1.6 FEP analizė, kamerų modelis ir pagrindinės sąvokos

FEP (*ang. Features Events and Proceses*) analizės metodas patogus, norint paprastai pavaizduoti radionuklidų migracijos procesus ir sudaryti radionuklido sklaidos modelį. 2 pav. pateikta lentelės dalis, kuris aktualus šiam darbui – kaip <sup>137</sup>Cs ir Pu izotopai iš atmosferos pereina į dirvą.

Atmosfera (oras)	intercepcija; lietus; sniegas	intercepcija	intercepcija; lietus; sniegas		
transpiracija; degimas	Pušų spygliai	translokacija;	vėjas; spyglių kritimas		
degimas	translokacija	Pūšis	vėjas; intercepcija	Fertilizacija	Fertilizacija
resuspencija		lietaus pūslai	Miško paklotė	Dekompozicija; Perkoliacija	Filtravimas
		per šaknis		Dirva (organinė)	Filtravimas; difuzija ar advekcija
		per šaknis			Dirva (mineralinė)

2 pav. FEP analizės matrica sistemai atmosfera – dirva [5]

**Resuspencija** (arba **antrinis radionuklidų perkėlimas**) – tai procesas, kurio metu ant paviršiaus nusėdusios radioaktyvios iškritos perkeliama į orą kartu su dirvožemio dalelėmis. Tai gali vykti dėl žmogaus veiklos ar vėjo poveikio, o kartais ir dėl kitokių dirvožemio paviršiaus mechaninių trikdžių. Šis radioaktyvios taršos būdas būdingas tiems ilgaiamžiams radionuklidams, kurių vyraujanti apšvitos tarša yra inhaliacinė.

**Translokacija** – radionuklidų, iškritusių ant augalijos paviršiaus absorbcija į augalo vidinius (požeminius) audinius. Būdinga mobiliems elementams (pvz.: ceziui.), nebūdingas aktinidams.

**Advekcija** – radionuklidų pernaša su tėkmės srautu.

**Difuzija** – procesas, kuriam vykstant skystos arba dujinės būsenos medžiagos molekulės (radionuklidai) skverbiasi iš didesnės koncentracijos vietų link mažesnės koncentracijos pagal koncentracijos gradientą, kol pasiskirsto vienodai.

**Fertilizacija** – tai dirvožemio tręšimas nukrintančiomis organinėmis augalo dalimis.

**Degimas** – tai, šiuo atveju paties medžio (pušies) ar jos spyglių degimas, virtimas į mažas daleles, kurios lengvai patenka į atmosferą.

**Radionuklidų patekimas per šaknis** - šis procesas vyksta kai radionuklidas esantis vandenyje per šaknis patenka į augalą.

**Intersepcija** – tai iš atmosferos nusėdančių radionuklidų pagava ant augalo paviršiaus.

**Perkoliacija** – tai radionuklidų pereiga į gilesnius sluoksnius.

## 1.7 Sorbcijos procesas ir radioaktyviųjų teršalų pasiskirstymo koeficientas

Sorbcija – tai vienos medžiagos sugertis kita. Sorbcijos reakcijos skirstomos į tris kategorijas:

1. Jonų mainų
2. Vidinės sferos kompleksodaros
3. Išorinės sferos kompleksodaros

Parametras  $K_d$  – tai radioaktyviųjų teršalų pasiskirstymo tarp kietosios ir skystosios fazių koeficientas.

$$K_d = \frac{C_e}{C_a} \left[ \frac{m^3}{kg} \right], \quad (7)$$

Čia:

$C_e$  – elemento koncentracija paviršiuje [mol/kg],

$C_a$  – elemento koncentracija tirpame [mol/m<sup>3</sup>],

Masės pusiausvyra iššreišiama tokia lygtimi:

$$mC_e + VC_a = VC_a^0, \quad (8)$$

Čia:

$C_a^0$  – prad. medžiagos koncentracija,

V – tirpalo tūris,

m – medžiagos masė (kietosios),

$$K_d = \frac{(C_a^0 - C_a)}{C_a} \cdot \frac{V}{m} \quad (9)$$

$K_d$  visada taikomas konkrečiai sistemai, taigi sąlygos, kuriomis atliekamas eksperimentas yra labai svarbios. Įprastai, mažėjant pH, kartu sumažėja ir gebėjimas absorbuoti sumažėja, tačiau tai galioja tik lantanoidams ir trivalenčiams aktinoidams.

## 1.8 Radiocezio vertikaliosios sklaidos tyrimai

Šiame poskyryje apžvelgiami įvairūs tyrimai, norint įvertinti teorinio modeliavimo tikslumą, bei suprasti įvairių veiksnių įtaką – vandens, vietovės, dirvos charakteristikų.

Praėjus maždaug metams nuo Černobylio avarijos, 1987-1988 metais Vokietijoje surinkti dirvos mėginiai, tyrimo tikslas buvo iširti trijų rūšių dirvos radioaktyviają taršą ceziu. 3 pav. A mėginio matavimų grafike matome, kad didžiausias aktyvumas yra organinėje dalyje, taip gali būti dėl to, kad sklindant radioaktyviajam debesui, aerzolinės dalelės prikibo prie augalų lapų ar spyglių, o šie vėliau nukrito ant žemės paviršiaus. Aktyvumas gali būti didesnis ir dėl to, kad 1987 metais cezis dar nespėjo



Šie matavimai parodė, kad Černobylio avarijos  $^{137}\text{Cs}$  iškritos sudaro didelę dalį viso  $^{137}\text{Cs}$  aptikto matavimų metu. Neeroduojančioje ir nesuartoje dirvose (Czarnocin plotas)  $^{137}\text{Cs}$  koncentracija labai greitai mažėja didėjant gyliui (2 priedas). Galime daryti išvadą, kad migracijos procesas yra lėtas ir net praėjus maždaug 30 metų po Černobylio avarijos  $^{137}\text{Cs}$  vis dar susikoncentravęs viršutiniuose sluoksniuose, o tai rodo, kad cezis stipriai parkimba prie dirvos dalelių.

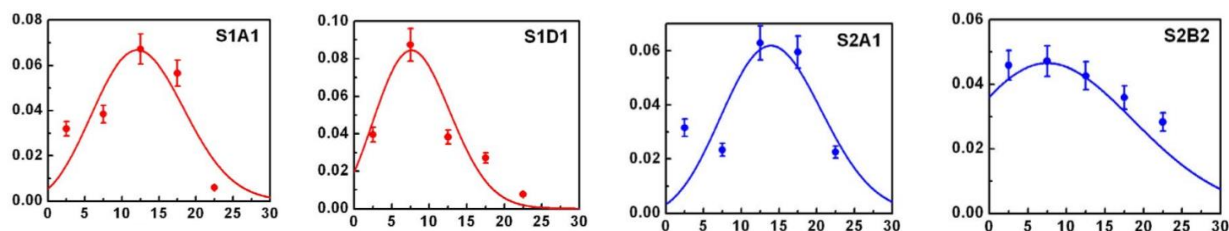
Rezultatai Chechlo aikštelėje bandinių vertikalios migracijos kreivių profilis labai panašus, tačiau matome, kad B ir C atveju 40-45 cm gylyje pastebimi aktyvumo padidėjimai, gali būti, kad gilesniuose sluoksniuose taip pat yra cezio koncentracijos, tačiau tai galimą patvirtinti tik atlikus papildomus matavimų.

Argentinoje 2008 atliktame tyrime [9] mėginiai buvo paimti iš dviejų aikštelių:

**S1:** 33° 40' 10" S, 65° 23' 27" W

**S2:** 33° 39' 56" S, 65° 23' 16" W

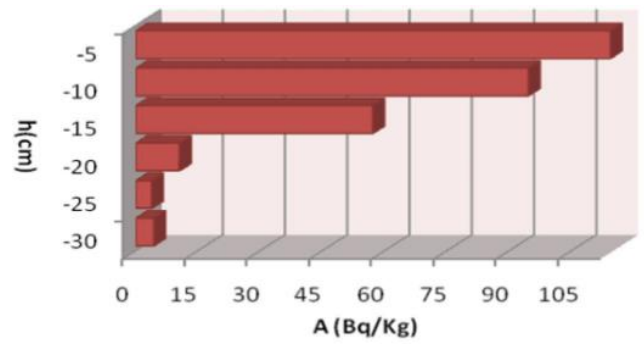
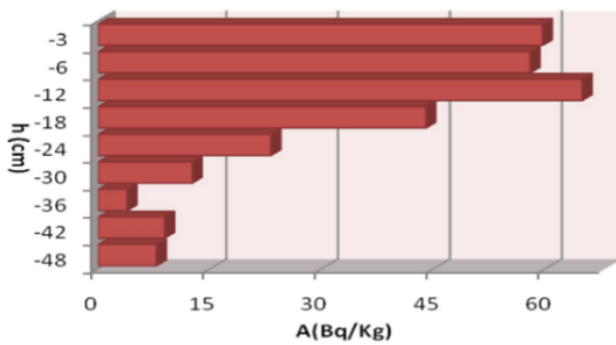
Mėginiai buvo imami iš 25 cm gylio duobės, vienam matavimui sluoksnio storį imant po maždaug 5 cm, kiekvienas sluoksnis buvo atskiriamas, supresuojamas ir pamatuojamas jo aktyvumas. Tyrėjai taip pat sumodeliavo teorines kreives.



5 pav. Teoriškai apskaičiuoti ir išmatuoti cezio vertikalios migracijos profiliai Argentinoje – santykinio  $^{137}\text{Cs}$  aktyvumo priklausomybė nuo gylio [9]

Iš 5 pav. matome, jog matavimų rezultatų vertės yra labai artimos sumodeliuotoms, taigi galime teigti, jog remiantis difuzijos-advekcijos modeliu gana geru tikslumu galima nustatyti  $^{137}\text{Cs}$  vertikaliosios migracijos profilį.

2011 metais Rumunijoje buvo titiami du dirvos mėginiai. 10 pav. pavaizduotas šių mėginių  $^{137}\text{Cs}$  koncentracijų pasiskirstymas



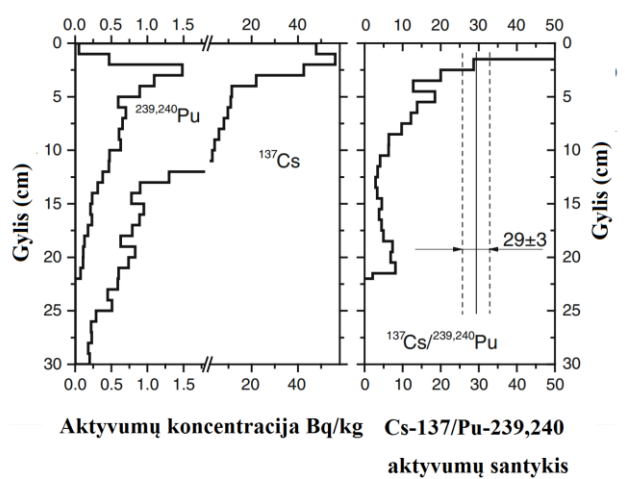
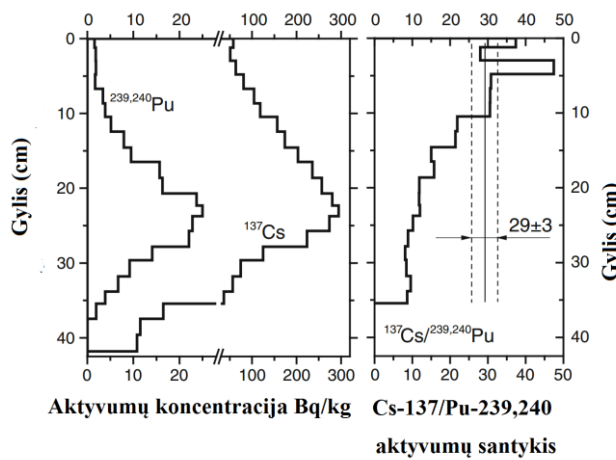
**A**

**B**

**6 pav.** Cezio vertikalios migracijos profilis A- mėginyje, paveiktame vandens, B – mėginyje, nepaveiktame vandens [10]

Bandinys A buvo paimtas vos kelių metrų atstumu nuo bandinio B, t.y. abu bandiniai buvo paimti iš to pačio ploto, mėginių dirva buvo tokios pačios rūšies, tačiau esminis skirtumas yra tas, kad A viršutis sluoksnis – tai maža duobė, kuri lyjant prisipildo vandeniu. Šis tyrimas puikiai iliustruoja cezio nuplovimo vandeniu įtaką vertikalijai migracijai.

Tyrimė atliktame 2014 Lietuvoje [11], netoli Juodžio ežero (54 deg 46' 49" N, 25 deg 26'29"E), buvo paimti du mėginiai – miške ir prie pat ežero.



A – Ežero dugnas

B – Miško dirva

**7 pav.** Cs-137 ir Pu izotopų aktyvumo bei jų santykio priklausomybė nuo gylio.[11]



Mėginyje, paimtame iš ežero dugno, pastebėta viena ryški smailė (~295 Bq/kg), 23 cm gylyje. *Manoma, kad ši smailė atsirado dėl branduolinio ginklo bandymų 1963 m. Černobylio avarijos smailė nematoma, nes iškritos dirvą veikė labai trumpai ir vanduo jas galėjo išplauti.* [12]

Miško dirvoje matomos dvi smailės. Pagrindinė smailė (~56 Bq/kg) matoma viršutiniame sluoksnyje (~2 cm gylyje) - tai Černobylio avarijos smailė. Antroji smailė – branduolinio ginklo bandymų, matoma 13-14 cm gylyje. Iš 7 pav. matome, kad Pu izotopai yra susikoncentravę giliausiuose sluoksniuose. Dėl didelių matavimo paklaidų apie plutonio izotopų santykį ypatingai svarbių išvadų padaryti negalime, tačiau vidutinės vertės perša išvadą, kad izotopai greičiausiai yra branduolinio ginklo bandymų kilmės, taip pat, matome, kad giliausiuose sluoksniuose jis sumažėja.

7 pav. aiškiai matome, kad didžiausias  $^{137}\text{Cs}/^{239,240}\text{Pu}$  koncentracijų santykis yra 5,74 cm gylyje, vidutinės vertės rodo, kad greičiausiai taršą lemia tik branduolinio ginklo bandymai, ši smailė atsirasti galėjo dėl  $^{137}\text{Cs}$  migracijos ir susikaupimo tame sluoksnyje

1 Lentelėje pateikiami rezultatai gauti iš įvairių tyrimų visame pasaulyje. Ši informacija, leidžia palyginti mūsų gautus rezultatus, su kitais tyrimais.

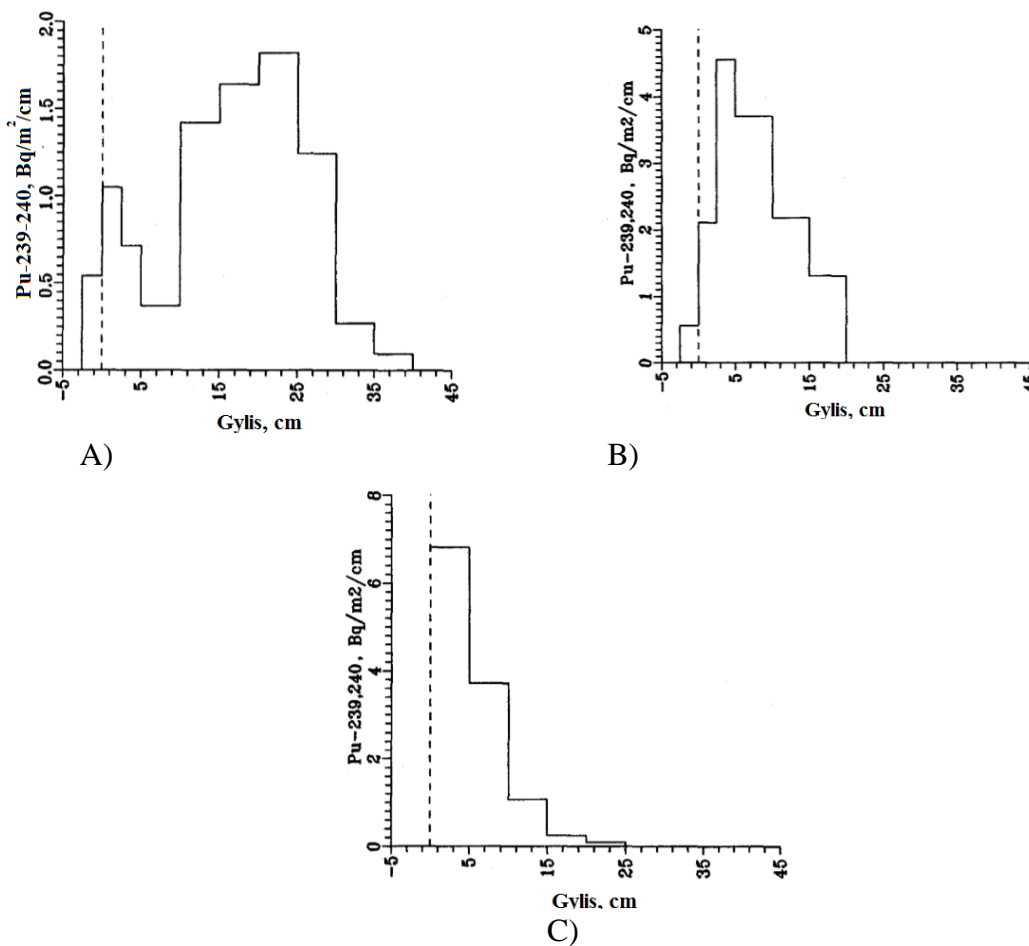
**1 Lentelė** <sup>137</sup>Cs koncentracija visame pasaulyje

Vietovė	<sup>137</sup> Cs koncentracija (Bq/kg)	Šaltinis	Metai
<i>Ordu, Turkey</i>	67,4 – 275,3	[13]	2010
<i>Venezuela</i>	5	[14]	1994
<i>Bangladesh</i>	7 (3-10)	[15]	1998
<i>Majorca (Spain)</i>	10-60	[16]	1997
<i>Inshass, Cairo (Egypt)</i>	1,6-19,1	[17]	1998
<i>Algeria</i>	15-35	[18]	1997
<i>Louisiana (USA)</i>	5-58	[19]	2002
<i>Mintenegrin coats (Yugoslavia)</i>	1,5-28,4	[20]	1998
<i>Sudan</i>	0-18,5	[21]	1997
<i>North-Western Lybia</i>	0,9-1,7	[22]	2001
<i>Riydh (Saudi Arabia)</i>	0-2	[23]	2001
<i>Northern Taiwan</i>	1,48-27	[24]	1997
<i>Punjab provice (Pakistan)</i>	2,8 ± 1 (1,1-5,3)	[25]	2005
<i>Pakka Anna, Pakistan</i>	3,6 (3,57-3,63)	[26]	2006
<i>Southern part of Punjab, Pakistan</i>	1,6	[27]	2008
<i>Mid-Rechna, Pakistan</i>	3,5	[28]	2010
<i>Punjab Province, Pakistan</i>	2,18	[29]	2011
<i>Charsaddah, Pakistan</i>	7,1 ± 2,0	[30]	1994

## 1.9 Plutonio vertikaliosios sklaidos tyrimai

Lenkijoje, Lublino regione atliktame tyrime [31] buvo nustatyti 3 mėginių plutonio izotopų vertikaliosios migracijos profiliai. Mėgino paėmimo metodika, panaši į Cezio mėginių paėmimo metodiką.

Aktyvumai buvo matuojami Canberra Alfa spektrometrais, absoliutusias efektyvumas  $35\pm 3\%$ , esant 0,5 cm atstumui tarp detektoriaus ir šaltinio.



8 pav. Pu izotopų koncentracijos santykis Lublino regione

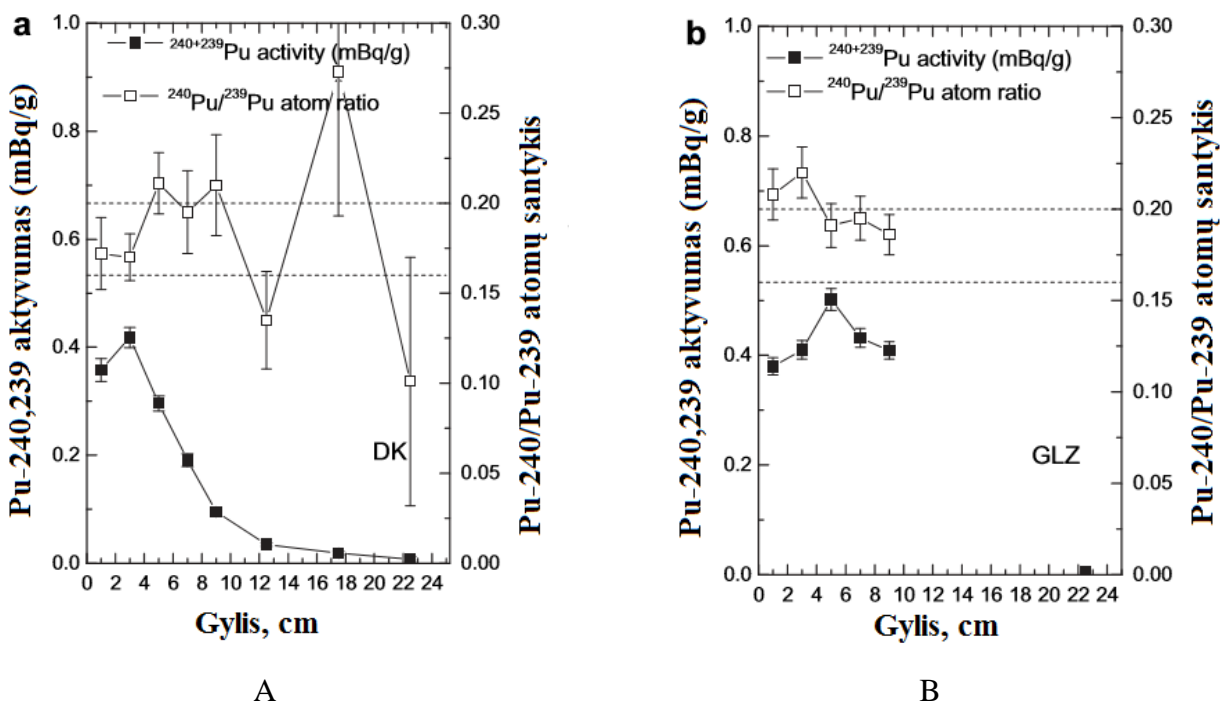
Vidutinė  $^{239,240}\text{Pu}$  koncentracija dėl Černobylio avarijos mėginyje A yra 2,9%, mėginyje B vos 0,7%. Visa aptikta  $^{239,240}\text{Pu}$  tarša skirtinguose mėginiuose svyruoja nuo  $40 \text{ Bq/m}^2$  iki  $60 \text{ Bq/m}^2$ , vidutinė vertė  $51\pm 9 \text{ Bq/m}^2$ .  $^{238}\text{Pu}$  nuo  $1,5 \text{ Bq/m}^2$  iki  $2 \text{ Bq/m}^2$ , o vidutinė vertė  $1,8\pm 0,9 \text{ Bq/m}^2$ .

Šios vertės artimos kitam tyrimui [32]

Šio tyrimo metu sumodeliuotas ir įvertintas plutonio migracijos greitis – bendras teršalų vidutinis migracijos greitis yra 0,4 cm/metus, černobylio avarijos atneštų teršalų – 0,7 cm/metus.

Šios vertės panašios į kitų tyrmų vertes [33, 34]

2016 metais Kinijoje atliktame tyrime [35] masių spektroskopijos metodu buvo nustatyti plutonio izotopų santykiai. Mėginių paėmimo metodika panaši kaip ir anksčiau aprašytuose tyrimuose. Išmatuoti aktyvumų intervalai buvo tarp 0,0019 mBq/g ir 0,502 mBq/g.  $^{239+240}\text{Pu}$  aktyvumas išmatuotas 45 – 55 Bq/m<sup>2</sup>, o  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  santykis svyravau nuo 0,172 iki 0,220, šios vertės yra tipinės tokiems tyrimams. Daroma išvada, kad branduolinio ginklo bandymai turėjo labai mažą įtaką visam aktyvumui, arba plutonio izotopų santykis buvo labai panašus.

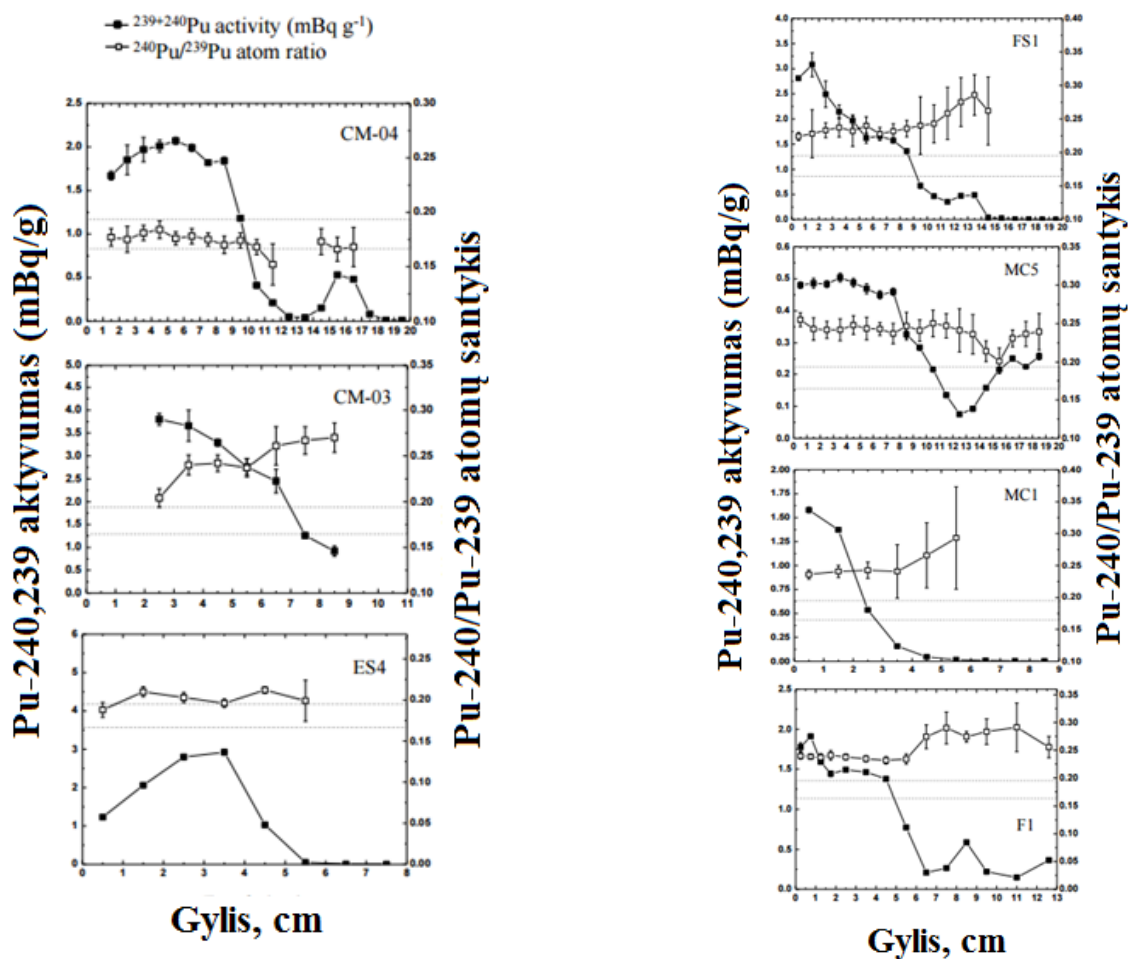


9 pav. Plutonio izotopų aktyvumų santykių priklausomybė nuo gylis, Kinijoje skirtingose mėginių ėmimo vietose [36, 37, 68]

9 pav. punktyrine linija pažymėtos kitų, anksčiau atliktų tyrimų metu gautos tipinės vertės [36, 37, 38]

Daugiausia Pu aptikta 2-4 ir 4-6 cm sluoksniuose, viso 90% Plutonio aptikta pirmuose 10 cm, tai rodo, kad klimato sąlygos ir organikos kiekis dirvoje yra du pagrindiniai faktoriai įtakojantys vertikalią Plutonio migraciją dirvoje.

Tyrime, publikuotame 2013 metais, atliktame Japonijoje [39], buvo tiriamos jūros dugno nuosėdos.

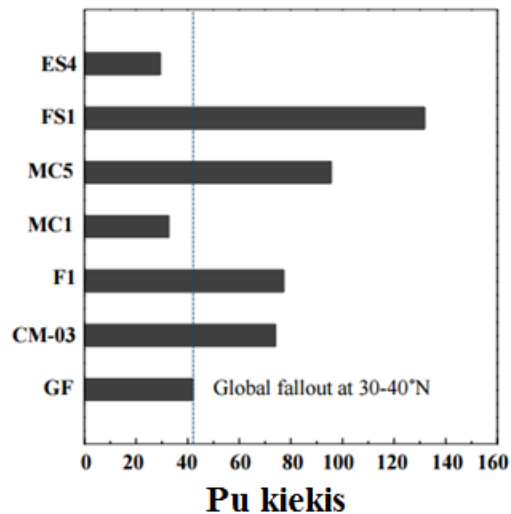


10 pav. Plutonio izotopų aktyvumų ir atominis santykis jūros dugno nuosėdose [39]

Punktyrinės linijos žymi taršą, atsiradusią dėl branduolinio ginklo bandymų (ang. global fallout) ir CM-03 ir CM-04 yra iš kito tyrimo [40]

10 pav. Matome, kad visi 5 mėginiai paimti šio tyrimo metu ir 2 palyginamieji mėginiai iš kito tyrimo turi skirtingus profilius;

- MC1 ir FS1 didžiausias santykis buvo paviršiuje, ir santykio vertė mažėjo didėjant gyliui
- F1 ir MC5 stebimos maždaug vienodos aktyvumo vertės nu paviršiaus iki pat 5-8 cm gylio.
- Panašūs pastebėjimai padaryti ir mėginiams CM-03 ir CM-04 [41]



11 pav. Įvairių mėginių aktyvumas dėl branduolinio ginklo bandymų [39]

FS1 mėginys buvo paimtas arčiausiai Fukušimos Daiiči branduolinės jėgainės.

Aktyvumo vertės šiuose mėginiuose taip pat yra įvairios – F1 vertės daugiau nei dukart didesnės už MC1. Įdomu tai, kad šie mėginiai imti labai arti vienas kito

CM-03 mėginys, paimtas 200 km nuo Fukušimos branduolinės jėgainės yra artimiausias mėginys netoli Fukušimos Daiiči branduolinės jėgainės, su žinomu  $^{239,240}\text{Pu}$  profiliu paimtas dar prieš avariją.

## **2. Eksperimento aprašymas**

### **Eksperimento planavimas**

Iš 2 skyriuje apžvelgtų tyrimų ir jų rezultatų [6-12, 31-41], galime išsirinkti pačias tiksliausias metodikas ir remiantis jomis suplanuoti eksperimentą taip, kad jo rezultatai turėtų kuo didesnę analitinę vertę: Matuojami sluoksnio storis pasirenkamas 1 cm, o mėginiams rinkti skirtas profilis pasirenkamas cilindro formos.

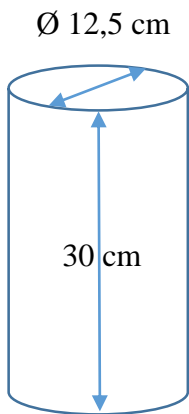
### **Mėginių surinkimas ir bandinių paruošimas**

Mėginiams surinkti naudojamas cilindro formos kolonėlė, kurios principinė schema yra pateikta 12 pav., ji įkalama į vietą iš kurios planuojame imti mėginius, tuomet ji apkasama iš šonų ir po jos apačia pakišamas plokščias pagrindas, kad keliant cilindrą dirva neiškristų pro apatinę cilindro dalį.

Mėginiai iki paruošimo matavimams saugomi uždareme konteineryje, kad nereaguotų su aplinka ar neprarastų sausos masės.

Mėginiai pradedami ruošti nuo viršaus:

1. Paimame dirvos sluoksnį
  - a. 1 sluoksnis – 1 cm sausos dirvos atveju
  - b. Pildome konteinerį ir išmatuojame aukštį (dugno nuosėdų atveju)
2. Mėginį patalpiname į žinomos geometrijos konteinerį, kurs yra pavaizduotas 13 pav.
3. Dirvą sumaišome su distiliuotu vandeniu
4. Paliekame išdžiūti
5. Pasveriamo mėginį



12 pav. Principinė kolonėlės schema



13 pav. Bandinys paruoštas matavimui

### **Plutonio izotopų bandinių paruošimas ir radiocheminė analizė**

Bandinio paruošimas matavimams vykdomas tokia tvarka:

#### **Bandinio paruošimas**

1. Deginti 700°C temperatūroje 2 valandas
2. Įvesti traserį  $^{242}\text{Pu}$  0,5 ml
3. 80 ml 3d HCl + 1 d HNO<sub>3</sub> – garinti
4. 10 ml H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> – garinti
5. 2 x 5 – 10 ml koncentruoto HNO<sub>3</sub> – garinti
6. 20-50 ml 8M HNO<sub>3</sub> – filtruoti
7. 200 ml H<sub>2</sub>O – filtruoti
8. Filtratą garinti
9. Užpilti 50 ml 1M HNO<sub>3</sub>
10. Įnešti 1 g Na<sub>2</sub>SO<sub>3</sub> ir 20 min maišyti
11. Įnešti 1 g Na<sub>2</sub>NO<sub>2</sub> ir 10 min maišyti
12. 50 ml konc. HNO<sub>3</sub>



### **Kortelės aktyvinimas**

1. 50 ml 1M HNO<sub>3</sub> (1,5 ml/min) praleisti
2. 50 ml 8M HNO<sub>3</sub> + 0,5 g NaNO<sub>2</sub> (1,5 ml/min) praleisti

### **Pasiruošimas elektrolizei**

1. Per kolonėlę bandinį leisti 1,5 ml/min greičiu
2. 30 ml 8M HNO<sub>3</sub> + 0,5 g NaNO<sub>2</sub> (sudėti prieš pat supilant)
3. 100 ml 8M HNO<sub>3</sub> + 1,2 g NaNO<sub>2</sub> (2-3 ml/min)
4. 15 ml 12M HCl + keli HCl kristalai
5. 100 ml 12M HCl (1-1,5 ml/min)
6. Išplauti 100 ml 4 M HCl + 0,6g Na<sub>2</sub>SO<sub>3</sub> – surinkti į 150 ml stiklinėles
7. Pu eliuentą garinti
8. Šlapias druskas 2-3 k. Sudeginti konc. HNO<sub>3</sub> ir H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>
9. 1 ml 0,3 M Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> garinti
10. 0,3 ml konc. H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> palaikoma kol pradeda skirtis SO<sub>3</sub> garai
11. 4 ml H<sub>2</sub>O pH 2,2 – 2,4, kogeneruojama su HN<sub>3</sub>
12. Elektrolizė 0,6 A – 1 val.

### **Kolonėlės regeneracija**

1. Leisti H<sub>2</sub>O, kol pasikeis splava
2. Paleisti 100 ml 8M HNO<sub>3</sub>
3. Leisti H<sub>2</sub>O, kol terpė taps nerūgštinė
4. Palikti kolkolonėlę

Mėginiai – miško dirvožemis, prie ežero esantis dirvožemis ir ežero dugno nuosėdos – išdžiovinami kambario temperatūroje, mechaniškai susmulkinami bei persijojami ir homogenizuojami. Tam, kad mėginyje neliktų organinės dalies visas ėminys periodiškai maišant deginamas mufelinėje krosnyje 700°C temperatūroje.

Plutonio izotopų ekstrahacija iš matricos vykdoma įvedus  $^{232}\text{Pu}$  traserį ir įpilant  $\text{HNO}_3$  tirpalo ( $8 \text{ mol/dm}^3$ ). Ekstrakcijos metu naudojame 30%  $\text{H}_2\text{O}_2$ . Visiškai pašaliname organinę anglį (jos gali likti po deginimo), nes ji trukdo tolimesniam kokybiškam radionuklido išskyrimui iš matricos.

Stabilius kompleksinius junginius sudaro tik  $\text{Pu}^{4+}$ , o tirpale plutonio būna įvairių oksidacijos laipsnių ( $\text{Pu}^{3+}$ ,  $\text{Pu}^{4+}$ ,  $\text{Pu}^{5+}$ ,  $\text{Pu}^{6+}$ ), taigi būtina visas valentines formas paversti į keturvalentę:

- $\text{Pu}^{4+}$ ,  $\text{Pu}^{5+}$ ,  $\text{Pu}^{6+}$  jonai, redukuojami iki  $\text{Na}_2\text{SO}_3$  (natrio sulfitu) iki  $\text{Pu}^{3+}$
- $\text{Pu}^{3+}$  jonai oksiduojami  $\text{NaNO}_2$  (natrio nitritu) iki  $\text{Pu}^{4+}$

Plutonio izotopai koncentruojami naudojant jonų mainų dervą DOWEX 1-8 (100-200 mesh)  $\text{NO}_3^-$  formoje. Kadangi plutonio haksanitratinis anijoninis kompleksas susidaro stipriai rūgštinėje azoto rūgšties terpėje, naudojamas  $\text{HNO}_3$  tirpalas ( $8 \text{ mol/dm}^3$ ), tam, kad būtų užtikrintas pilno komplekso susidarymas. Tirpalo tekėjimo per jonų mainų dervos sluoksnį greitis yra 1ml/min.

Trukdančių artimų plutoniui energijų radionuklidų (urano izotopai,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{210}\text{Po}$ ) ir stabilių makroelementų išplovimas iš chromatografinės kolonėlės vykdomas su  $\text{HNO}_3$  ( $8 \text{ mol/dm}^3$ ) +  $\text{NaNO}_2$  tirpalu.  $^{228}\text{Th}$  vykdomas su  $\text{HCl}$  ( $10 \text{ mol/dm}^3$ ) +  $\text{NaNO}_2$  tirpalu.

Šiais tirpalais išplaunant urano ir torio izotopus, dėl pakitusio plutonio oksidacijos laipsnio, tam tikra jo dalis gali būti prarandama, norint to išvengti,  $\text{Pu}^{4+}$  valentinė forma fiksuojama  $\text{NaNO}_2$ , o urano izotopų išplovimui paruošiamas  $\text{HNO}_3$  ( $8 \text{ mol/dm}^3$ ) +  $\text{NaNO}_2$  tirpalas.

Sistemos nitratinei terpei keičiantis į  $\text{HCl}$  terpę (torio pašalinimo metu), plutonio valentinė forma taip pat kinta, taigi plutonio valentinei formai stabilizuoti, naudojamas  $\text{NaNO}_2$ .  $\text{Pu}^{4+}$  anijoninis kompleksas, kuris adsorbavosi and jonų mainų dervos, suardomas, redukuojant  $\text{Pu}^{4+}$  į  $\text{Pu}^{3+}$ , tam naudojamas  $\text{HCl}$  ( $4 \text{ mol/dm}^3$ ) + 0,6 g  $\text{NaNO}_2$  tirpalas. Tirpalas ištekinamas iš kolonėlės ir išgarinamas. Druskos užpilamos elektrolitu ( $0,3 \text{ ml}$  koncentruotos  $\text{H}_2\text{SO}_4$  +  $1 \text{ ml}$   $0,33 \text{ mol/dm}^3$   $\text{Na}_2\text{SO}_3$ ).

Plutonio izotopai elektrochemiškai nusodinami ant nekoroduojančio plieno katodo, (išeiga 60-70%), srovės tankis  $0,6 \text{ A/cm}^2$ , elektrolizės trukmė 1 valanda.

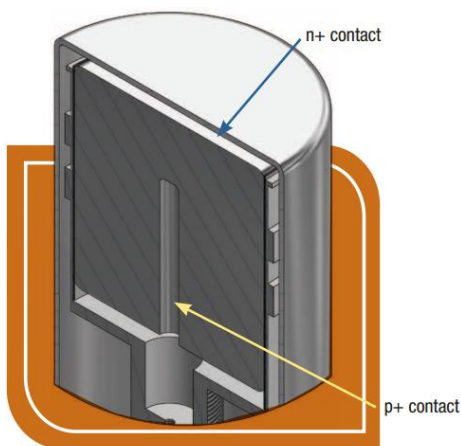
## Radioaktyvumo matavimai

Mėginiai talpinami į gryno germanio detektorių CANEBRRA GC2520. Gryno germanio detektorius tai cilindras su n-tipo germanio kontaktu išoriniame paviršiuje ir p-tipo kontaktu ašinio šulinio paviršiuje. Detektoriaus schema pateikiama 14 pav., o matavimams naudotas detektorius pavaizduotas 15 pav.

Germanio spektrometrinės sistemos naudojamos sudėtingų spektrų analizei, germanio detektoriai gali dirbti tik skysto azoto temperatūroje, pagrindinės jų savybės:

1. Fonas – spektras su smailėmis, nulemtomis ne aplinkos, o pačiame detektoriuje esančių radionuklidų, kosminės spinduliuotės.
2. Registravimo efektyvumas – santykis tarp fotonų užregistruotų ir šaltinio išspinduliuotų fotonų per laiko vieneta
3. Energijos skiriamoji geba – smailės plotis pusės maksimumo aukštyje (*angl. FWHM*)

Esminės šio detektoriaus savybės: Reliatyvusis efektyvumas 26,2%, rezoliucija 1,76 keV/1,33 MeV [11, 41]



14 pav. Koaksialinio Ge detektoriaus principinė schema [41]



15 pav. CANEBRRA gama detektorius su šarvu

## Matavimų eiga

Tam, kad galėtume atlikti mėginių gama spektrometrinius matavimus visų pirma turime sukalibruoti gama spektrometrą bei atlikti fono matavimus. Spektrų analizei naudojama programa Genie 2000.

1. Atliekamas energinis kalibravimas, tam kad nustatytume santykį tarp užregistruotos gama fotonų energijos ir kanalo, kuriame ta energija užregistruota. Kalibravimo procesas daromas pasinaudojant žinomų energijų gama fotonus spinduliuojančius radionuklidus.
2. Atliekamas efektyvumo kalibravimas, tam kad nustatytume gama spektrometrinės juostos jautrumą. Jis taip pat nustatomas, panaudojant žinomų aktyvumų radionuklidus.
3. Nustatomas fonas. Fono vertės vėliau atimamos iš spektrų užregistruotų tiriant mėginius.
4. Bandinys įstatomas į gama spektrometrą ir pradedami matavimai.
5. Matavimai atliekami pagal  $^{137}\text{Cs}$  skilimo produkto  $^{137\text{m}}\text{Ba}$  produkto smailę (0,6617 MeV) (2 Priedas)
6. Spektrams identifikuoti panaudojama programa Genie 2000, kurios pagalba spektrai aproksimuojami Gauso pasiskirstymo formos kreive, mažiausių kvadratų metodu.
7. Atlikus matavimą analizuojamas spektro smailės, identifikuojami radionuklidai esantys mėginyje.
8. Radionuklidų savitieji aktyvumai apskaičiuojami:

$$C = \frac{S}{\varepsilon t m \gamma} \quad (10)$$

C – savitasis aktyvumas, S – smailės plotas,  $\varepsilon$  – sistemos efektyvumas, t – matavimo laikas, m – mėginio masė,  $\gamma$  – nagraižamosios smailės gama fotonų kvantinė išėjga

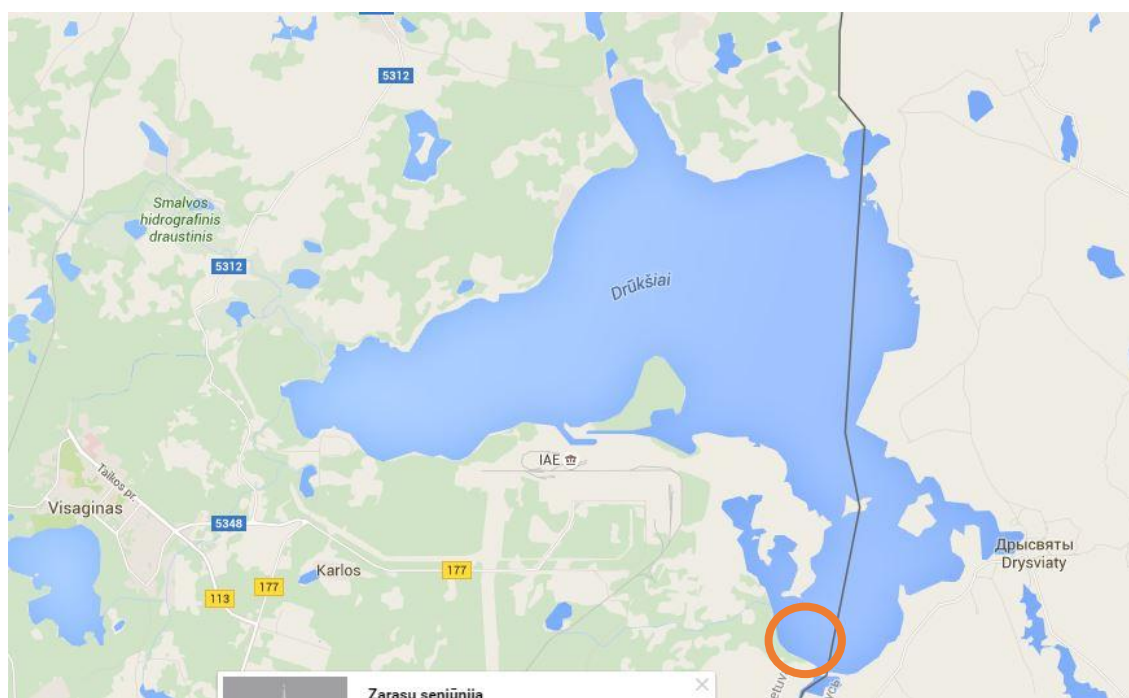
### 3. Rezultatai, jų analizė ir aptarimas

#### Ežerų dugno nuosėdų matavimų rezultatai

Šiame skyriuje pateikiami  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{239,240}\text{Pu}$  ir  $^{238}\text{Pu}$  matavimų rezultatai Drūkšių, Paršelio ir Juodžio ežero dugno nuosėdose

#### Drūkšių ežeras

Mėginių paėmimo vieta pavaizduota 16 pav., mėginiai buvo imami iš Drūkšių ežero dugno.

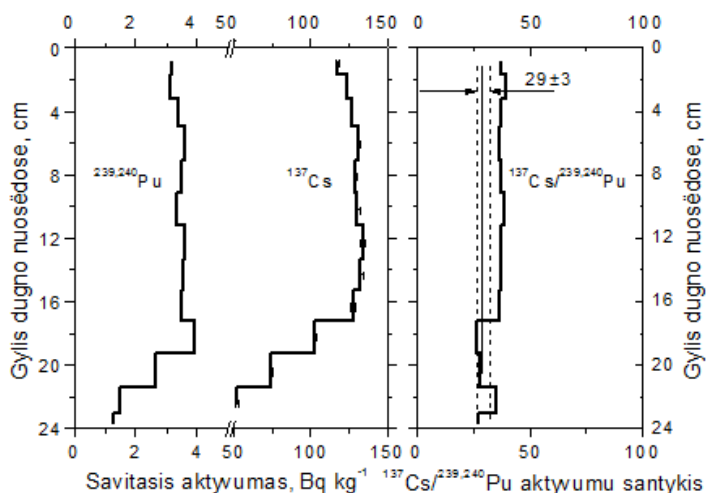


16 pav. Drūkšių ežero mėginių paėmimo vieta

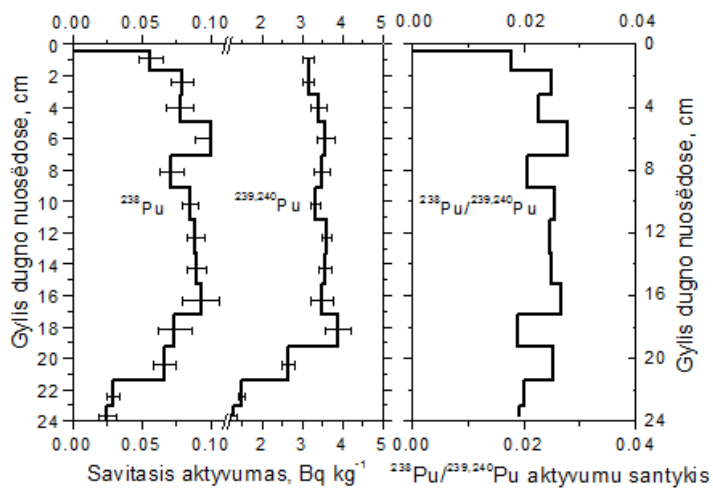
Matavimai Drūkšių ežero dugno nuosėdose pateikti 3 priede ir atvaizduoti 17 pav.

17 pav. matome, kad  $^{137}\text{Cs}/^{239,240}\text{Pu}$  santykis išlieka gana pastovus iki pat paskutiniųjų sluoksnių. Tikėtina, kad didesnės vertės užfiksuotos dėl Ignalinos atominės elektrinės veiklos įtakos, dėl  $^{137}\text{Cs}$  išleisto į Drūkšių ežerą su nutekamaisiais vandenimis galėjo pasiekti bandinio paėmimo vietą. Kadangi radionuklidai vandenyje juda daug greičiau nei dirvožemyje,  $^{137}\text{Cs}$  nesunkiai galėjo pasiekti dugną ir absorbuotis.

$^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$  santykis visuose sluoksniuose išlieka maždaug pastovus ir šiek tiek didesnis nei 0,2, net ir giliuosiuose sluoksniuose, taip yra dėl to, kad tiek  $^{238}\text{Pu}$ , tiek  $^{239,240}\text{Pu}$  aktyvumas giliausiuose sluoksniuose pradeda mažėti tokiu pat greičiu.



A

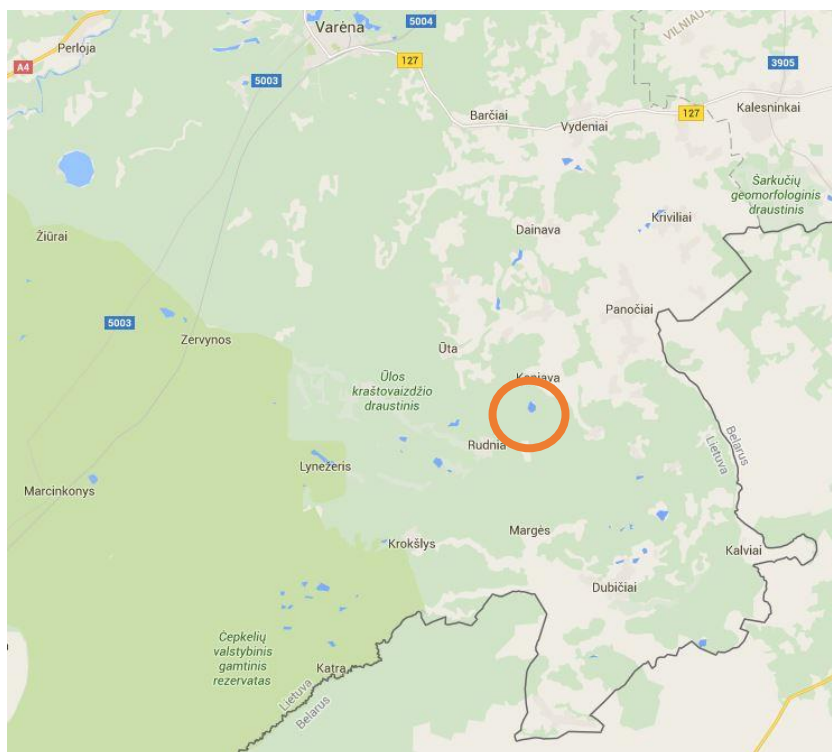


B

**17 pav.** Drūkšių ežero dugno nuosėdų matavimai: A –  $^{137}\text{Cs}$  ir  $^{239,240}\text{Pu}$  savitojo aktyvumo priklausomybė nuo gylio, B –  $^{238}\text{Pu}$  ir  $^{239,240}\text{Pu}$  savitojo aktyvumo priklausomybė nuo gylio

## Paršelio ežeras

Mėginių paėmimo vieta pavaizduota 16 pav., mėginiai buvo imami iš Paršelio ežero dugno.



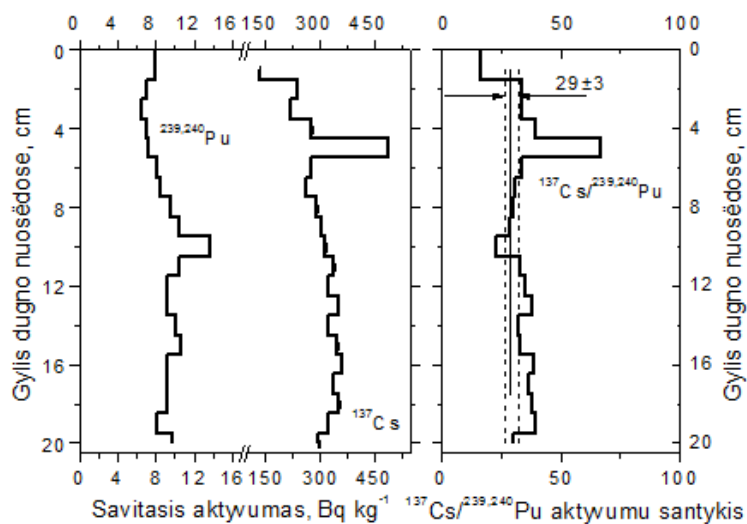
18 Pav. Paršelio ežero mėginių paėmimo vieta

19 pav. Pateikti Paršelio ežero matavimai atvaizduot grafiku. Matavimų rezultatai pateikti 4 priede.

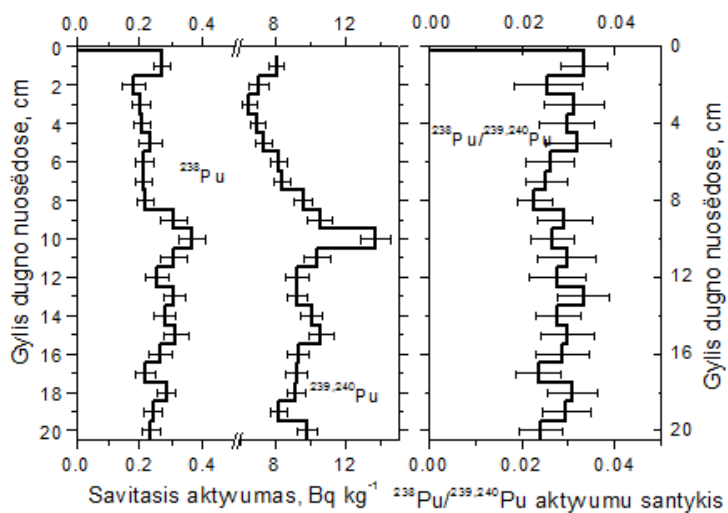
Galime pastebėti, kad labai išsiskiria  $^{137}\text{Cs}$  5 sluoksnio smailė, nepaisant to, santykis  $^{137}\text{Cs}/^{239,240}\text{Pu}$  išlieka labai panašus visame gylyje.

Dėl didelių paklaidų  $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$  grafike, ypatingų smailių pastebėti negalime, bet nors ir su paklaida, aiškiai matoma  $^{239,240}\text{Pu}$  smailė 10 sluoksnyje, taip pat, panašią smailę matome ir  $^{238}\text{Pu}$ .

$^{137}\text{Cs}/^{239,240}\text{Pu}$  santykis išlieka gana pastovus kaip ir Drūkšių ežero atveju, tačiau aiškiai matome smailę pradinių-vidurinių sluoksnių sankirtoje. Ji gerokai didesnė už tipinę santykio vertę branduolinio ginklo bandymams  $29 \pm 3$  Bq/kg, taigi, jos atsiradimas galėjo būti įtakotas ir Černobylio avarijos, nors ir  $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$  santykio vertė tame sluoksnyje šios prielaidos nepatvirtina.



A



B

19 pav. Paršelio ežero dugno nuosėdų matavimai: A –  $^{137}\text{Cs}$  ir  $^{239,240}\text{Pu}$  savitojo aktyvumo priklausomybė nuo gylio, B –  $^{238}\text{Pu}$  ir  $^{239,240}\text{Pu}$  savitojo aktyvumo priklausomybė nuo gylio



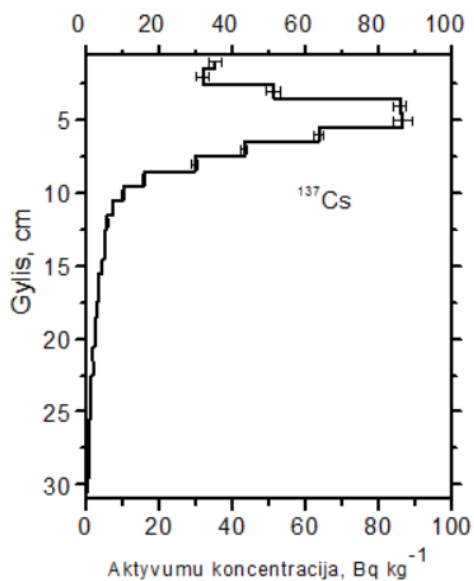
## **Dirvožemio matavimų rezultatai**

Šiame poskyryje dirvožemio esančio šalia Paršelio ežero matavimų duomenys ir jų analizė. Analizei panaudoti 2 skirtingi mėginiai – sausos dirvožemio ir užliejamo kranto. Jie palyginami tarpusavyje. Taip pat pateikiamas ir plutonio izotopų grafikas.

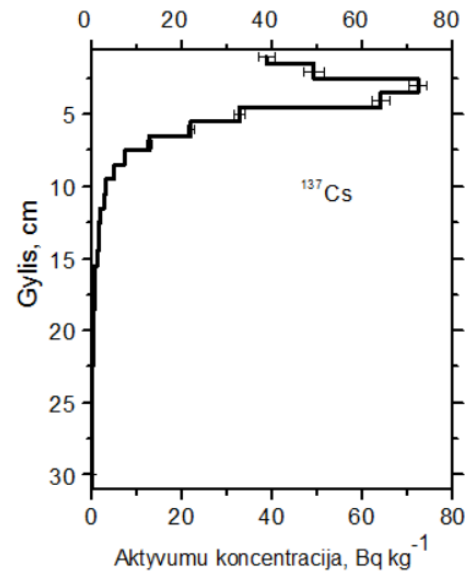
22 pav. A ir 22 pav. B matome tipinius  $^{137}\text{Cs}$  dirvožemio profilius – didžioji  $^{137}\text{Cs}$  dalis yra susikaupusi viršutiniuose sluoksniuose.

Kaip ir galima numanyti,  $^{137}\text{Cs}$  smailės gylis priklauso nuo dirvožemio tipo – sauso kranto profilyje smailė yra aukščiausiai (3-4 cm), užliejamo kranto profilyje ir dugno profilyje – šiek tiek žemiau (4-6 cm). Šie rezultatai sutampa su rezultatais Juodžio ežere ir jo apylinkėse – užliejamas krantas ir ežero dugnas turi panašų  $^{137}\text{Cs}$  profilį.

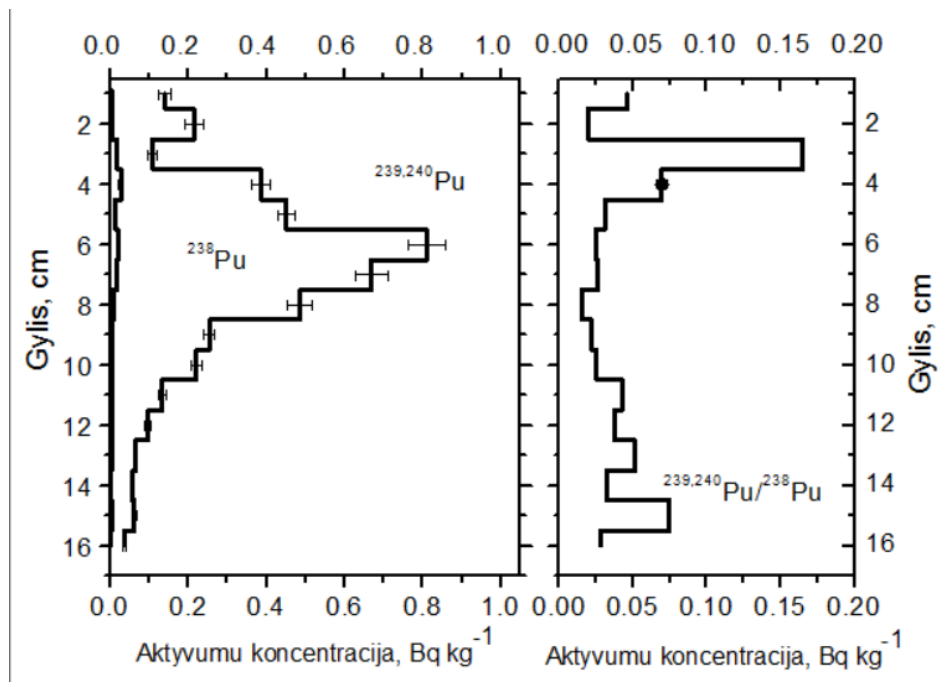
Plutonio izotopų atveju matome, kad  $^{239,240}\text{Pu}$  smailė ežero dugno mėginių profilyje yra giliau nei pakrantėje. Plutonio izotopų santykis rodo, kad šie izotopai atsirado ne vien tik dėl branduolinio ginklo bandymų (tipinė vertė maždaug 0,02), taigi galime daryti išvadą, kad radioaktyviai taršai įtakos turėjo ir Černobylio avarija (tipinė vertė 0,47).



A



B



C

20 pav. Paršelio ežero dirvožemio mėginių matavimų rezultatai ( savitojo aktyvumo priklausomybė nuo gylis): A- užliejamas krantas, B – Sausas krantas, C – dirvožemis šalia paršelio ežero

## Išvados

1. Pastebėta, kad nors ir didžiausias  $^{137}\text{Cs}$  koncentracijas tirtuose bandiniuose lėmė Černobylio avarija (dirvožemis šalia Paršelio ež., miško dirva šalia Juodžio ež.[11]), tačiau kituose bandiniuose (Drūkšių ež., Paršelio ež ir Juodžio ež. dugno nuosėdos) daug šios avarijos pėdsakų neaptikta – tirtuose dirvožemiuose ir ežerų dugno nuosėdose vyrauja branduolinio ginklo bandymų atmosferoje sukelta tarša.
2. Nustatytos  $^{137}\text{Cs}$  ir plutonio izotopų priklausomybės nuo gylio parodė, kad Paršelio ežero dugno nuosėdos ir užliejamas krantas turi labai panašius plutonio profilius, tačiau norint patvirtinti šią išvadą dar reiktų atlikti matavimų kituose ežeruose.
3. Drūkšių ež. dugno nuosėdų  $^{137}\text{Cs}/^{239,240}\text{Pu}$  santykis išlieka gana pastovus iki pat paskutiniųjų sluoksnių, bet yra šiek tiek didesnis nei tipinė branduolinio ginklo bandymų vertė ( $29\pm 3$ ), taigi, tikėtina, kad didesnės vertės užfiksuotos dėl Ignalinos atominės elektrinės įtakos, kurios išleido  $^{137}\text{Cs}$  į ežerą su nuotekomis.
4. Sprendžiant iš gautų migracijos profilių, tiek  $^{137}\text{Cs}$ , tiek  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$  migraciją labiausiai lemiantys veiksniai yra dirvožemio tipas ir vandens infiltracijos procesai.

## Santrauka Lietuviškai

Pagrindinis šio darbo tikslas yra apžvelgti įvairius  $^{137}\text{Cs}$  ir plutonio izotopų vertikaliosios migracijos tyrimus, ir eksperimentiškai ištirti Paršelio ežero dugno nuosėdas ir dirva aplink jį bei Drūkšių ežero dugno nuosėdas.

Darbe aprašoma mėginių paėmimo metodika, pasiruošimas  $^{137}\text{Cs}$  ir plutonio izotopų matavimams, taip pat, aprašoma matavimo procedūra gama spektrometru ir pateikiami tirtų bandinių profiliai, jie lyginami su ankščiau atliktais, kitų autorių tyrimais.

Gauti rezultatai parodė, kad vyraujanti tarša atsirado dėl branduolinio ginklo bandymų, tačiau keliuose nagrinėtuose atvejuose – Paršelio ir Juodžio[11] ežero pakrantėse – nustatytas izotopinis  $^{137}\text{Cs}/^{239,240}\text{Pu}$  santykis yra didesnis už tipinę  $29\pm 3$  vertę, taigi, manoma, jog tarštai įtakos turėjo ir kiti veiksniai – greičiausiai Černobylio avarija.

## Summary in English

The main aim of this work is to review various researches on  $^{137}\text{Cs}$  and plutonium isotopes vertical migration and to experimentally investigate sediment soil and coast of lake Paršelis, sediment soil of and lake Drūkšiai.

Sampling methods, preparation for  $^{137}\text{Cs}$  and plutonium isotopes measurements, measurement method using gamma spectrometer are described. In the results section all measured profiles are presented, results compared with the results of other researchers

Results shown that main contamination is caused by global fallout, however in some cases – coasts Paršelis and Juodis[11] – measured average isotopic  $^{137}\text{Cs}/^{239,240}\text{Pu}$  ratio is higher than typical  $29\pm 3$ , supposedly that Chernobyl accident may have caused this higher contamination.

## Literatūros sąrašas

- [1] Remeikis, V., Radioekologija (2007), 143 psl.
- [2] Urbelis, A, et. Al., Jonizuojančioji spinduliuotė (radiacija): sauga, sveikata, ekologija, Vilniaus Universiteto leidykla (2005), 227 psl.
- [3] Butkus, D., Jonizuojančioji spinduliuotė aplinkoje, Leidykla technika (2006), 292 psl.
- [4] Atwood D. A., Radionuclides in the environment, University of Kentucky (2010), 508 psl.
- [5] Avila, R., et. al., A systemic approach to the migration of <sup>137</sup>Cs in forest ecosystems using interaction matrices, Journal of environmental radioactivity (1999), 271-282 psl.
- [6] Bavarian State Ministry for Land Development and Environmental Questions, Radioactivity in Soils (Cesium-134 and Cesium-137), (1992), 11 psl.
- [7] BRÍGIDO FLORES, O., et. Al., Estimating soil erosion using fallout Caesium-137 in cultivated land at the watershed of Máximo River, Cub (2002), 10 psl.
- [8] PORĚBA, G., CONCENTRATION AND VERTICAL DISTRIBUTION OF <sup>137</sup>Cs IN AGRICULTURAL AND UNDISTURBED SOILS FROM CHECHĚO and CZARNOCIN AREAS, GEOCHRONOMETRIA Vol. 22, Journal on Methods and Applications of Absolute Chronology (2003), psl. 67-72,
- [9] J. Juri Ayub, et. al. <sup>137</sup>Cs deposition and vertical migration in soils from Argentina (2005). 5 psl
- [10] Niță, D.C., New data for Cesium from soil in Cluj-Napoca town after Chernobyl accident, Advances in Environmental Sciences - International Journal of the Bioflux Society (2011) 229-235 psl.
- [11] Lukšienė B., et. Al., On peculiarities of vertical distribution of <sup>239,240</sup>Pu, <sup>238</sup>Pu and <sup>137</sup>Cs activity concentrations and their ratios in lake sediments and soils, J Radioanal Nucl Chem (2014), 277-286 ps.
- [12] Tarasiuk N, et. al. (2007) J Environ Radioact 93:100
- [13] Celik N, et. al., Gamma ray concentrations in soil and building materials in Ordu, Turkey Radiation Effects and Defects in Solids (2010), 165: 1-10.
- [14] LaBrecque JJ Distribution of <sup>137</sup>Cs, <sup>40</sup>K, <sup>238</sup>U and <sup>232</sup>Th in soils from Northern Venezuela. J Radioanal Nucl Chem (1994), 178: 327–336.
- [15] Miah FK et al. Distribution of radionuclides in soil samples in and around Dhaka city. Appl Radiat Isot (1998), 49: 133–137.
- [16] Gomez E, et. al., Determination of <sup>137</sup>Cs and <sup>90</sup>Sr in Calcareous soils: Geographical distribution on the Island of Majorca. Appl Radiat Isot (1997), 48: 699–704.

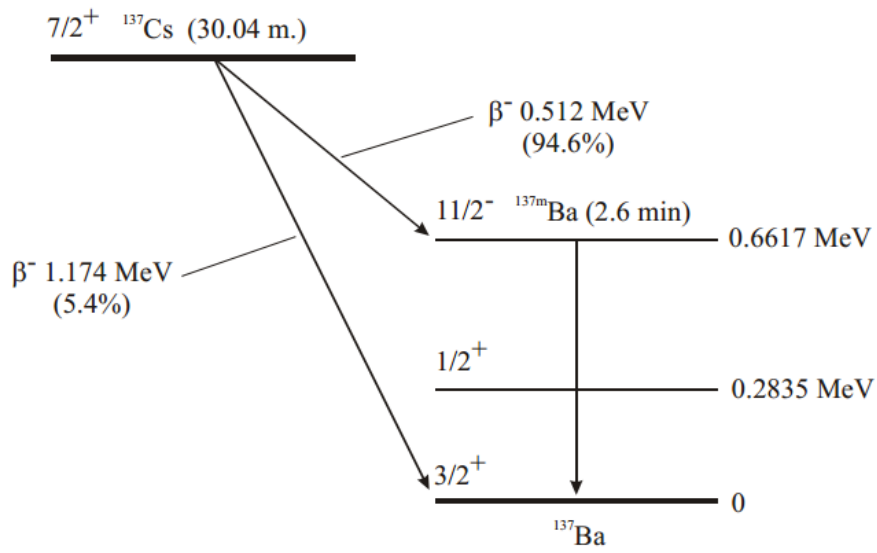
- [17] Higgy RH, et. al. Natural and man-made radioactivity in soils and plants around the research reactor of Inshass. *Appl Radiat Isot* (1998), 49: 1709–1712.
- [18] Nouredin A, et. al. Gamma and alpha emitting radionuclides in some Algerian soil samples. *Appl Radiat Isot* (1997), 48: 1145–1148.
- [19] Karakelle B, et. al. Natural radioactivity in soil samples of Kocaeli basin, Turkey. *J Radioanal Nucl Chem* (2002), 254: 649–651.
- [20] Vukotc P, et. al. Radioactivity on the Montenegrin Coast, Yugoslavia. *J Radioanal Nucl Chem* (1998), 235: 151–157.
- [21] Sam AK, et. al. Assessment of terrestrial gamma radiation in Sudan. *Radiat Prot Dosim* (1997), 71: 141–145.
- [22] Shenber MA, Fallout <sup>137</sup>Cs in soils from North Western Libya. *J Radioanal Nucl Chem* (2001), 250: 193–194.
- [23] Al-Kahtani SA, et. al. Radioactivity levels in soil of three selected sites at and around Riyadh City. *J Radioanal Nucl Chem* (2001), 250: 93–95.
- [24] Wang CJ, et. al., Transfer of radionuclides from soil to grass in Northern Taiwan. *Appl Radiat Isot* (1997), 48: 301–303.
- [25] Tahir SNA, et. al., Measurements of Activity Concentrations of Naturally Occurring Radionuclides in Soil Samples from Punjab Province of Pakistan and Assessment of Radiological Hazards. *Radiat Prot Dosimetry* (2005), 113: 421-427.
- [26] Tufail M, et. al. Measurement of terrestrial radiation for assessment of gamma dose from cultivated and barren saline soils of Faisalabad in Pakistan. *Radiation Measurements* (2006), 41: 443 – 451.
- [27] Fatima I, et al., Measurement of natural radioactivity and dose rate assessment of terrestrial gamma radiation in the soil of southern Punjab. *Radiat Prot Dosim* (2008), 128: 206-212.
- [28] Jabbar A, et. al., Measurement of soil radioactivity levels and radiation hazards assessment in mid Rechna interfluvial region, Pakistan. *J Radioanal Nucl Chem* (2010), 283:371-378
- [29] Rahman SU, et. al., Measurement of naturally occurring/fallout radioactive elements and assessment of annual effective dose in soil samples collected from four districts of the Punjab Province, Pakistan. *J Radioanal Nucl Chem* (2011), 287: 647–655.
- [30] Hassan M Khan, et. al., Farooq J Measurement of Gamma Activity in soil samples of Charsaddah district of Pakistan *Jour. Chem Soc Pak* (1994), 16:183-185.

- [31] A. Komosa, Migration of plutonium isotopes in forest soil profiles in Lublin region (Eastern Poland), *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, VoL 240, No. 1 (1999), 19-24
- [32] K. BUNZL, H. FORSTER, W. KRACKE, W. SCHIMMACK, *J. Environ. Radioactivity*, 22 (1994), 11
- [33] K. BUNZL, W. KRACKE, W. SCHIMMACK, *Analyst*, 117 (1992), 469.
- [34] J. A. IVANOV, W. A. KASHPAROV, S. E. LEVCHUK, S. I. ZVARICH, *Radiokhimiya*, 38 (1996) 264 – A2
- [35] Wei Dong et. al., Concentration and characterization of plutonium in soils of Hubei in central China, *Journal of Environmental Radioactivity* 101 (2010), 29–32, doi:10.1016/j.jenvrad.2009.08.011
- [36] Harley, J.H., Plutonium in the environment – a review. *Journal of Radiation Research* 21 (1980), 83.
- [37] Kelley, J.M., Bond, L.A., Beasley, T.M., Global distribution of Pu isotope and Np. *Science of the Total Environment* 237/238 (1997), 483–500.
- [38] Buessler, K.O., The isotopic signature of fallout plutonium in the North Pacific. *Journal of Environmental Radioactivity* 36 (1997), 69.
- [39] W. T. Bu, et al., Vertical distributions of plutonium isotopes in marine sediment cores off the Fukushima coast after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident, *Biogeosciences*, 10 (2013), 2497–2511, doi:10.5194/bg-10-2497-2013
- [40] Zheng, J. and Yamada, M.: Determination of Pu isotopes in sediment cores in the Sea of Okhotsk and the NW Pacific by sector field ICP-MS, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 267 (2006), 73–83 – C, D
- [41] Caneberra Standard Electrode coaxial Ge detectors (SEGe) datasheet, 2 psl.
- [42] Andrius Poškus, *Atomo fizika ir branduolio fizikos eksperimentiniai metodai*, Vilniaus Universiteto leidykla, Vilnius, (2008), 544 p.

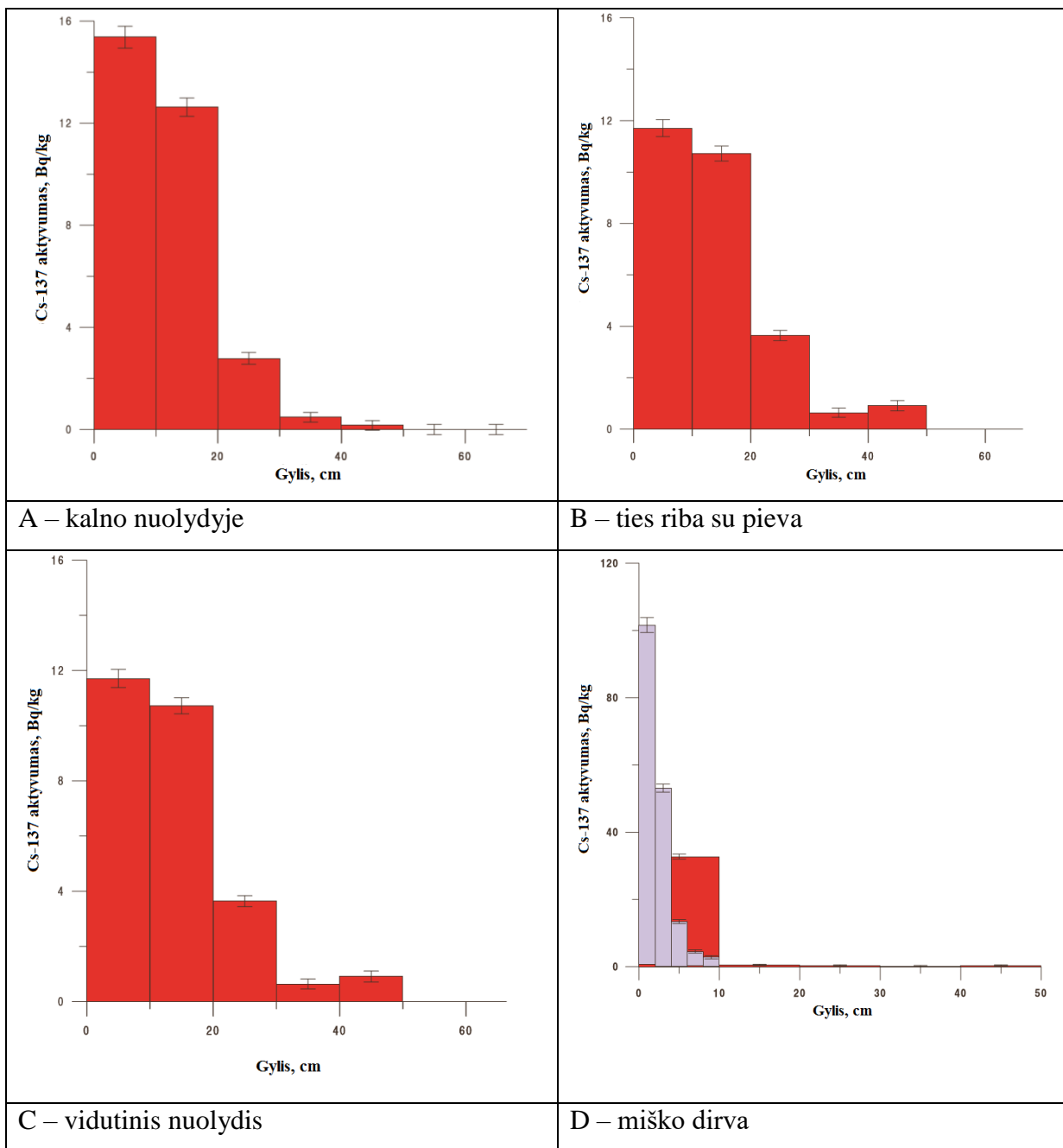


Priedai

1 Priedas.  $^{137}\text{Cs}$  skilimo į schema [42]



## 2 Priedas Cezio vertikaliosios migracijos profiliai Lenkijoje, 2003 m [8]



### 3 Priedas. Drūkšių ežero dugno nuosėdų matavimų rezultatai

Lentelė. Drūkšių ežero dugno nuosėdų matavimai					
Gylis	$^{137}\text{Cs}$	$\pm\Delta^{137}\text{Cs}$	$^{239,240}\text{Pu}$	$\Delta^{239,240}\text{Pu}$	$^{137}\text{Cs}/^{239,240}\text{Pu}$
0.9	117.3	1.2	3.16102	0.14131	37.10824
2.4	123.4	0.6	3.14402	0.14816	39.24907
4	126.6	0.5	3.40486	0.19546	37.18209
6	131.5	0.6	3.58712	0.22047	36.6589
8.1	129.2	0.6	3.48997	0.20796	37.02041
10.2	130.6	1.5	3.34232	0.11834	39.0747
12.3	133.8	1.4	3.6055	0.1367	37.10998
14.3	132.7	1.4	3.5626	0.1483	37.2481
16.3	127.6	1.5	3.47792	0.27339	36.68861
18.2	102.6	1.4	3.9	0.32171	26.30769
20.4	74.8	1	2.64911	0.15563	28.23586
22.4	52	1	1.48344	0.08852	35.0537
23.7	35.5	1	1.29961	0.08469	27.31598

#### 4 Priedas. Paršelio ežero dugno nuosėdų matavimų rezultatai

<b>Lentelė. Paršelio ežero dugno nuosėdų matavimai</b>						
Gylis	$^{137}\text{Cs}$	$\Delta^{137}\text{Cs}$	$^{239,240}\text{Pu}$	$\Delta^{239,240}\text{Pu}$	$^{137}\text{Cs}/^{239,240}\text{Pu}$	$\Delta^{137}\text{Cs}/^{239,240}\text{Pu}$
0	28.323		8.05026		16.60207	
1	133.651	1.61005	8.05026	1.61005	16.60207	4.15052
2	237.652	1.41452	7.07258	1.41452	33.60187	8.40047
3	217.859	1.30249	6.51244	1.30249	33.45277	8.36319
4	276.981	1.39656	6.98282	1.39656	39.66605	9.91651
5	487.651	1.46327	7.31637	1.46327	66.65205	16.66301
6	275.32	1.638	8.19002	1.638	33.61652	8.40413
7	259.442	1.68174	8.40872	1.68174	30.85391	7.71348
8	291.16	1.92002	9.60012	1.92002	30.3288	7.5822
9	302.709	2.1058	10.52899	2.1058	28.75004	7.18751
10	315.612	2.73524	13.67619	2.73524	23.07749	5.76937
11	339.99	2.07764	10.38822	2.07764	32.7284	8.1821
12	323.772	1.84819	9.24094	1.84819	35.0367	8.75917
13	350.268	1.85355	9.26773	1.85355	37.79437	9.44859
14	323.313	2.00891	10.04454	2.00891	32.18793	8.04698
15	348.38	2.11465	10.57327	2.11465	32.94911	8.23728
16	358.908	1.85435	9.27173	1.85435	38.70995	9.67749
17	337.6	1.84103	9.20515	1.84103	36.67512	9.16878
18	352.528	1.8365	9.18252	1.8365	38.39121	9.5978
19	322.152	1.63547	8.17736	1.63547	39.39559	9.8489
20	296.487	1.96063	9.80315	1.96063	30.24405	7.56101

## 5 Priedas. Paršelio ežero sauso kranto matavimų rezultatai

Lentelė. Paršelis, sausas krantas					
Gylis (cm)	$^{137}\text{Cs}$ (Bq/kg)	$\Delta^{137}\text{Cs}$ (Bq/kg).	Gylis (cm)	$^{137}\text{Cs}$ (Bq/kg)	$\Delta^{137}\text{Cs}$ (Bq/kg).
1	35.39	1.63	17	3.3	0.21
2	31.99	1.73	18	3	0.23
3	51.3	1.93	19	2.72	0.21
4	85.82	1.79	20	2.57	0.19
5	86.57	2.55	21	1.94	0.19
6	63.62	1.32	22	2.01	0.2
7	43.33	0.93	23	1.53	0.08
8	29.79	0.78	24	1.24	0.14
9	15.98	0.51	25	1.3	0.16
10	10.3	0.43	26	0.96	0.14
11	7.41	0.35	27	1.03	0.15
12	5.85	0.25	28	1.11	0.13
13	5.42	0.22	29	0.83	0.1
14	5.12	0.24	30	0.48	0.09
15	4.52	0.23	31	0.13	0.02
16	3.41	0.21	30	0.48	0.09
			31	0.13	0.02

## 6 Priedas. Paršelio ežero kranto matavimų rezultatai

Lentelė. Paršelis, užliejamas krantas					
Gylis (cm)	$^{137}\text{Cs}$ (Bq/kg)	$\Delta^{137}\text{Cs}$ (Bq/kg).	Gylis (cm)	$^{137}\text{Cs}$ (Bq/kg)	$\Delta^{137}\text{Cs}$ (Bq/kg).
1	35.39	1.63	17	3.3	0.21
2	31.99	1.73	18	3	0.23
3	51.3	1.93	19	2.72	0.21
4	85.82	1.79	20	2.57	0.19
5	86.57	2.55	21	1.94	0.19
6	63.62	1.32	22	2.01	0.2
7	43.33	0.93	23	1.53	0.08
8	29.79	0.78	24	1.24	0.14
9	15.98	0.51	25	1.3	0.16
10	10.3	0.43	26	0.96	0.14
11	7.41	0.35	27	1.03	0.15
12	5.85	0.25	28	1.11	0.13
13	5.42	0.22	29	0.83	0.1
14	5.12	0.24	30	0.48	0.09
15	4.52	0.23	31	0.13	0.02
16	3.41	0.21			