

УДК 539.12

## ИСПОЛЬЗОВАНИЕ КОРРЕЛЯЦИОННЫХ СООТНОШЕНИЙ ДЛЯ ОПРЕДЕЛЕНИЯ ВКЛАДОВ ТОПЛИВНОЙ И КОНДЕНСАЦИОННОЙ СОСТАВЛЯЮЩИХ В ЧЕРНОБЫЛЬСКИХ РАДИОАКТИВНЫХ ВЫПАДЕНИЯХ

Э.А. Рудак<sup>1</sup>, Н.В. Максименко<sup>2</sup>, В.В. Андреев<sup>2</sup>, О.И. Ячник<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Институт Физики им. Б.И. Степанова НАН РБ, Минск

<sup>2</sup>Гомельский государственный университет им. Ф. Скорины, Гомель

## THE USE OF CORRELATION RELATIONS FOR DETERMINATION OF FUEL AND CONDENSATION COMPONENTS IN CHERNOBYL RADIOACTIVE SEDIMENT

E.A. Rudak<sup>1</sup>, N.V. Maksimenko<sup>2</sup>, V.V. Andreev<sup>2</sup>, O.I. Yachnik<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Institute of Physics NAS RB, Minsk

<sup>2</sup>F. Scorina Gomel State University, Gomel

Описывается метод определения топливной и конденсационной составляющих в чернобыльских радиоактивных выпадениях. Этот метод основан на изучении статистических характеристик активностей пар нуклидов.

**Ключевые слова:** цезий, активность, радионуклид, радиоактивные выпадения.

The method of determination of fuel and condensation components in Chernobyl radioactive sediments is described. It is based on the investigation of statistic behavior of radionuclid pair radioactivity.

**Keywords:** caesium, radioactivity, radionuclid, radioactive sediments.

### Введение

Для характеристики радиоактивных выпадений чернобыльского происхождения были введены так называемые коэффициенты фракционирования  $f_{i,95}=(A_i/A_{95})/(Y_i/Y_{95})$ , где  $A_i$  и  $A_{95}$  – измеренные на местности активности  $i$ -го и  $^{95}\text{Zr}$ , а  $Y_i$  и  $Y_{95}$  – рассчитанные теоретически активности тех же нуклидов в активной зоне реактора на момент аварии [1].

Необходимость введения коэффициентов фракционирования объясняется тем, что некоторые радионуклиды чернобыльского происхождения выпали только в составе топливных частиц (топливные радионуклиды), а некоторые в составе топливных частиц и частично и в виде конденсатов на микрочастицах (конденсационные радионуклиды). Ряд нуклидов был выброшен практически полностью в конденсационном виде.

Для характеристики радиоактивных выбросов были введены понятия «летучие» и «нелетучие» радионуклиды. Топливные радионуклиды ( $^{95}\text{Zr}$ ,  $^{141}\text{Ce}$ ,  $^{144}\text{Ce}$  и др.) считаются «нелетучими» и не распространяются на большие расстояния от источника, поскольку основной выброс топлива приходится на 30-км зону ЧАЭС. Конденсационные же радионуклиды, напротив, считаются «летучими» ( $^{131}\text{I}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  и др.) и могут распространяться на большие расстояния от источника.

Понятия «летучий» и «нелетучий» радионуклида весьма условны. Один и тот же нуклид (например, изотопы рутения  $^{103}\text{Ru}$ ,  $^{106}\text{Ru}$ ) в силу разных обстоятельств может вести себя и как «нелетучий», и как «летучий» (конденсационная форма преобладает над топливной). Коэффициенты фракционирования  $f_{i,95}=(A_i/A_{95})/(Y_i/Y_{95})$  характеризуют степень «летучести»  $i$ -го радионуклида по отношению к «нелетучему»  $^{95}\text{Zr}$ . Региональные коэффициенты фракционирования для различных районов Гомельской и Могилевской областей в зависимости от уровня загрязнения почвы  $^{137}\text{Cs}$  приведены в [2].

На практике мы можем иметь дело с парой нуклидов, которые оба обладают большей «летучестью», чем топливные радионуклиды. На возможность оценить относительную «летучесть» одного нуклида по отношению к другому и в этом случае указано в [3], [4] на примере оценки запаса  $^{90}\text{Sr}$  в почве украинской части 30-км зоны ЧАЭС по известному запасу  $^{137}\text{Cs}$ , сделанной в работах [5], [6].

Оказывается, что для этого необходимо рассматривать одновременно средние значения прямых и обратных отношений пар исследуемых активностей. В частности, в [3], [4] проводился анализ только нескольких пар средних прямых и обратных отношений активностей типа  $\langle A(^{90}\text{Sr})/A(^{137}\text{Cs}) \rangle$ ,  $\langle A(^{137}\text{Cs})/A(^{90}\text{Sr}) \rangle$ , поскольку в [5], [6] решалась довольно узкая задача.

Поэтому имеет смысл расширить круг исследуемых нуклидов и, соответственно, решаемых задач. Например, определение топливного и конденсационного вкладов в загрязнении почвы плутонием.

Поскольку на кафедре теоретической физики ГГУ им. Ф.Скорины и в Институте физики им. Б.И.Степанова НАН РБ в течение ряда лет велись сходные по методике вычислений исследования корреляционных отношений для активностей пар нуклидов чернобыльского происхождения, то есть возможность на более солидном, чем в [3], [4], экспериментальном материале провести аналогичные расчеты.

Проведение таких расчетов и является основной задачей настоящей работы. Предварительно, однако, рассмотрим общие свойства средних прямых и обратных отношений между активностями пар радионуклидов на примере задачи по определению неизвестного запаса одного радионуклида по известному запасу другого радионуклида.

### 1 Общие положения теории прямых и обратных отношений активностей пар радионуклидов

Для установления общих требований к данным эксперимента и методике определения неизвестного запаса  $Q(A)$  нуклида  $A$  по известному запасу  $Q(B)$  нуклида  $B$ , рассмотрим самый простой случай, когда на площади  $S$  известен и запас  $Q(A)$ , и запас  $Q(B)$  [3], [4].

Очевидно, что запас  $Q(A)$  может быть найден по запасу  $Q(B)$  с помощью соотношения

$$Q(A) = Q(B) \langle A/B \rangle_{\text{ар}}, \quad (1.1)$$

где под  $\langle A/B \rangle_{\text{ар}}$  следует понимать среднее арифметическое от суммы  $n$  локальных прямых отношений активностей  $a_i/b_i$ :

$$\langle A/B \rangle_{\text{ар}} = (a_1/b_1 + a_2/b_2 + \dots + a_n/b_n)/n. \quad (1.2)$$

На первый взгляд, казалось бы, что верным должно быть и аналогичное соотношение

$$Q(B) = Q(A) \langle B/A \rangle_{\text{ар}} \quad (1.3)$$

с  $\langle B/A \rangle_{\text{ар}}$ , равному среднему арифметическому от суммы  $n$  локальных обратных отношений активностей  $b_i/a_i$

$$\langle B/A \rangle_{\text{ар}} = (b_1/a_1 + b_2/a_2 + \dots + b_n/a_n)/n. \quad (1.4)$$

В действительности это не так, и формула (1.3) для  $Q(B)$  с  $\langle B/A \rangle_{\text{ар}}$  (1.4) неверна. Покажем, что вместо  $\langle B/A \rangle_{\text{ар}}$  в (1.3) должно стоять среднее гармоническое  $\langle B/A \rangle_{\text{гар}}$

$$\langle B/A \rangle_{\text{гар}} = n / (a_1/b_1 + a_2/b_2 + \dots + a_n/b_n). \quad (1.5)$$

Действительно, подставив (1.3) в (1.1) получаем, что для известной величины  $\langle A/B \rangle_{\text{ар}}$  и неизвестной величины  $\langle B/A \rangle$  должно выполняться условие

$$\langle B/A \rangle = 1 / \langle A/B \rangle_{\text{ар}}. \quad (1.6)$$

Нетрудно проверить, что данное условие

может выполняться только в одном случае, когда  $\langle B/A \rangle$  является не средним арифметическим, а средним гармоническим от величин  $b_1/a_1 + b_2/a_2 + \dots + b_n/a_n$ . Это обстоятельство и необходимо иметь в виду при определении запаса одного нуклида через запас другого нуклида.

Если это обстоятельство не учитывать, то это приведет к ошибке в определении запаса  $Q(A)$ . Допустим, что мы используем соотношение (1.3) для определения неизвестного запаса  $Q(A)$  с  $\langle B/A \rangle = \langle B/A \rangle_{\text{ар}}$ , т. е. перепишем его в виде

$$Q(A) = Q(B) / \langle B/A \rangle_{\text{ар}}. \quad (1.7)$$

Но  $\langle B/A \rangle_{\text{ар}} = 1 / \langle A/B \rangle_{\text{гар}}$ , поэтому если в (1.7) под  $\langle B/A \rangle$  понимать среднее арифметическое от  $b_i/a_i$ , то запас  $Q(A) = Q(B) \langle A/B \rangle_{\text{гар}}$ .

Ясно, что формула (1.7) в этом случае даст заниженное значение запаса  $Q(A)$  по сравнению с формулой (1.1), так как среднее гармоническое  $\langle A/B \rangle_{\text{гар}}$  по определению меньше среднего арифметического  $\langle A/B \rangle_{\text{ар}}$ . Лишь в одном случае, когда все отношения  $a_i/b_i$  равны между собой,  $\langle A/B \rangle_{\text{ар}} = \langle A/B \rangle_{\text{гар}}$ .

Разброс значений отношений  $a_i/b_i$  зависит от «летучести» нуклидов  $A$  и  $B$ . Наименьшим разброс будет в том случае, если оба нуклида  $A$  и  $B$  топливные. Если же один из нуклидов может выпасть как в топливной, так и в конденсационной форме, то разброс отношений  $a_i/b_i$  будет большим. Этот эффект и можно использовать для количественной оценки относительной «летучести» пар радионуклидов на локальном уровне.

В общем случае на примере радиоактивных выпадений в Гомельской и Могилевской областях этот эффект будет рассмотрен позднее. Здесь же проиллюстрируем его на примере работ [5], [6] и покажем, почему в этих работах было получено заниженное значение запаса  $^{90}\text{Sr}$  в почве украинской части 30-км зоны по известному запасу  $^{137}\text{Cs}$ .

### 2 Расчетно-экспериментальный метод определения запаса $^{90}\text{Sr}$ $Q(^{90}\text{Sr})$ в почве украинской части 30-километровой зоны ЧАЭС по запасу $^{137}\text{Cs}$ $Q(^{137}\text{Cs})$

Известно, что по ряду причин наиболее надежно в объектах наземной экосистемы экспериментально определяется запас  $^{137}\text{Cs}$   $Q(^{137}\text{Cs})$ . В частности, в 30-километровой зоне Украины загрязнение почвы  $^{137}\text{Cs}$  практически полностью определяется аварийными выбросами РБМК-1000 ЧАЭС и на начало 1986 г. запас  $^{137}\text{Cs}$  составил  $Q(^{137}\text{Cs}) \approx 5,5 \cdot 10^{15}$  Бк (см., например, [1], [7], [8] и ссылки в них на другие работы).

Подробная экспериментальная карта-схема распределения локальной плотности загрязнения почвы 30-км зоны Украины  $^{137}\text{Cs}$   $A(^{137}\text{Cs})$  была построена через несколько лет после аварии [8].

В связи с этим появилась возможность использовать эти данные для оценки запаса радионуклида  $^{90}\text{Sr}$   $Q(^{90}\text{Sr})$  и связанных с ним запасов ряда топливных нуклидов и изотопов трансурановых элементов  $Q(^{238}\text{Pu})$ ,  $Q(^{239}\text{Pu}+^{240}\text{Pu})$ .

Такая экспериментально-расчетная работа по уточнению запаса  $^{90}\text{Sr}$   $Q(^{90}\text{Sr})$  в почве 30-километровой зоны Украины с использованием подробных данных по  $^{137}\text{Cs}$  и была сделана в [5]. Результаты этой работы оказались неожиданными. Запас  $^{90}\text{Sr}$  на начало 1986 г. в почве 30-километровой зоны Украины оказался равным  $Q(^{90}\text{Sr}) \approx 1,25 \cdot 10^{15}$  Бк, что гораздо меньше общепринятого до этого значения  $Q(^{90}\text{Sr}) \approx 3 \cdot 10^{15}$  Бк (см. [8], [9] и ссылки в них на другие работы).

В работе [5] для определения запаса  $^{90}\text{Sr}$   $Q(^{90}\text{Sr})$  на локальном уровне для площадки  $i$  использовались только формулы типа (1.7), т.е.

$$Q(^{90}\text{Sr})_i = \frac{Q(^{137}\text{Cs})_i}{\langle A(^{137}\text{Cs})/A(^{90}\text{Sr}) \rangle_i}. \quad (2.1)$$

Необходимо же было использовать и вторую возможность определения запаса  $^{90}\text{Sr}$   $Q(^{90}\text{Sr})$  по формулам типа (1.2)

$$Q(^{90}\text{Sr})_i = \frac{Q(^{137}\text{Cs})_i}{\langle A(^{90}\text{Sr})/A(^{137}\text{Cs}) \rangle_i}. \quad (2.2)$$

Поскольку величины  $\langle A(^{90}\text{Sr})/A(^{137}\text{Cs}) \rangle_i$  и  $\langle A(^{137}\text{Cs})/A(^{90}\text{Sr}) \rangle_i$  являются средними арифметическими, то

$1/\langle A(^{137}\text{Cs})/A(^{90}\text{Sr}) \rangle_{i, \text{гp}} = \langle A(^{90}\text{Sr})/A(^{137}\text{Cs}) \rangle_{i, \text{гp}}$  (следует из  $\langle B/A \rangle_{\text{ap}} = 1/\langle A/B \rangle_{\text{гp}}$ ). Поэтому использованная в [5] формула (2.1) дает заниженный в 2–3 раза запас  $^{90}\text{Sr}$   $Q(^{90}\text{Sr})$ . Если бы в [5] для определения запаса  $^{90}\text{Sr}$   $Q(^{90}\text{Sr})$  в почве украинской части 30-километровой зоны ЧАЭС использовались обе формулы (2.1) и (2.2) одновременно, то разница в его оценке сразу же была бы установлена.

Следует отметить, что в следующей работе [6] для оценки запасов топливных нуклидов (в том числе и изотопов ТУЭ) аналогичная расчетно-экспериментальная методика использовалась для нахождения неизвестного запаса  $^{154}\text{Eu}$  по рассчитанному в [5] запасу  $^{90}\text{Sr}$   $Q(^{90}\text{Sr})$ . Далее, поскольку нуклид  $^{154}\text{Eu}$  является топливным, то по простым отношениям между активностями нуклидов в топливе на момент аварии реактора в [6] оценивались и запасы других топливных нуклидов.

Однако в [6] для перехода от запаса  $^{90}\text{Sr}$  к запасу  $^{154}\text{Eu}$  использовались формулы не типа (1.7), (1.8), как в случае  $^{90}\text{Sr}$  и  $^{137}\text{Cs}$  [5], а формулы типа (1.1)

$$Q(^{154}\text{Eu})_i = \frac{Q(^{90}\text{Sr})_i}{\langle A(^{154}\text{Eu})/A(^{90}\text{Sr}) \rangle_i}. \quad (2.3)$$

Использованные в [6] формулы (2.3) по структуре выглядят корректными. Однако входящие в них запасы  $^{90}\text{Sr}$   $Q(^{90}\text{Sr})_i$ , полученные ранее в работе [5], занижены по абсолютной

величине в 2–3 раза. Поэтому и полученные в [6] по локальным запасам  $^{154}\text{Eu}$   $Q(^{154}\text{Eu})$ , запасы топливных нуклидов и изотопов плутония в 30-сантиметровом слое почвы Украинской части 30-километровой зоны оказались также заниженными в 2–3 раза.

### 3 Количественные оценки средних арифметических и средних гармонических значений для отношений активностей в почве южных районов Гомельской области

Поверхностная активность почвы для какой-либо площади определяется как среднее арифметическое от нескольких замеров активности. Подробно современная методика таких измерений рассмотрена, например, в [5]. Допустим, что в точках « $i$ » какой-либо площадки  $S$  проведены  $n$  замеров активности двух нуклидов:  $A_{1i}$  и  $A_{2i}$ , где  $i=1, 2, \dots, n$ . Из этих « $n$ » пар активностей  $A_{1i}$  и  $A_{2i}$  составим « $n$ » пар прямых и обратных отношений

$$\rho_{1i} = A_{1i}/A_{2i}, \quad \rho_{oi} = A_{2i}/A_{1i} \quad (3.1)$$

и найдем для них средние арифметические:

$$\begin{aligned} \langle \rho_{1i} \rangle_{\text{ap}} &= \frac{1}{n} \sum A_{1i}/A_{2i}, \\ \langle \rho_{oi} \rangle_{\text{ap}} &= \frac{1}{n} \sum A_{2i}/A_{1i}. \end{aligned} \quad (3.2)$$

Как было показано выше, оба этих средних арифметических связаны между собой так, что  $\langle \rho_{oi} \rangle_{\text{ap}} = [\langle \rho_{1i} \rangle_{\text{гp}}]^{-1}$ . Поэтому произведение двух средних арифметических  $\langle \rho_{1i} \rangle_{\text{ap}}$  и  $\langle \rho_{oi} \rangle_{\text{ap}}$  (3.2) дает нам величину  $\mu$ , равную отношению среднего арифметического к среднему гармоническому для прямого отношения активностей  $A_{1i}$  и  $A_{2i}$

$$\mu = \langle \rho_{1i} \rangle_{\text{ap}} / \langle \rho_{oi} \rangle_{\text{ap}} = \langle \rho_{1i} \rangle_{\text{ap}} / \langle \rho_{1i} \rangle_{\text{гp}}. \quad (3.3)$$

Свойства отношения  $\mu$  хорошо известны. По абсолютной величине оно тем больше, чем сильнее флуктуируют отношения локальных активностей  $A_{1i}/A_{2i}$ . Поскольку флуктуации локальных отношений  $A_{1i}/A_{2i}$  напрямую зависят от соотношения топливной и конденсационной форм выпадения нуклидов  $A_{1i}$  и  $A_{2i}$ , то величину  $\mu$  можно использовать для характеристики выпавших радиоактивных осадков на данной площади  $S$ .

По определению величина  $\mu \geq 1$ . Она может быть точно равна единице только в одном гипотетическом случае, когда все локальные отношения активностей  $A_{1i}/A_{2i}$  равны между собой, т.е.  $A_{11}/A_{21} = A_{12}/A_{22} = \dots = A_{1n}/A_{2n}$  и наоборот.

На практике такого варианта не может быть даже у двух изотопов одного и того же химического элемента ( $^{103}\text{Ru}$  и  $^{106}\text{Ru}$ ,  $^{141}\text{Ce}$  и  $^{144}\text{Ce}$  и др.), поскольку активности  $A_{1i}$  и  $A_{2i}$  являются флуктуирующими величинами. Поэтому на эксперименте всегда должно быть  $\mu > 1$ . Другое дело, что, как будет показано ниже, для пар нуклидов типа  $^{103}\text{Ru}$  и  $^{106}\text{Ru}$ ,  $^{141}\text{Ce}$  и  $^{144}\text{Ce}$  отличие отношения  $\mu$  от единицы невелико.

Второй фактор, влияющий на величину  $\mu$  и представляющий наибольший практический интерес, – наличие двух форм в выбросе и соответственно в выпадении радиоактивных осадков: в составе топливной матрицы и в виде конденсата на микроскопических частицах. Соотношение этих двух форм выброса для различных нуклидов разное. Подробно этот вопрос обсуждается в работе [1].

Согласно [1], «нелетучие» радионуклиды тугоплавких элементов ( $^{95}\text{Zr}+^{95}\text{Nb}$ ,  $^{141}\text{Ce}$ ,  $^{144}\text{Ce}$ ) были выброшены только в составе топливной матрицы в количестве  $\sim 3,5\%$  от накопленного количества в активной зоне реактора на момент аварии. К «летучим» радионуклидам относятся  $^{131}\text{I}$ ,  $^{132}\text{Te}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  и др. Выброс некоторых из них в конденсационной форме намного превосходит топливный лимит  $\sim 3,5\%$ : для  $^{131}\text{I}$  – порядка 60%, для  $^{137}\text{Cs}$  – порядка 30% и т. д. [9].

Наибольший интерес представляют радионуклиды с переменной «летучестью» – изотопы рутения  $^{103}\text{Ru}$ ,  $^{106}\text{Ru}$  и изотопы плутония. Их выбросы и выпадения могут быть как в чисто

топливном виде (тогда они ведут себя как «нелетучие»), так и в виде смеси топливной и конденсационной форм (тогда они ведут себя как нуклиды с «промежуточной» летучестью).

Подразделение радионуклидов на «летучие» и «нелетучие» в значительной степени условно. Считается, что в пределах нескольких км от ЧАЭС все радионуклиды (в том числе и изотопы рутения  $^{103}\text{Ru}$ ,  $^{106}\text{Ru}$ ) выпали в составе топливной матрицы. Однако на больших расстояниях от источника, в районах Могилевской области, изотопы рутения  $^{103}\text{Ru}$ ,  $^{106}\text{Ru}$  выпали преимущественно в конденсационной форме [10]. Возможны и промежуточные варианты со сравнимыми вкладами топливной и конденсационной форм.

В связи с этим на примере загрязнений почвы южных районов Гомельской области покажем, что с помощью экспериментального отношения  $\mu$  можно судить об относительной «летучести» пар нуклидов с активностями  $A_{1i}$  и  $A_{2i}$ . Результаты обработки данных эксперимента представлены ниже в Таблице 1.

Таблица 1 – Сравнение средних арифметических  $\langle \rho_{\text{ни}} \rangle_{\text{ар}}$  и средних гармонических  $\langle \rho_{\text{ни}} \rangle_{\text{гар}}$  значений для отношений пар активностей нуклидов для южных районов Гомельской области (отношение 5 для Могилевской области)

№	Отношение	$\langle \rho_{\text{ни}} \rangle_{\text{ар}}$	$\langle \rho_{\text{oi}} \rangle_{\text{ар}}$	$\langle \rho_{\text{ни}} \rangle_{\text{гар}}$	$\mu$
1	$A(^{106}\text{Ru})/A(^{103}\text{Ru})$	0,221	–	0,216	1,02
	$A(^{103}\text{Ru})/A(^{106}\text{Ru})$	–	4,63	–	–
2	$A(^{144}\text{Ce})/A(^{141}\text{Ce})$	0,592	–	0,571	1,04
	$A(^{141}\text{Ce})/A(^{144}\text{Ce})$	–	1,75	–	–
3	$A(^{95}\text{Zr})/A(^{103}\text{Ru})$	0,85	–	0,65	1,31
	$A(^{103}\text{Ru})/A(^{95}\text{Zr})$	–	1,53	–	–
4	$A(^{95}\text{Zr})/A(^{106}\text{Ru})$	3,86	–	3,03	1,27
	$A(^{106}\text{Ru})/A(^{95}\text{Zr})$	–	0,33	–	–
5	$A(^{90}\text{Sr})/A(^{95}\text{Zr})$	0,223	–	0,107	2,08
	$A(^{95}\text{Zr})/A(^{90}\text{Sr})$	–	9,32	–	–
6	$A(^{141}\text{Ce})/A(^{103}\text{Ru})$	0,81	–	0,63	1,29
	$A(^{103}\text{Ru})/A(^{141}\text{Ce})$	–	1,59	–	–
7	$A(^{141}\text{Ce})/A(^{106}\text{Ru})$	3,72	–	2,86	1,3
	$A(^{106}\text{Ru})/A(^{141}\text{Ce})$	–	0,35	–	–
8	$A(^{144}\text{Ce})/A(^{103}\text{Ru})$	0,51	–	0,4	1,28
	$A(^{103}\text{Ru})/A(^{144}\text{Ce})$	–	2,52	–	–
9	$A(^{144}\text{Ce})/A(^{106}\text{Ru})$	2,35	–	1,82	1,29
	$A(^{106}\text{Ru})/A(^{144}\text{Ce})$	–	0,55	–	–
10	$A(^{95}\text{Zr})/A(^{137}\text{Cs})$	5,76	–	2,17	2,65
	$A(^{137}\text{Cs})/A(^{95}\text{Zr})$	–	0,46	–	–
11	$A(^{141}\text{Ce})/A(^{137}\text{Cs})$	5,51	–	2,08	2,65
	$A(^{137}\text{Cs})/A(^{141}\text{Ce})$	–	0,48	–	–
12	$A(^{131}\text{I})/A(^{141}\text{Ce})$	5,62	–	1,54	3,65
	$A(^{141}\text{Ce})/A(^{131}\text{I})$	–	0,65	–	–
13	$A(^{131}\text{I})/A(^{144}\text{Ce})$	8,9	–	2,5	3,56
	$A(^{144}\text{Ce})/A(^{131}\text{I})$	–	0,4	–	–
14	$A(^{137}\text{Cs})/A(^{131}\text{I})$	0,21	–	0,075	2,81
	$A(^{131}\text{I})/A(^{137}\text{Cs})$	–	13,4	–	–
15	$A(^{144}\text{Ce})/A(^{137}\text{Cs})$	3,54	–	1,33	2,66
	$A(^{137}\text{Cs})/A(^{144}\text{Ce})$	–	0,75	–	–



Продолжение таблицы 1

№	Отношение	$\langle \rho_{ni} \rangle_{ap}$	$\langle \rho_{oi} \rangle_{ap}$	$\langle \rho_{ni} \rangle_{гап}$	$\mu$
16	$A(^{103}\text{Ru})/A(^{137}\text{Ce})$	6,02	—	4,17	1,44
	$A(^{137}\text{Ce})/A(^{103}\text{Ru})$	—	0,24	—	—
17	$A(^{106}\text{Ru})/A(^{137}\text{Ce})$	1,33	—	0,89	1,49
	$A(^{137}\text{Ce})/A(^{106}\text{Ru})$	—	1,12	—	—
18	$A(^{95}\text{Zr})/A(^{239,240}\text{Pu})$	2490	—	1320	1,89
	$A(^{239,240}\text{Pu})/A(^{95}\text{Zr})$	—	$7,57 \cdot 10^{-4}$	—	—
19	$A(^{141}\text{Ce})/A(^{239,240}\text{Pu})$	2410	—	1280	1,88
	$A(^{239,240}\text{Pu})/A(^{141}\text{Ce})$	—	$7,79 \cdot 10^{-4}$	—	—
20	$A(^{144}\text{Ce})/A(^{239,240}\text{Pu})$	1530	—	810	1,89
	$A(^{239,240}\text{Pu})/A(^{144}\text{Ce})$	—	$1,24 \cdot 10^{-3}$	—	—
21	$A(^{239,240}\text{Pu})/A(^{103}\text{Ru})$	$5,22 \cdot 10^{-4}$	—	$3,24 \cdot 10^{-4}$	1,61
	$A(^{103}\text{Ru})/A(^{239,240}\text{Pu})$	—	3090	—	—
22	$A(^{239,240}\text{Pu})/A(^{106}\text{Ru})$	$2,37 \cdot 10^{-3}$	—	$1,47 \cdot 10^{-3}$	1,61
	$A(^{106}\text{Ru})/A(^{239,240}\text{Pu})$	—	680	—	—
23	$A(^{239,240}\text{Pu})/A(^{137}\text{Ce})$	$3,06 \cdot 10^{-3}$	—	$1,32 \cdot 10^{-3}$	2,32
	$A(^{137}\text{Ce})/A(^{239,240}\text{Pu})$	—	760	—	—
24	$A(^{239}\text{Pu})/A(^{137}\text{Cs})$	$1,30 \cdot 10^{-3}$	—	$5,68 \cdot 10^{-4}$	2,29
	$A(^{137}\text{Cs})/A(^{239}\text{Pu})$	—	1760	—	—
25	$A(^{240}\text{Pu})/A(^{137}\text{Cs})$	$1,79 \cdot 10^{-3}$	—	$7,58 \cdot 10^{-4}$	2,36
	$A(^{137}\text{Cs})/A(^{240}\text{Pu})$	—	1320	—	—

Прокомментируем результаты Таблицы 1.

1. Для пар нуклидов  $^{103}\text{Ru}$  и  $^{106}\text{Ru}$ ,  $^{141}\text{Ce}$  и  $^{144}\text{Ce}$ , являющихся изотопами одного и того же химического элемента, отношение  $\mu$  близко к единице. Поскольку форма выпадения радиоактивных осадков здесь не играет роли, то отсюда следует, что статистические флуктуации активностей пар нуклидов мало влияют на величину отношения  $\mu$ , оно близко к минимальному значению 1.

2. Наибольшее значение величина  $\mu$  должна иметь для наиболее «летучего»  $^{131}\text{I}$  и «нелетучих» нуклидов. Такими являются отношения 12,13 с участием  $^{131}\text{I}$  и  $^{141}\text{Ce}$ ,  $^{144}\text{Ce}$ . Для них  $\mu$  порядка 3,5. Поскольку  $^{131}\text{I}$  является наиболее «летучим» из всех нуклидов, представленных в Таблице, то для остальных отношений значение отношения  $\mu$  не должно превышать лимит в 3,5, что и имеет место на самом деле.

3. Особый практический интерес имеет отношение 14 для  $^{131}\text{I}$  и  $^{137}\text{Cs}$ , поскольку  $^{131}\text{I}$  представляет большую опасность, но был плохо измерен из-за малого периода полураспада. По  $^{137}\text{Cs}$  обычно пытаются реконструировать запас  $^{131}\text{I}$ . Полученное отношение  $\mu \sim 2,8$  свидетельствует о том, что  $^{131}\text{I}$  значительно более «летуч», чем  $^{137}\text{Cs}$ . Качественно это согласуется с тем фактом, что интегральный выброс  $^{131}\text{I}$  (~60%) примерно вдвое больше интегрального выброса  $^{137}\text{Cs}$  (~30%).

4. Принципиальное значение имеют отношения 18-20, связывающие суммарную активность изотопов плутония  $^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$  с активностью топливных нуклидов  $^{95}\text{Zr}$ ,  $^{141}\text{Ce}$ ,  $^{144}\text{Ce}$ . Если бы плутоний выпал только в виде топлива, то отношение  $\mu$  должно было бы быть немного

больше 1. Эксперимент же дает  $\mu \sim 1,9$ , т. е. плутоний на юге Гомельской области частично выпал и в конденсационном виде. Согласно [1], интегральный выброс плутония в конденсационном виде (летучие оксидные соединения плутония) был примерно равен интегральному выбросу плутония в топливном виде. Так что отношение  $\mu \sim 2$  качественно согласуется с [1] в отношении выброса плутония.

5. Известно, что изотопы рутения в чернобыльских выпадениях ведут себя примерно так же, как и изотопы плутония [11]. Это можно проверить на отношениях 3, 4, 6, 7, 8, 9, связывающих между собой активности изотопов рутения  $^{103}\text{Ru}$  и  $^{106}\text{Ru}$  с активностями топливных нуклидов  $^{95}\text{Zr}$ ,  $^{141}\text{Ce}$ ,  $^{144}\text{Ce}$ . Отношение  $\mu \sim 1,3$ . Очевидно, что, как и изотопы плутония, изотопы рутения частично выпали и в конденсационной форме. Но изотопы плутония более «летучие», чем изотопы рутения.

6. Последнее утверждение в п. 5 можно проверить на отношениях 21, 22, связывающих суммарную активность изотопов плутония  $^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$  с активностью изотопов рутения  $^{103}\text{Ru}$  и  $^{106}\text{Ru}$ . Отношение  $\mu \sim 1,6$ . Это подтверждает вывод п. 5 о том, что изотопы плутония более «летучи», чем изотопы рутения.

7. По аналогии с п. 6 здесь с помощью отношений 23-25 рассматривается связь  $^{137}\text{Cs}$  с активностью изотопов плутония  $^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$ . Отношение  $\mu \sim 2,3$ , т. е.  $^{137}\text{Cs}$  более «летуч», чем изотопы рутения и изотопы плутония.

8. С помощью отношений 16, 17 рассматривается связь между активностями изотопов рутения  $^{103}\text{Ru}$  и  $^{106}\text{Ru}$  и  $^{137}\text{Cs}$ . Здесь отношение  $\mu \sim 1,4$ , что значительно меньше, чем в предыдущем

случае. В общем это довольно очевидный результат, так как изотопы плутония более «летучи», чем изотопы рутения.

9. Соотношение 15 связывает активности топливного  $^{144}\text{Ce}$  и  $^{137}\text{Cs}$ . Отношение  $\mu \sim 2,7$ , что качественно согласуется с 4, для которого  $\mu \sim 1,8$ . Это и понятно, поскольку  $^{137}\text{Cs}$  более «летуч», чем изотопы плутония.

10. Соотношение 5, связывающее активности  $^{90}\text{Sr}$  и  $^{95}\text{Zr}$ , единственное для почвы Могилевской области. Отношение  $\mu \sim 2,1$ , что свидетельствует о наличии конденсационной формы в выпадениях  $^{90}\text{Sr}$  на больших расстояниях от источника. Этот результат свидетельствует о том, что вопреки утверждениям [6],  $^{90}\text{Sr}$  мог быть выброшен и в конденсационной форме и распространится на большие расстояния от источника.

### Заключение

Кратко полученные в статье результаты могут быть сформулированы следующим образом:

1. Наряду с коэффициентами фракционирования  $f_{i,95}$  [1], для характеристики типа загрязнений почвы радионуклидами чернобыльского происхождения можно использовать и величину  $\mu$ , являющуюся отношением среднего арифметического к среднему гармоническому для активностей пары нуклидов.

2. Для активностей пары нуклидов  $A_1$  и  $A_2$ , являющихся изотопами одного и того же химического элемента, указанное отношение  $\mu$  зависит только от статистических флуктуаций активностей  $A_1$  и  $A_2$  и близко к 1.

3. Если пары нуклидов с активностями  $A_1$  и  $A_2$  не являются изотопами одного и того же химического элемента, то отклонение величины  $\mu$  от 1 определяется разной «летучестью» нуклидов (в терминологии [1]).

4. Результаты анализа данных эксперимента по загрязнению почвы юга Гомельской области радионуклидами чернобыльского происхождения показывают, что изотопы плутония выпали как в виде топлива, так и в конденсационном виде.

5. Данные анализа форм выпадения радионуклидов на локальном уровне могут быть использованы при составлении долгосрочного прогноза по загрязнению почвы  $\alpha$ -излучающими изотопами ТУЭ.

### ЛИТЕРАТУРА

1. Израэль, Ю.А. Радиоактивные выпадения после ядерных взрывов и аварий / Ю.А. Израэль. – С.-П. : Прогноз-погода, 1996. – 356 с.
2. Щекин, Ю.К. Региональные коэффициенты фракционирования некоторых радионуклидов чернобыльского происхождения на территории Республики Беларусь / Ю.К. Щекин // Минск : Объединенный институт энергетических и ядерных исследований – Сосны, 2003. – 36 с. (Препринт ОИЭЯИ-5, Минск).
3. Rudak, E.A. On the activity ratio  $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$  in soil of the Chernobyl nuclear power plant 30-km zone in Ukraine / E.A. Rudak, O.I. Yachnik // Lithuanian Journal of Physics. – 2009. – Vol. 49, № 1. – P. 117–122.
4. Рудак, Э.А. Оценка выброса топлива при аварии на Чернобыльской АЭС по концентрации  $^{90}\text{Sr}$  в почве 30-км зоны / Э.А. Рудак, О.И. Ячник // Атомная энергия. – 2009. – Т. 107. – Вып. 1. – С. 57–60.
5. Загрязнение  $^{90}\text{Sr}$  территории ближней зоны аварии на ЧАЭС / В.А. Кашпаров [и др.] // Радиохимия. – 2000. – Т. 42, № 6. – С. 550–559.
6. Загрязнение территории радионуклидами топливной компоненты чернобыльских радиоактивных выпадений / В.А. Кашпаров [и др.] // Радиохимия. – 2003. – Т. 45, № 2. – С. 173–183.
7. Атлас загрязнения Европы цезием после Чернобыльской аварии. Комиссия европейских сообществ. Под научным руководством Ю.А. Израэля. Люксембург, 1998. – 72 с.
8. 20 лет Чернобыльской катастрофы: взгляд в будущее. Национальный доклад Украины. – Киев : Атика, 2006. – 232 с.
9. Боровой, А.А. Выброс радионуклидов из разрушенного блока Чернобыльской АЭС / А.А. Боровой, А.Ю. Гагаринский // Атомная энергия. – 2001. – Т. 90, Вып. 2. – С. 137–145.
10. Оценка выброса плутония в аэрозольной форме при аварии на Чернобыльской АЭС / В.В. Андреев [и др.] // Минск : ИФ НАН Б, 2005. – 25 с. (Препринт ИФ НАН Б №742, Минск).
11. Содержание плутония в почвах европейской части страны после аварии на Чернобыльской АЭС / И.А. Лебедев [и др.] // Атомная энергия. – 1992. – Т. 72. – Вып. 6. – С. 593–599.

Поступила в редакцию 31.10.09.