Vilniaus universitetas
Fizikos fakultetas
Bendrosios fizikos ir spektroskopijos katedra

Erikas Ustila

ILGALAIKĖ RADIOCEZIO MIGRACIJOS GREIČIO PALYGINAMOJI ANALIZĖ

Pagrindinių studijų baigiamasis darbas
(studijų programa ENERGETIKOS FIZIKA)

Studentas	Erikas Ustila
Darbo vadovas	dr. Marija Konstantinova
Recenzentas	dr. Rita Plukienė
Katedros vedėjas	prof. V. Šablinskas

Vilnius 2017

TURINYS

TURINYS 1

ĮVADAS 2

LITERATŪROS APŽVALGA 3

RADIONUKLIDAS ^{137}Cs 3

ATSIRADIMAS GAMTOJE 4

MIGRACIJA APLINKOJE 5

^{137}Cs VERTIKALIOS MIGRACIJOS GREITIS 5

ORGANINIŲ MEŽIAGŲ ĮTAKA VERTIKALIOSIOS MIGRACIJOS GREIČIUI 6

UŽTERŠIMO ^{137}Cs TYRIMAI LIETUVOS TERITORIJOJE 7

DARBO METODIKA 8

DARBO REZULTATAI IR JŲ APTARIMAS 12

IŠVADOS 17

ŠALTINIAI 18

SANTRAUKA 20

SUMMARY 21

ĮVADAS

Radionuklidas ^{137}Cs yra technogeninės kilmės radioizotopas,^{235}U ir kitų sunkiųjų branduolių dalijimosi produktas. Dėl savo savybės jungtis su Cl^- ir NO^-_3 jonais, pasklidęs į aplinką jis aptinkamas druskų pavidalu. Cezis reaguoja su vandeniu, suformuodamas CsOH (itin stiprią bazę).

Pasklidimo ir aplinkos užteršimo priežastis yra jo nuotėkis iš branduolinių jėgainių, branduolinio ginklo bandymo metu paskleista tarša.

Tarp visų sunkiųjų branduolių dalijimosi produktų, ^{137}Cs reikalauja ypač daug dėmesio dėl savo cheminių parametrų ir didelės reakcijos išeigos (apie 6%). Dideli jo kiekiai susidaro atominėse elektrinėse. Į gamtą pasklidęs radionuklidas sukelia didelį pavojų žmonėms: dėl savo vidutinės pusėjimo trukmės (30.17m.) pasklidęs gamtoje ^{137}Cs pakankamai ilgai išlieka radioaktyvus, jo skleidžiama jonizuojanti spinduliuotė sukelia papildomą žmogaus ir gamtos apšvitą.

Pagrindiniai įvykiai, lėmę ^{137}Cs pasklidimą aplinkoje, yra šaltojo karo metu (1945-1980) vykę branduoliniai bandymai, 1986 balandžio 26 d. ketvirtajame Černobylio atominės elektrinės bloke įvykusi avarija, 2011 m. kovo 11 d., Fukušimos atominės elektrinės avarija.

Pasklidęs gamtoje, kartu su iškritomis, ^{137}Cs patenka į dirvą ir nusėda viršutiniuose jos sluoksniuose. Radiocezio migracija dirvožemyje yra sudėtingas procesas, priklausantis nuo daugybės reiškinių, jai turi įtakos meteorologiniai, biologiniai ir geologiniai faktoriai. Migracija su laiku silpnėja, radionuklidai sklinda augalų šaknimis arba gruntiniu vandeniu. Černobylio atominės elektrinės bloke įvykusios avarijos, bei 1945-1980 branduolinių bandymų metu pasklidusi tarša yra susikaupusi 5-7 cm arba giliau, priklausomai nuo chronologinės teršalų patekimo į aplinką sekos ir nuklido migraciją charakterizuojančių parametrų. Po Černobylio AE avarijos labiausiai užterštomis tapo Lietuvos teritorijos vakarinė, pietvakarinė, pietų ir pietryčių dalys. ^{137}Cs taršos lygis didžiausias pietiniuose ir pietvakariniuose rajonuose.

Darbo tikslas: Įvertinti ilgalaikę ^{137}Cs migraciją dirvoje.

Darbo uždaviniai:

1. Įsisavinti dirvožemio bandinio paėmimo bei matavimo metodiką.
2. Išmatuoti dirvos bandinių ^{137}Cs aktyvumą bei išanalizuoti matavimų rezultatus.
3. Nustatyti organikos kiekį bandiniuose.
4. Išanalizuoti ilgalaikių matavimų rezultatus.
5. Įvertinti ^{137}Cs migracijos parametrų (migracijos greičio ir difuzijos koeficiento) vertes, jas palyginti su senesnių matavimų rezultatais, nustatyti kaip organikos kiekis įtakoja radionuklido migracijos mechanizmą.

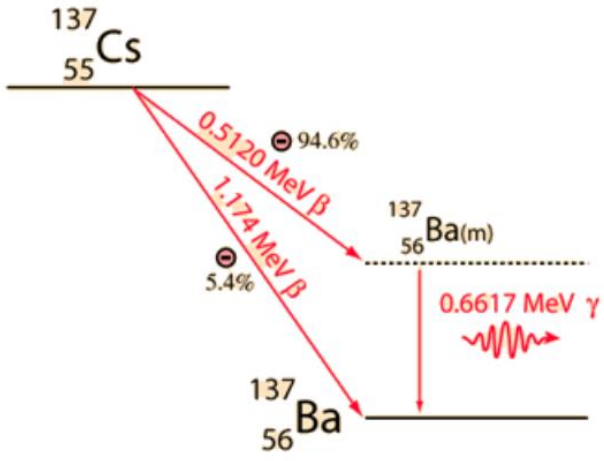
LITERATŪROS APŽVALGA

RADIONUKLIDAS ^{137}Cs

Vienas iš svarbiausių žmogaus veiklos paskatintos radioaktyviosios taršos padarinių yra ^{137}Cs pasklidimas aplinkoje. Cezis yra šarminis metalas, kurio lydymosi temperatūra 301,2 K. Yra žinoma 40 skirtingų cezio izotopų. Didžioji dalis jų – yra mažos pusėjimo trukmės arba mažos išeigos, dėl to yra mažiau svarbūs nagrinėjant apšvitos šaltinius. Stabilusis cezio izotopas – ^{133}Cs. Visi kiti – radioaktyvūs, technogeninės kilmės,^{235}U ir kitų sunkiųjų branduolių dalijimosi produktai. Susidaro dalijantis branduoliniuose reaktoriuose ar branduoliniuose sprogimuose ir branduolinėse reakcijose su įgreitintomis elektringosiomis dalelėmis.

Radionuklidas ^{137}Cs reikalauja ypač daug dėmesio dėl savo cheminių parametrų ir didelės reakcijos išeigos (apie 6%). Jo pusėjimo trukmė yra ~30 m., todėl pasklidęs gamtoje radiocezis pakankamai ilgai išlieka radioaktyvus. Cezis greitai pasklinda aplinkoje dėl spartaus migracijos greičio, pasižymi dideliu cheminiu aktyvumu, lyginant su kitais branduolio dalijimosi produktų nuklidais. Kaip pirmos šarminių metalų grupės elementas yra ganėtinai elektroteigiamas, lengvai oksiduojasi vandenyje, formuojant Cs^+ jonus. Dėl šios priežasties radionuklidas ^{137}Cs gali būti didelių vandens atsargų užterštumo priežastimi [2].

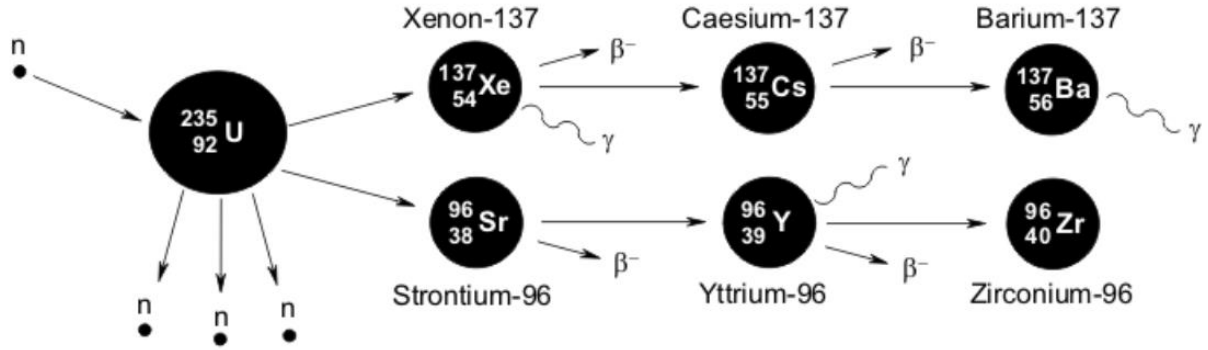
Radionuklidas ^{137}Cs yra beta spinduolis, tačiau vykstant ^{137}Cs branduolio beta skilimui, kurio vidutinė energija yra 170,8 keV susidaro sužadintasis ^{137}Ba branduolys antrajame sužadintajame energijos lygmenyje, kurio pusėjimo trukmė 2.6 min. ^{137}Ba metastabilusis branduolys spinduliuoja 662keV γ kvantus [1].



1pav. ^{137}Cs skilimo diagrama

ATSIRADIMAS GAMTOJE

^{137}Cs atsiradimas yra paaiškinamas branduolio dalijimosi reakcija: urano branduoliui dalinantis į du smulkesnius fragmentus, apytiksliai lygius pusei pradinio branduolio masės. Kaip pavyzdį imkime ^{235}U reakciją su lėtaisiais (>0,5eV) neutronais (2 pav.), kurio branduolys dalijasi į dvi dalis – ^{137}Xe ir ^{96}Sr, be to, atsiranda du – trys neutronai, išspinduliuojami gama kvantai, išsiskiria apie 200 Mev energija. Išlėkę neutronai, savo ruožtu, gali suskaidyti kitus branduolius, tęsdami grandininę reakciją. Radionuklidas ^{137}Xe beta skilimo metu virsta į vidutinės pusėjimo trukmės radionuklidą ^{137}Cs [1].



2 pav. ^{235}U dalijimosi reakcija

Priežastis, kodėl ši reakcija yra plačiai taikoma branduolinėje energetikoje, yra didžiulis energijos kiekis, išsiskiriantis vykstant branduolių dalijimosi reakcijai. Išsiskyrusi energija gali siekti 200 MeV. Tuo tarpu cheminės reakcijos metu išsiskiria vos kelios dešimtys eV energijos [1].

Sunkiųjų branduolių, tokių kaip urano ir plutonio dalijimasis į dviejų lengvesnių branduolių fragmentus yra radionuklidų ^{137}Cs, ^{90}Sr, ^{131}I atsiradimo priežastis. ^{137}Cs ir ^{90}Sr yra patys pavojingiausi radioizotopai, reikalaujantys ypatingo dėmesio dėl savo ilgalaikės žalos aplinkai. Jų vidutinė pusėjimo trukmė (apie 30 m.) reiškia ne tai, jog jie yra labai radioaktyvūs, tačiau cezis yra chemiškai panašus su kaliu, o stroncis – su kalciu, todėl gyvi organizmai gali įsisavinti šiuos elementus, o tai reiškia, jog jie bus siunčiami mitybos grandine ir gali padaryti didelę žalą žmogaus organizmui. ^{131}I ir kiti trumpaamžiai radionuklidai gali būti didelės apšvitos priežastimi, pirmosiomis dienomis po šio nuklido patekimo į aplinką, o ^{137}Cs ir ^{90}Sr pasižymi pakankamai ilga pusėjimo trukme, ir dėl to gali ilgą laiką daryti neigiamą poveikį žmogaus sveikatai [10].

Pagrindiniai įvykiai, lemiantys ^{137}Cs pasklidimą Lietuvos teritorijoje, yra šaltojo karo metu (1945-1980) vykdyti branduoliniai bandymai, bei 1986 balandžio 26d. ketvirtajame Černobylio atominės elektrinės bloke įvykusi avarija. Bendras dėl šių įvykių aplinkoje pasklidęs ^{137}Cs

aktyvumas sudarė $12.8 \cdot 10^{17}$ Bq, iš kurio $1 \cdot 10^{17}$ Bq – dėl Černobylio AE avarijos [4]. Taip pat didelę įtaką pasaulinei ^{137}Cs taršai turėjo 2011 m. kovo 11 d. įvykusi Fukušimos atominės elektrinės avarija ($1.3 \cdot 10^{16}$ Bq pasklido į atmosferą [11]).

MIGRACIJA APLINKOJE

^{137}Cs patekęs ant dirvos su iškritomis nusėda jos viršutiniuose sluoksniuose. Laikui bėgant cezio skverbimasis gilyn lėtėja, jam fiksuojantis prie molio mineralų. Cezis yra chemiškai panašus su kaliu, todėl augalai gali įsisavinti abu šiuos elementus [3].

Iškritę ant žemės paviršiaus dirbtiniai radionuklidai dalyvauja migracijos procesuose tiek vertikalia, tiek horizontalia kryptimis. Vietovėse su stabiliu dirvožemio profiliu (lyguma, gerai išreikštas nepažeistas dirvožemio profilis su augalų danga) ilgai išlieka pirminis radionuklidų pasiskirstymo pobūdis, kurį nežymiai keičia vertikali difuzija ir augalų biologinis pasisavinimas.

Vietovėse su kintančiais reljefu, dirvožemio tipais, augalijos dangos pobūdžiu, kur dėl natūralių faktorių vyksta dirvožemio erozija, radionuklidai pernešami horizontalia kryptimi, tuo pačiu keičiasi pirminis radionuklidų pasiskirstymas. Dėl žmogaus veiklos padarinių paskli̇dusi ^{137}Cs tarša dirvožemyje yra pasiskirsčiusi tam tikrais kiekiais, priklausomai nuo chronologinės radioaktyvių iškritų sekos [15].

^{137}Cs VERTIKALIOS MIGRACIJOS GREITIS

^{137}Cs patekus i dirvą su iškritomis jis nusėda viršutiniuose sluoksniuose. Priklausomai nuo žemės struktūros parametrų radionuklidas dalyvauja migracijoje, veikiant difuzijos, dispersijos, retardacijos komponentėms. Bendru atveju galime užrašyti advekcijos-dispersijos lygtį (1):

$$\frac{\partial c}{\partial t} + v\frac{\partial c}{\partial x} = D\frac{\partial^2 c}{\partial x^2} - \gamma c \qquad (1)$$

Advekcinis narys $v\frac{\partial c}{\partial x}$ aprašo medžiagos pernašą kartu su srauto judėjimu. Dispersinis narys $D\frac{\partial^2 c}{\partial x^2}$ aprašo medžiagos išplitimą terpėje. Jis yra sudarytas bendrai iš molekulinės ir mechaninės dispersijos $D = D_{mol} + D_{mech}$. γc žymi medžiagos kiekio sumažėjimą dėl radioktyviojo skilimo.

Išsprendus (1) lygtį žinomam pradiniui medžiagos kiekiui C_0, gauname sprendinį [7].:

$$C(x,t) = C_0 \cdot \exp(-\lambda \cdot t) \cdot \left[\frac{1}{\sqrt{\pi \cdot D \cdot t}} \cdot \exp\left(-\frac{(x - V \cdot t)^2}{4 \cdot D \cdot t} \right) - \frac{V}{2 \cdot D} \exp\left(-\frac{V \cdot x}{D} \right) \cdot \left(1 - erf\left(\frac{x + V \cdot t}{2 \cdot \sqrt{D \cdot t}} \right) \right) \right] \qquad (2)$$

Toliau naudosime šį sprendinį tam, kad galėtume įvertinti ^{137}Cs vertikaliosios migracijos greitį dirvoje.

Čia C(x,t)- nuklido tūrinis aktyvumas [Bq/m^3], D-difuzijos koeficientas [cm^2/metus], t-laikas [metai], V-vertikalios migracijos greitis [cm/metus]. λ - ^{137}Cs skilimo konstanta, C_0 – pradinis iškritusio nuklido aktyvumas [Bq/m^2] – yra įvertinama (3) formule.

$$C_0 = \frac{A(x,t) - A_0}{k_2} \exp\left[k(x,t) + (\lambda + k_3)t\right] \quad (3)$$

čia C_0– pradinis užterštumo tankis žemės paviršiuje, Bq·m^{-2}; A(x,t) – užterštumo tankis, nustatytas bet kuriais metais dirvožemio 0-5 cm gylio sluoksnyje , Bq·m^{-2} ; A_0 – užterštumo tankis, buvęs iki radionuklido pasklidimo; k(x,,t) – radionuklido kiekio dalis, pasiskirsčiusi gilesniuose negu nagrinėjamame sluoksnyje; k_2 – radionuklido kiekio dalis, iškritų metu nesulaikyta augmenijos; k_3 – koeficientas, nurodantis radionuklido kiekio dalį, patekusią iš dirvožemio į augalus per jų šaknis, m.$^{-1}$; λ - skilimo konstanta, m.$^{-1}$; t – laiko tarpas nuo užtaršos pradžios, m. Pagal Lubytės ir Matusevičiaus 1986 m. matavimų rezultatus, $k_2 = 0{,}57$ (σ=0,38) . Šios reikšmės šiek tiek skiriasi nuo [27] darbe gautų reikšmių (priesmėliui $k_2 = 0{,}61 \pm 0{,}04$, o priemoliui $k_2 = 0{,}51 \pm 0{,}04$) [15].

ORGANINIŲ MEŽIAGŲ ĮTAKA VERTIKALIOSIOS MIGRACIJOS GREIČIUI

Vertikalioje ^{137}Cs migracijoje dirvoje didelę įtaką turi pačios dirvos struktūra. Advekcijos-dispersijos lygties (1) adsorbcinis narys priklauso nuo dirvą sudarančių elementų. Šis narys nulemia radionuklido mobilumą dirvoje. Didėjant sorbcijai, mažėja ir medžiagos pernaša, todėl yra svarbu įvertinti bandinio struktūrą, nes nuo jos tiesiogiai priklausys migracijos mechanizmui aprašyti reikalingi parametrai.

Yra žinoma, jog molio mineralai itin gerai adsorbuoja Cs elementus, ypač ilitas ir vermakulitas [20]. Tarp šių mineralų susirenka negiamas krūvis, kuris yra neutralizuojamas mažos hidratacijos energijos katijonų, natūraliai tai būna K^+ katijonai, tačiau mūsų atveju – tai ^{137}Cs. Kitos kietos dirvožemio sudedamosios dalys, tame tarpe organinės medžiagos, kvarcas, karbonatai, geležies (hidro)oksidai,aliuminio ir mangano junginiai turi daug mažesnę trauką ceziui ir todėl sorbcijos laipsnis šioms struktūroms yra ribotas [20].

Organikos kiekis dirvoje susilpnina molio mineralų savybes prisitraukti cezio katijonus. Ekperimente, aprašytame [20] šaltinyje tegiama, jog organinių medžiagų makromolekulių kiekis bandiniuose kartu su ilito molio mineralais negiamai įtakojo adsorbcijos reiškinį, tai reiškia, jog ^{137}Cs imobilizacija tapo kur kas mažesnė.

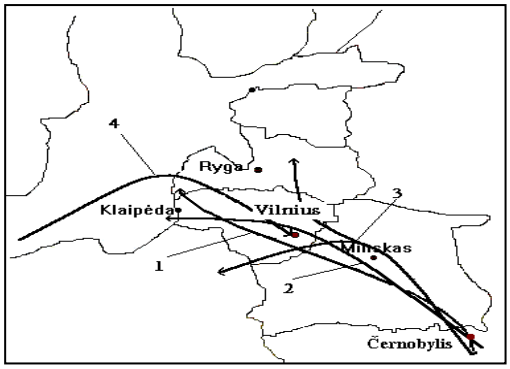
Kitas svarbus faktorius nuklido pernašoje dirvoje yra augalų įsisavinimas[21]. Cezis yra chemiškai panašus su kaliu, todėl augalai gali įsisavinti abu šiuos elementus [3]. Radionuklido ^{137}Cs pasisavinimo augalams įtaką turi mažas kiekis K^+ bei cezio kiekio esančio kietojoje būsenoje santykis su to paties radionuklido kiekiu esančiu skystojoje būsenoje (4) [21]:

$$K_D(Cs^+)(ml\ g^{-1}) = \frac{(Cs^+)_{Solid}}{(Cs^+)_{Liquid}} \quad (4)$$

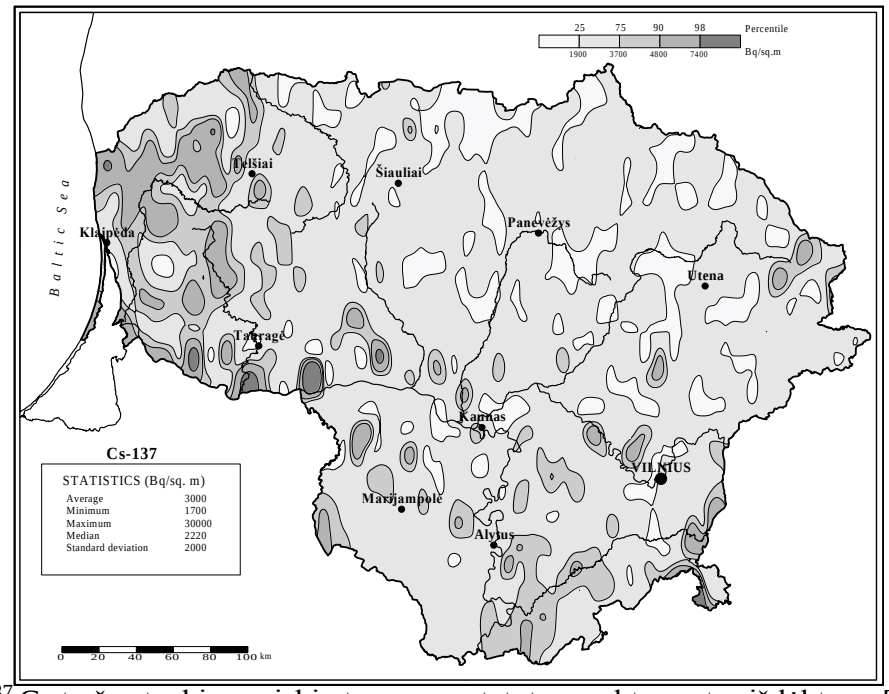
UŽTERŠIMO ^{137}Cs TYRIMAI LIETUVOS TERITORIJOJE

Po Černobylio AE avarijos labiausiai užterštomis tapo Lietuvos teritorijos vakarinė, pietvakarinė, pietų ir pietryčių dalys. ^{137}Cs taršos lygis didžiausias pietiniuose ir pietvakariniuose rajonuose. Iki Černobylio AE avarijos daugelyje Lietuvos vietovių ^{137}Cs koncentracija grunte keitėsi nuo 4 iki 8 Bq/kg. Po avarijos ^{137}Cs koncentracija grunte žymiai padidėjo. Pastebėtas dirvožemio užterštumas šiuo nuklidu ne tolygiai, o ,,dėmėmis‘‘(5 pav.), kuris vyravo ir iki Černobylio AE avarijos ir buvo pasklidęs panašia tvarka [22], kaip pateikiama 5pav. Eksperimentiniai duomenys liudija, jog ^{137}Cs koncentracijos pietų, pietvakarių ir vakarų Lietuvoje buvo nevienodos – jos svyravo nuo 2 iki 439 Bq/kg. Pagrindinė ir stipraus užterštumo ir netolygumo priežastis – krituliai, iškritę praslenkant oro masėms, užterštoms Černobylio AE avarijos produktais [6]. 4 pav. parodytos oro masių trajektorijos pirmosiomis dienomis po Černobylio AE avarijos.

Įvertinus nuklido ^{137}Cs koncentracijos ore matavimo duomenis 1971-1984 m. Vilniuje, pastebėta, jog tuo metu užteršimas radioaktyviaisiais nuklidais buvo mažesnis negu po Černobylio avarijos. 1971m. maksimumas (1,84 mBq/m^3), atsiradęs dėl kinų branduolinių bandymų kovo mėn. pabaigos trijų termobranduolinių užtaisų bandymai Šiaurės Urale. 1981 m. maksimumas (1,47 mBq/m^3) – Kinijoje susprogdinto megatoninio užtaiso padarinys [6].



4 pav. Oro masių trajektorijos 1986 m. balandžio mėn. 26-30 d.: 1 – balandžio mėn. 26-27 d.; 2 – balandžio mėn. 27-28 d.; 3 – balandžio mėn.28-29 d.; 4 – balandžio mėn.29-30 d. [15].



5pav. ^{137}Cs taršos tankio pasiskirstymas, nustatytas spektrometru iš lėktuvo [15]

DARBO METODIKA

Praktinio eksperimento metu imama dirvožemio bandinio kolonėlė, kuri yra padalinama sluoksniais ir matuojama gama spektrometru. Toliau yra analizuojami ilgalaikių matavimų rezultatai, kurie lyginami su rezultatais, gautaisiais praktinio darbo metu.

Dirvos bandinio kolonėlė, naudojama šiam darbui, 2016 m. spalio mėn. buvo paimta Vilniuje, Savanorių pr. 231, šalia Fizikos instituto. Nepažeistos dirvos bandiniai buvo paimti 30 cm gylio, 12,5 cm diametro kolonėlės pagalba. Vietovė pasirinkta atokesnė nuo medžių ar krūmokšnių bei kelių. Paimti bandiniai buvo gabenami į laboratoriją, suskirstomi į sluoksnius po 1 cm. Kiekvienas sluoksnis buvo sveriamas ir talpinamas į kiuvetes. Bandiniai ruošiami matavimui gama spektrometru (6 pav.).



6 pav. Matavimo įranga – gama spektrometras po švino šarvu, indas su skystu azotu, kanalinis analizatorius/priešstiprintuvis, kompiuteris.

Gama spektrometras pagal energijas ir efektyvumą kalibruotas maišytu 270,4 g Eu-Cs šaltiniu kiuvetėje: ^{137}Cs aktyvumas 1994-10-27 buvo 920 Bq·kg^{-1}, ^{152}Eu – 1690 Bq·kg^{-1}. Spektrometro efektyvumo priklausomybė nuo energijos 93,07 g masės bandiniui (5):

$$\xi = 0{,}0112+0{,}083 \cdot e^{-\frac{x}{267{,}16}}, \quad (5)$$

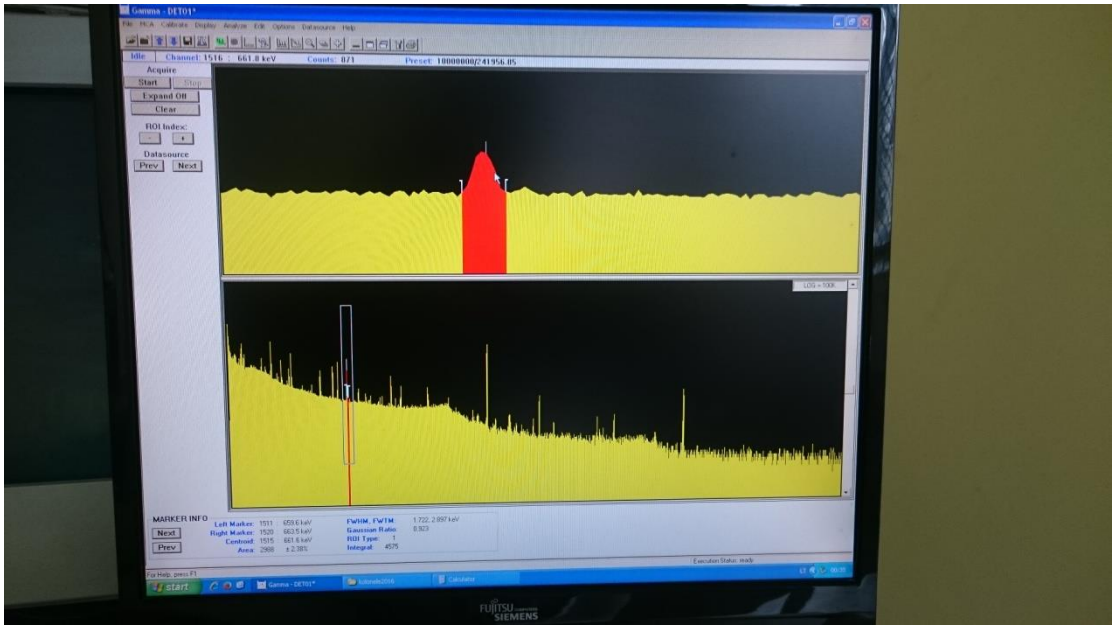
kur x – ieškomas linijos efektyvumas, [keV].

Dirvos bandinys dedamas ant detektoriaus paviršiaus, po švino šarvu (7 pav.):



7 pav. Bandinys ant detektoriaus

Kiekvienas bandinys buvo matuojamas vidutiniškai dvi paras. Duomenys registruojami GENIE programine įranga (8pav):



8 pav. Gama spektrometro programinė įranga

Kiekvienam dirvos bandiniui užregistruojami duomenys: impulsų skaičius, atitinkantis 662 keV energiją, impulsų skaičiaus paklaida, matavimo trukmė, efektyvumas.

Išmatavus 30 dirvos bandinių skaičiuojamas ^{137}Cs aktyvumas, pasinaudojant (6) formule.

$$A = \frac{N}{\Delta t \cdot \xi \cdot \Phi} \quad (6)$$

kur A – aktyvumas [Bq], N – smailės plotas (impulsų skaičius), Δt – matavimo trukmė, ξ – efektyvumas, Φ – kvantinė išeiga. ^{137}Cs skilime $\Phi = 0{,}846$.

Suskaičiavus A vertes visiems dirvožemio kolonėlės sluoksniams, atvaizduojame tūrinio aktyvumo A_T [Bq/m^3] pasiskirstymą gilyn grafiškai. Pasinaudojus (2) išraiška, aproksimuojame eksperimentinį savitojo aktyvumo pasiskirstymo pirmąjį piką, surandant tinkamiausią trijų parametrų (V,D,C_0) kombinaciją. Randame savitąjį aktyvumą A_S [Bq/g], pavaizduojame grafiškai. Įvertiname paklaidas, kurios yra skaičiuojamos spektrometro programine įranga. Rezultatus palyginame su ankstesniais matavimais.

Antra praktinio darbo dalis yra organikos kiekio dirvožemio bandiniuose nustatymas. Kiekvienas bandinys yra pasveriamas ir talpinamas į tiglius (9 pav.). Bandiniai džiovinami krosnelėje ir deginami 400 ^{0}C temperatūroje (10 pav.).



9 pav. Bandinių talpinimas į tiglius ir jų svėrimas



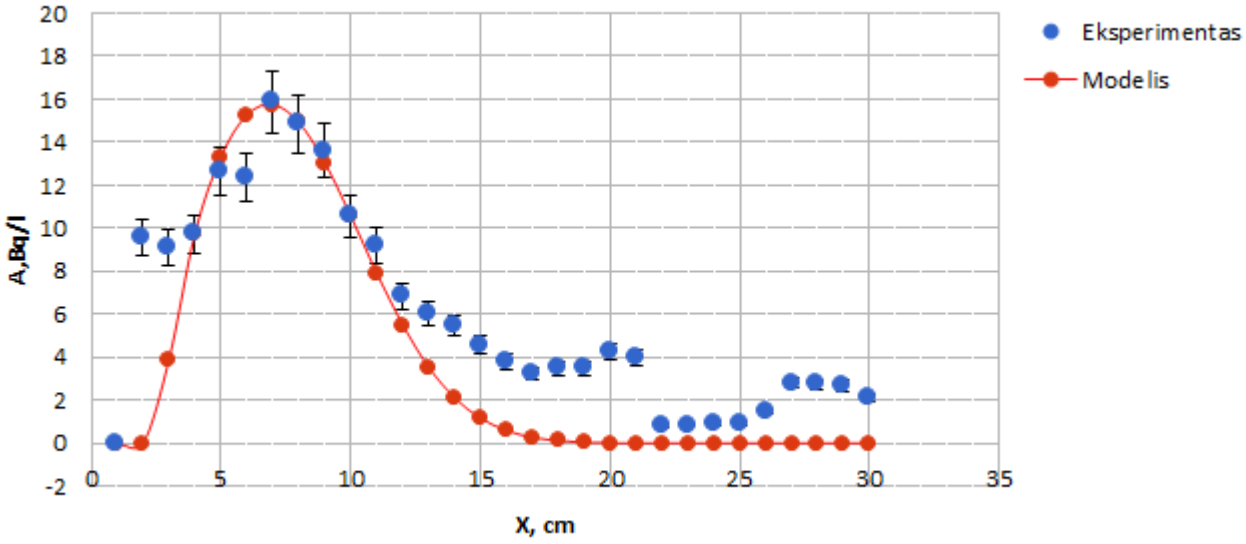
10 pav. Bandiniai deginami krosnyje

Sudeginus bandinius yra nustatomas masių skirtumas, kuris bus laikomas kaip organikos kiekis bandinyje. Grafiškai atvaizduojama bandinių procentinio organikos kiekio priklausomybė nuo gylio. Rezultatai analizuojami, palyginami su teoriniais šaltiniais, kitų autorių eksperimentų rezultatais.

DARBO REZULTATAI IR JŲ APTARIMAS

Šis tiriamasis darbas susideda iš praktinės dalies ir ilgalaikės radiocezio migracijos aplinkoje analizės.

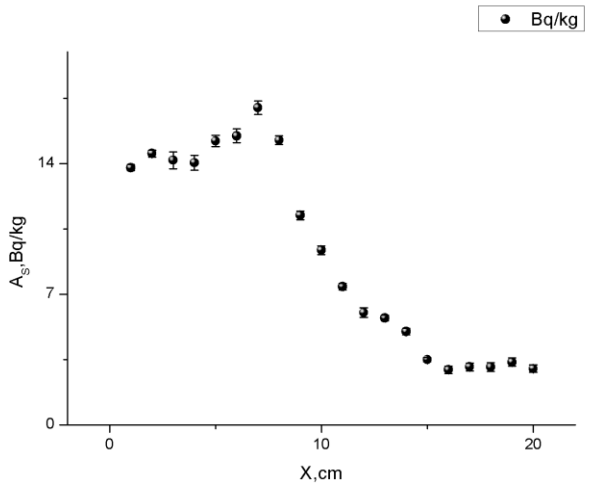
Paėmus tiriamąją dirvos bandinio kolonėlę ir išmatavus 30 pirmųjų sluoksnių, buvo nustatytas tūrinio aktyvumo gilyn pasiskirstymas, bei pagal (2) formulę sumodeliuotas pirmojo maksimumo pasiskirstymas. Rezultatai pateikiami 11 pav.:



11 pav. ^{137}Cs tūrinio aktyvumo (A) pasiskirstymas pagal gylį (x)

Sumodeliuotos V, D, C_0 vertės yra šios: V = 0,19 cm/metus, D = 0,22 cm^2/metus, C_0 = 1450Bq/m^2.

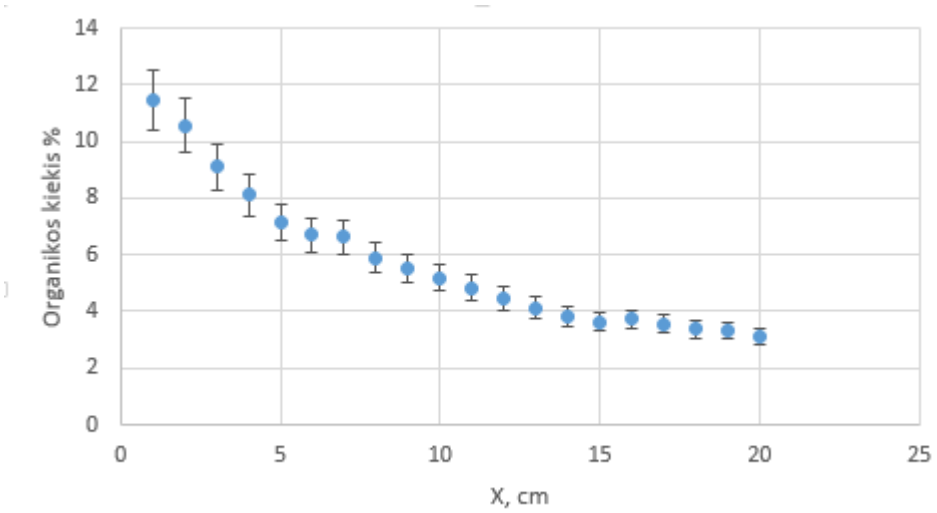
Savitojo aktyvumo pasiskirstymas, (12pav.) atrodo kitaip dėl nevienodo dirvožemio tankio, kuris kinta su gyliu:



12 pav. ^{137}Cs savitojo aktyvumo (A) pasiskirstymas pagal gylį (x)

Susisteminus eksperimento rezultatus, matome, jog radionuklido aktyvumo didžiausios vertės yra ties 6-7 cm. Numanoma tokio radionuklido pasiskirstymo priežastis galėtų būti Černobylio AE avarijos bei branduolinių bandymų pasklidusi radioaktyvi tarša.

Sudeginus 20 pirmųjų sluoksnių buvo įvertintas santykinis organinių medžiagų kiekis bandiniuose. Rezultatai pateikiami grafiškai:

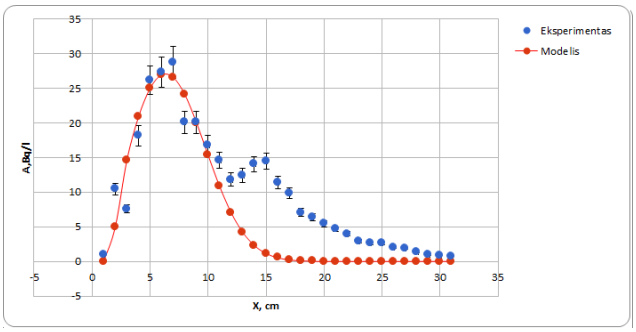


13 pav. 2016m. paimtosios dirvožemio kolonėlės organikos kiekio priklausomybė nuo gylio

Matome, jog didžiausias organikos kiekis susikaupęs pirmuosiuose 5-iuose sluoksniuose, todėl galime teigti, kad tūrinio aktyvumo pikas esantis ties 6-7 cm yra susikaupęs vos tik pasibaigus gausesniam organikos kiekiui. Tai patvirtina teorinius teignius, pateiktus [19] šaltinyje.

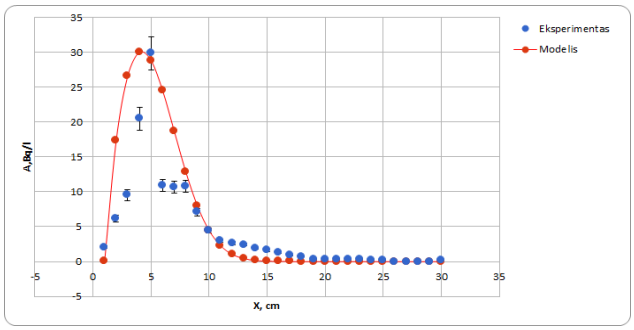
Toliau šiame darbe analizuojami ilgalaikiai ^{137}Cs migracijos aplinkoje matavimai, naudojami analogiški skaičiavimo metodai (2 formulė), naudoti praktinio eksperimento duomenų analizei, įvertinamas standartinis migracijos grečio nuokrypis. Pateikiami 9 dirvos bandinių kolonėlių, paimtų 2012 m., tūrinių aktyvymų pasiskirstymai gilyn, kartu su migracijos parametrų vertėmis (V, D, C_0):

Senajame Tapelių ežero kanale



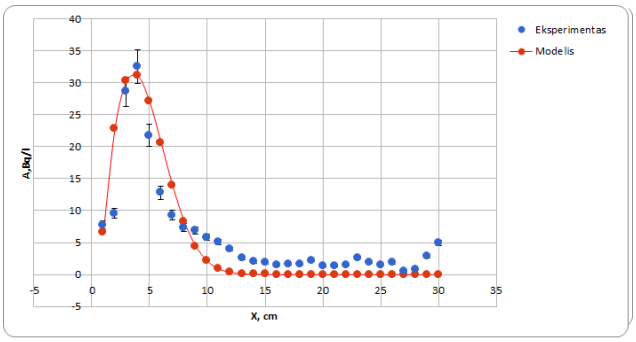
C_0, [Bq/m^2]	D,[cm^2/metus]	V,[cm/metus]
2350	0,2	0,21

Ant Juodžio ežero kranto (rytinėje pusėje)



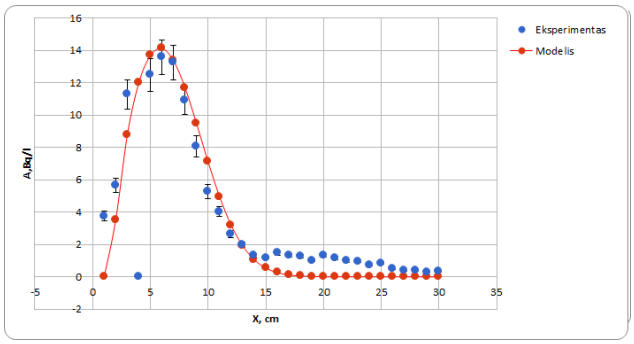
C_0, [Bq/m^2]	D,[cm^2/metus]	V,[cm/metus]
2050	0,25	0,185

Į vakarus nuo Visagino AE (~3 km)



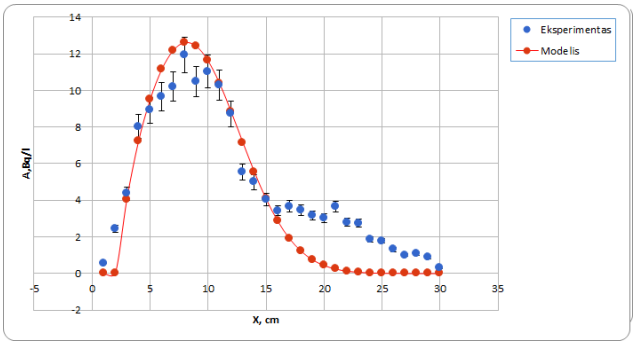
C_0, [Bq/m^2]	D,[cm^2/metus]	V,[cm/metus]
2200	0,21	0,14

Ant Juodžio ežero kranto (vakarų pusėje)



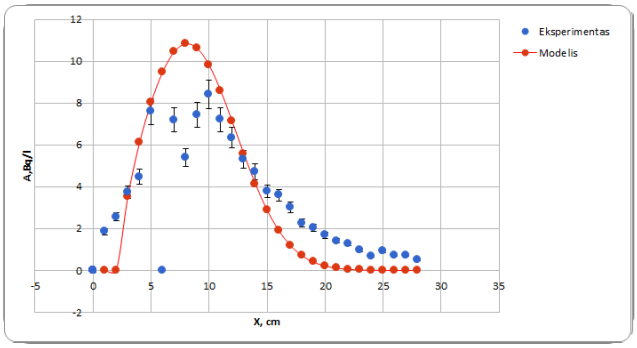
C_0, [Bq/m^2]	D,[cm^2/metus]	V,[cm/metus]
1300	0,22	0,19

Į pietus nuo Visagino AE (~3 km)



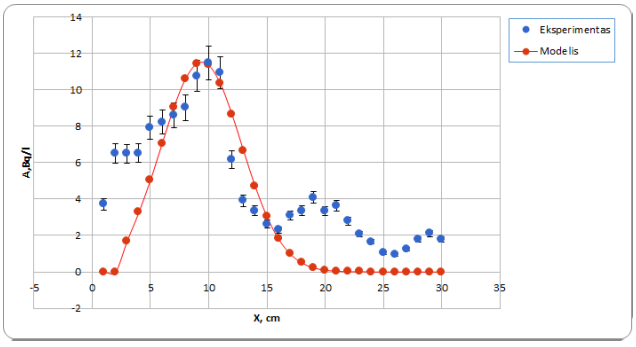
C_0, [Bq/m^2]	D,[cm^2/metus]	V,[cm/metus]
1450	0,35	0,27

Toliausiai nuo Stabatiškių, pietrytinėje pusėje



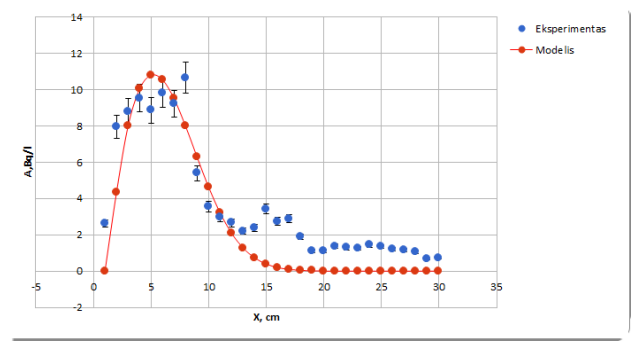
C_0, [Bq/m^2]	D,[cm^2/metus]	V,[cm/metus]
1150	0,3	0,27

Netoli nuo Visagino AE (~ 0,5 km į pietus)



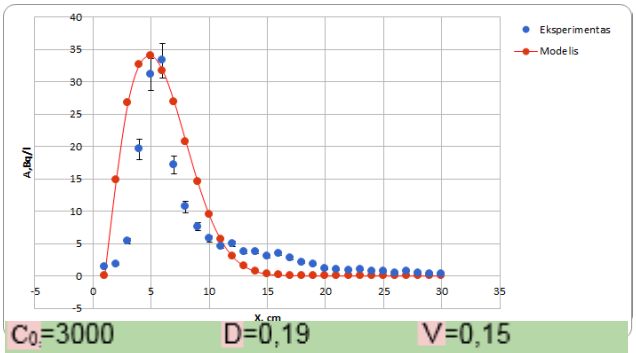
C_0, [Bq/m^2]	D,[cm^2/metus]	V,[cm/metus]
850	0,25	0,4

Šalia Maišiagalos rad. atliekų saugojimo punkto



C_0, [Bq/m^2]	D,[cm^2/metus]	V,[cm/metus]
1200	0,27	0,15

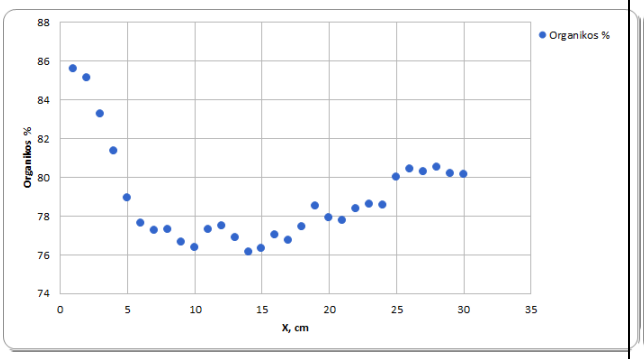
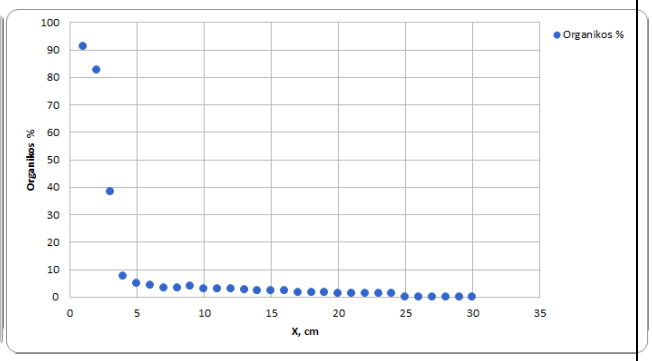
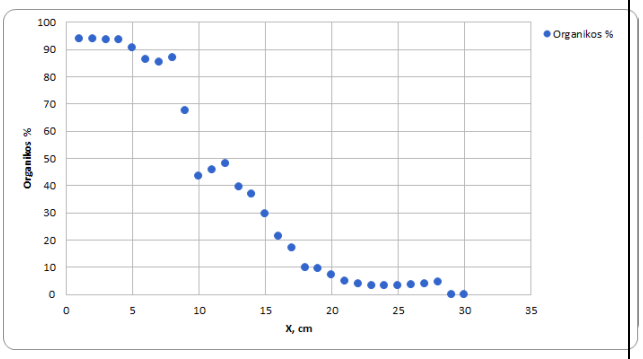
Į pietr. nuo Stabatiškių rad. atliekų saugojimo p.



C_0=3000	D=0,19	V=0,15

1 lentelė. 2012m atlikto eksperimento modeliavimo rezultatai.

Trijų iš jų – organikos kiekio pasiskirstymai gilyn:

Senajame Tapelių ežero kanale	Ant Juodžio ežero kranto (vakarų pusėje)
	
Toliausiai nuo Stabatiškių, pietrytinėje pusėje	
	2 lentelė. Dirvos bandinių organikos kiekio priklausomybė nuo gylio

Praktinio darbo metu paėmus bandinio kolonėlę ir išmatavus 30 pirmųjų sluoksnių, gautosios V, D, C_0 vertės (V = 0,19 cm/metus, D = 0,22 cm^2/metus, C_0 = 1450 Bq/m^2) nežymiai skiriasi nuo 2012 m. eksperimento metu gautųjų rezultatų (vidutiniškai V = 0,21 ÷ 0,08 cm/metus, D = 0,25 ÷ 0,05 cm^2/metus). Šis skirtumas gali būti stebimas dėl nevienodos radionuklido ^{137}Cs užterštumo koncentracijos pietų, pietvakarių ir vakarų Lietuvoje (5 pav.), kurį paveikė krituliai, iškritę praslenkant oro masėms, užterštoms Černobylio AE avarijos produktais (4 pav.) [6]. Kita tokio skirtumo priežastis yra nevienodas vyraujantis dirvožemio tipas, vietose, kuriose buvo imti bandiniai [15-18].

Sudeginus tiriamuosius bandinius gautas kiekvieno sluoksnio organikos santykinis kiekis, kurio didžiausias kiekis buvo pasiskirstęs vidutiniškai iki 5 cm. Tuo tarpu tūrinio aktyvumo pasiskirstymo gilyn maksimumai buvo pasiskirstę ties 5-10 cm.

Buvo pastebėta, kad Černobylio kilmės radiocezis pasižymi didesniu judrumu, nei po branduolinių ginklų bandymų iškritęs radiocezis [23,24].

Matome, kad ^{137}Cs aktyvumo pasiskirstymas dirvožemyje pagal gylį yra nevienodas, jis turi maksimumą 3-12 cm gylyje. Tačiau, kai kuriose vietose stebimos ne vienas, o du pasiskirstymo maksimumai. Kelių maksimumų vertikalaus pasiskirstymo mechanizmas gali būti surištas su

organinių medžiagų dirvoje buvimu. Antros smailės atsiradimą skatina dvi tarpusavyje surištos priežastys: pakankamas organinių medžiagų kiekis, dėl kurių cezio jonai išplaunami ir pakeičiami NH_4^+ jonais, o taip pat gruntinio vandens lygio svyravimai, kurie leidžia ceziui, perėjusiam į tirpią formą, migruoti gilyn.

Organinių medžiagų santykinis kiekis buvo išmatuotas trijuose bandiniuose iš dešimties, paimtų 2012 m. tyrimo metu, ir šio darbo praktikinio eksperimento metu paimtame 2016 m. Bandinyje, paimtame senname Tapelių ežero kanale, organinių medžiagų dirvoje kiekis gana didelis, ypač pirmuose 5 cm. ^{137}Cs pasiskirstymo kreivėje aiškiai matosi antras maksimumas, ir galima teigti, kad jis yra susidaręs dėl gausaus organikos kiekio (1 lentelė, 1 grafikas). Bandinyje, paimtame toliausiai nuo Stabatiškių, pietrytinėje pusėje pastebėtas didelis organinių medžiagų kiekis. Matome, kad antrasis cezio maksimumas (5 cm gylyje) yra didesnis už pirmą (10 cm gylyje), tai reiškia, jog didžioji ^{137}Cs dalis migravo gilyn, o didelis smailės plotas parodo šio proceso nevienodumą (1 lentelė, 6 grafikas). Bandinyje, paimtame ant juodžio ežero kranto vakarinėje pusėje, organinių medžiagų kiekis nemažas tik viršutiniame sluoksnyje, kas sukelia didelį pirmojo maksimumo plotą bei labai mažą antrą maksimumą (1 lentelė, 4 grafikas). Bandinyje, paimtame praktinio eksperimento metu Vilniuje, Savanorių pr. 231, šalia Fizikos instituto, organinių medžiagų kiekis mažas. Todėl antrojo maksimumo nėra, tik šiek tiek platesnė pirma smailė (9 pav.).

Šaltiniuose [16,17,18] nurodytos tipinės radiocezio vertikaliosios migracijos parametrų (V,D) vertės yra pateikiamos 3 lentelėje:

Dirvos tipas:	V [$cm^2 \cdot m.^{-1}$]	D [$cm^2 \cdot m.^{-1}$]
Šiaurinis velėninis dirvožemis	0,46	0,19
Priesmėlis	0,14	0,17
Sunkus priemolis	0,16÷0,20	0,22÷0,87
Smėlis	0,11	0,15
Molis	0,32	0,46

3 lentelė. Tipinės radiocezio vertikaliosios migracijos parametrų vertės

1999-2000 metų eksperimentų, atliktų vakarų, šiaurės vakarų ir pietų Lietuvoje duomenimis radiocezio pasiskirstymo dirvožemyje maksimumas yra 0-5 cm gylyje, o gautoji radionuklido vertikalios migracijos greičio vertė yra 0,23 cm/metus [4].

2012 m. eksperimento, atlikto rytų, pietryčių regionuose duomenimis, įvertinta vertikaliosios migracijos greičio vertė yra 0,21 ÷ 0,08 cm/metus, difuzijos koeficiento vertė yra 0,25 ÷ 0,05 cm^2/metus, o radiocezio pasiskirstymo dirvožemyje maksimumas buvo gautas 4-8 cm gylyje [8].

IŠVADOS

1. Atlikus praktinį darbą įsisavinta bandinio paėmimo metodika, bandinio paruošimas matavimui, gama spektrometrijos pagrindai.
2. Literatūroje pateikiamo 1999-2000 metais atlikto eksperimento duomenimis radiocezio pasiskirstymo dirvožemyje maksimumas yra 0-5 cm gylyje, o 2016m. eksperimento metu šio radionuklido aktyvumo maksimumas yra pasiskirstęs ties 6-7 cm, todėl galime teigti, jog radiocezio koncentracijos maksimumas yra pasislinkęs gilyn.
3. Sumodeliavus 2012 metų eksperimentą, migracijos greičio vertė (vidutiniškai $V = 0{,}21 \div 0{,}08$ cm/metus) yra paklaidų ribose sutampanti su gautosiomis praktinio eksperimento metu ($V =$ 0,19 cm/metus) bei 2000 m. tyrimo metu gautaja verte (vidutiniškai 0.23 cm/metus [4]).
4. Suskaičiavus organikos santykinį kiekį bandiniuose pastebėta, jog šis skirtingai įtakoja migracijos mechanizmą: didėjant organikos kiekiui dirvoje, atitinkamai didėja ir radionuklido mobilumas. Tai patvirtina teorinius teiginius, aprašytus [21,22] šaltiniuose.

ŠALTINIAI

1. A. Poškus, *Atomo fizika ir branduolio fizikos eksperimentiniai metodai* (Vilnius, Vilniaus universiteto leidykla, 2008).
2. ANPA 2000: SEMINAT. *Long-term dynamics of radionuclides in semi-natural environments: derivation of parameters and modelling*. Final report 1996-1999, European Commission-Nuclear Fission Safety Programme.
3. *Market B. and V. Weckert. Time and Site Integrated Long-term Biomonitoring of Chemicals by Means of Mosses*. Toxicological and Environmental Chemistry 40 (1989) 177-189.
4. D. Butkus and M. Konstantinova. *On long-term ^{137}Cs Migration in the upper layer of Lithuanian soils*. Lithuanian Journal of Physics 43 (2003) 403-408.
5. Educational website about physics topics. *(*žiūrėta 2016-11- 12*)* Prieiga per internetą*:* http://hyperphysics.phy-astr.gsu.edu/hbase/NucEne/fisfrag.html.
6. *Lietuvos užterštumas radionuklidais ir jo pasėkmės*. Vilnius ,,Academia‘‘ 1992.
7. M. D. Bondarkov,* V. A. Zheltonozhsky,† M. V. Zheltonozhskaya,†. *Vertical migration of radionuclides in the vicinity of the chernobyl confinement shelter*. Radioactive Waste and Radioecology *(*2011).
8. M. Konstantinova, B. Lukšienė, N. Tarasiuk, E. Maceika, D. Butkus. *Ilgalaikė ^{137}Cs migracijos greičio palyginamoji analizė*. Konferencija “Černobylio atominės elektrinės avarija: pamokos ir pasekmės (po 30 metų)” (2016).
9. Social networking site for scientists and researchers to share papers, ask and answer questions, and find collaborators. *(*žiūrėta 2016-11-18*)* Prieiga per internetą*:* https://www.researchgate.net/publication/261949494_Migration_of_Radiocesium_in_Lea_and_Plowed_Soils_of_Agricultural_Landscapes_in_Tula_Region.
10. Stanford university,department of physics. *(*žiūrėta 2016-11-18*)* Prieiga per internetą*:* http://large.stanford.edu/courses/2012/ph241/wessells1/.
11. Company publishing information about a variety of topics associated with atomic technologies. *(*žiūrėta 2016-11-18*)* Prieiga per internetą*:* http://atomicinsights.com/how-much-i-131-and-cs-137-was-released-into-atmosphere-at-fukushima/.
12. H. Horodničius. Branduolio fizika. Vilnius, 1997.
13. UAB "VAE SPB" yra "Lietuvos energija", UAB, įmonių grupės narys. *(*žiūrėta 2017-05-02*)* Prieiga per internetą*:* http://www.vae.lt/lt/ziniu-centras/grandinine-branduoliu-dalijimosi-reakcija.
14. Scientific publisher supported by the french institute of Nuclear Physics and Particle Physics (IN2P3). EDP-Sciences. *(*žiūrėta 2017-03-04*)* Prieiga per internetą*:*

http://www.radioactivity.eu.com/site/pages/Caesium_137.htm.

15. M. Konstantinova.. *Lietuvos teritorijos užterštumo ^{137}Cs tyrimai iki ir po Černobylio avarijos*. Daktaro disertacija (2002).
16. Ivanov Y.A. et al. *Migration of ^{137}Cs and ^{90}Sr from Chernobyl Fallout in Ukraina, Belarusian and Russian Soils* // Journal of Environmental Radioactivity 15 (1997) 1-21.
17. J.R. Simmonds, G. Lawson, A. Mayal. *Radiation protection 72: Methodology for Assessing the Radioecological Consequences of Routine Releases of Radionuclides to the Environment*. – Brussels-Luxembourg, 1995. – Report – EUR 15760EN.
18. Санжарова И.И. и др. *Количественные параметры вертикальной миграции радионуклидов в почвах на лучах различных типов //* Радиационная биология. Радиоэкологиия (1996) 488-497.
19. Sawhney B. L. *Selective sorption and fixation of cations by clay and clay minerals*. A review. Clays and clay minerals (1972) 93-100.
20. S. Stauntona,*, C. Dumatb, A. Zsolnayc. *Possible role of organic matter in radiocaesium adsorption in soils*. Journal of Environmental Radioactivity 58 (2002) 163-173.
21. A. Rigol*, M. Vidal, G. Rauret. *An overview of the effect of organic matter on soil–radiocaesium interaction: implications in root uptake*. Journal of Environmental Radioactivity 58 (2002) 191-216.
22. D. Butkus, M. Lebedyte, G. Lubyte, K. Matusevičius, J. Mažeika. *^{137}Cs and ^{90}Sr in the Soils of Lithuania.* Geochemistry international 39 (2001).
23. Hilton, J., Rigg, E., Davison, W., Hamilton-Taylor, J. et al. (1995*). Modeling and interpreting element ratios in water and sediments: a sensitivity analysis of post-Chernobyl Ru:Cs ratios*. Limnol. Oceanogr. 40, 1302-1309.
24. B. Rafferty, M. Brennan, D. Dawson and D. Dowding. *Mechanisms of 137Cs migration in coniferous forest soils*. Journal of Environmental Radioactivity 48 (2000) 131-143.

SANTRAUKA

Aplinkos užteršimo priežastis ^{137}Cs yra jo nuotėkis iš branduolinių jėgainių, o taip pat branduolinio ginklo bandymo rezultatas. Į gamtą pasklidęs šis radionuklidas sukelia didelį pavojų: dėl savo vidutinės pusėjimo trukmės (30,17 m.) gamtoje ^{137}Cs pakankamai ilgai išlieka radioaktyvus, tačiau net ir maži jo kiekiai yra jonizuojančios spinduliuotės šaltinis. Šio darbo tikslas yra išanalizuoti ilgalaikius radiocezio vertikaliosios migracijos dirvoje tyrimų rezultatus (2000 m. ir 2012 m.), o taip pat atlikti praktinį eksperimentą ir palyginti jį su ilgalaikiais matavimais. Paėmus tiriamąją dirvos bandinio kolonėlę ir išmatavus 30 pirmųjų sluoksnių, buvo gautos migracijos koeficientų vertės ($V = 0,19$ cm/metus, $D = 0,22$ cm^2/metus) bei surastas organikos kiekis bandiniuose. Suskaičiavus 2012m. eksperimento migracijos parametrų vertes (vidutiniškai $0,21 \div 0,08$ cm/metus, $D = 0,25 \div 0,05$ cm^2/metus), gautosios vertės palygintos su 1999-2000 m. matavimais. Nustatyta, jog radiocezio koncentracijos maksimumas nuo 2000 m. yra pasislinkęs gilyn, o vertikaliosios migracijos greičio vertė, nustatyta praktinio bandymo metu ($V = 0,19$ cm/metus) paklaidų ribose sutampa su 2012m. eksperimento verte ($V = 0,21 \div 0,08$ cm/metus). Suskaičiavus organikos santykinį bandiniuose kiekį pastebėta, jog šis skirtingai įtakoja migracijos mechanizmą: didėjant organikos kiekiui dirvoje, atitinkamai didėja ir radionuklido mobilumas. Tai patvirtina teorinus teiginius, aprašytus [21,22] šaltiniuose.

Erikas Ustila

^{137}CS VERTICAL MIGRATION RATE LONG-TERM COMPARATIVE ANALYSIS

SUMMARY

Environment contamination with artificial radionuclide ^{137}Cs is a consequence of nuclear power plant released pollution and nuclear bomb testing. Released into environment, this nuclide is very dangerous, because of middle half-life (30.17 year) and similar chemical properties with ^{40}K. Even small amounts of it are the source of radiation. The aim of this research is to analyse long-term ^{137}Cs vertical migration data and make the practical experiment, then compare the results. The soil column was sampled, divided into 1 cm layers and 30 examples were measured with the gamma spectrometer. The parameters of long-term vertical migration of ^{137}Cs and amount of organic matter were determined ($V = 0{,}19$ cm/year, $D = 0{,}22$ cm^2/year). Migration parameters of 2012 ($V = 0{,}21 \div 0{,}08$ cm/year, $D = 0{,}25 \div 0{,}05$cm^2/year) were determined. Evaluated vertical migration rate of ^{137}Cs is very similar within the margin of error, comparing data of researches done in 2012 and 2000 year respectively. Result of 2000 experiment shows that peak concentration of ^{137}Cs in soil has migrated downwards. Experiment shows that amount of organic matter in the soil affects radiocaesium migration mobility, so experimental results confirm the theory.