

КОРЕЛЯЦІЙНІ ТА ЧАСОВІ ЗАЛЕЖНОСТІ ВМІСТУ РАДІОНУКЛІДІВ У НАМУЛАХ ГІРСЬКИХ РІК ЗАКАРПАТТЯ: 2006-2008 рр.

Н.І. Симканич¹, В.І. Мучичка²

¹ Інститут електронної фізики НАН України,
вул. Університетська 21, Ужгород, 88017,
e-mail: nuclear@email.uz.ua

² Закарпатський державний університет, вул. Заньковецької 87^б,
Ужгород, 88000

Досліджено вміст та динаміку зміни природних (U-, Th- рядів, K-40) та техногенних (¹³⁷Cs) радіонуклідів в намулах рік Уж, Латориця, Боржава по даних пробовідборів 2006-2008 рр. Встановлено кореляційні залежності їх вмісту, вплив на них сезонних та просторових факторів. Обговорюється механізм „самоочищення” Карпат від продуктів діяльності людини. Показана можливість використання досліджуваних гамма-активних нуклідів (ГАН) як трасерів геохімічних особливостей ділянок Карпат.

Вступ

Відома важливість дослідження закономірностей нагромадження та міграції природних та штучних радіонуклідів, вибору найбільш інформативних ізотопів „трасерів” геохімічних особливостей регіону та інтенсивності техногенної діяльності. Особливий інтерес така інформація становить для регіону Карпат, де існують ділянки з особливим геохімічним складом, а схили гір зазнають впливу техногенних факторів Східної та Центральної Європи. Тому зрозуміла важливість і актуальність систематичного вивчення геохімії поширення природних радіонуклідів, що входять у природні ряди розпаду ізотопів ²³²Th (²¹²Pb, ²²⁸Ac, ²⁰⁸Tl) та ²³⁸U (²¹⁴Pb, ²¹⁴Bi, ²²⁶Ra), а також природного ⁴⁰K та результату техногенної діяльності людини - ¹³⁷Cs.

Основними чинниками, що визначають геохімію ізотопів U-, Th- рядів, є хімічні властивості атомів, які містять дані ізотопи, радіоактивні характеристики та фізико-хімічні властивості середовища.

Геохімія ізотопів проміжних членів природних рядів також обумовлена ступенем зв'язку з родоначальником радіоактивного ряду, швидкістю їх радіоактивного розпаду (накопичення), дифузією атомів віддачі та залежністю від присутності материнських ізотопів. Зокрема, для гамма-активних ізотопів урану, це ²³⁸U, для ізотопів торія - ²³²Th. Віддзеркаленням геохімічної поведінки радіонуклідів - членів радіоактивних рядів розпаду в тих або інших фізико-хімічних умовах середовища - є стан радіоактивної рівноваги, який можна фіксувати, наприклад, за вмістом ГАН [1]. Особливості відхилення від рівноваги окремих радіонуклідів і розділення ізотопів одного і того ж елемента відображають відмінності їх геохімічної поведінки залежно від фізико-хімічних особливостей впливу техногенних факторів та сезонних умов регіону.

В даній роботі представлено результати дослідження вмісту ГАН зразків намулу, отриманих у просторово рознесених точках пробовідбору вздовж русел

трьох з найбільших рік Закарпаття протягом 2006-2008 рр. Мета проведеного дослідження полягає у встановленні геохімічних особливостей ділянок Карпат за даними дослідження, ролі сезонних та просторових факторів на механізм „самоочищення” гір від продуктів життєдіяльності людини.

Вибір об'єкту, методики та умов дослідження

Нами вивчалися процеси нагромадження та розподілу ГАН у системі активного водообміну донних відкладень, де можна безпосередньо спостерігати стан їх рівноваги між ланками досліджуваної системи. Об'єктом дослідження були донні відклади річок Закарпаття, мулисті донні осади яких багаті на органічні речовини і мінеральний колоїдний матеріал. Вони є хорошими сорбентами і часто близькі за характером радіонуклідних спектрів до вод, що контактують з ними. Для рівноваги ГАН ряду урану основну роль відіграють окислювально-відновні умови середовища: у відновних умовах ізомери урану накопичуються, повторюючи ізотопний склад води над намулами, а в окислювальних умовах промивного режиму (паводки) такі ГАН з намулу виносяться [1]. Поведінка ізомерів, що є продуктами розпаду довгоживучих первинних радіонуклідів, багато в чому пов'язана з присутністю відповідних материнських радіонуклідів: ^{232}Th , ^{238}U , з яких вони постійно накопичуються і одночасно розпадаються. Такі продукти не можуть накопичитися в кількостях, що перевищують рівноважні значення, які пропорційні періодам напіврозпаду. У зв'язку з цим всі продукти розпаду знаходяться в природних сполуках в низьких концентраціях. Дочірні ізомери одного і того ж елемента рухливіші і легше переходять з гірських порід у води, що контактують з ними, ніж первинні радіонукліди. Тому ізотопні співвідношення для елементів рядів ^{238}U і ^{232}Th у гірських породах, в умовах активного водообміну, що дронує ці породи, відрізняються над-

лишком рухливих дочірніх атомів. Для зони гіпергенезу радіоактивна рівновага в рядах розпаду є швидше винятком, ніж правилом [2].

Будемо враховувати вплив фізико-хімічних умов середовища, характерних для зони гіпергенезу Карпат на геохімію ізомерів радіоактивних елементів. Особливості ж відхилення від рівноваги окремих радіонуклідів і розділення ізомерів одного і того ж елемента відображають відмінності їх геохімічної поведінки залежно від фізико-хімічних та сезонних умов середовища. Всі вказані закономірності дозволяють використовувати перераховані вище ізотопні і радіонуклідні зв'язки як геохімічні трасери для реконструкції геохімічних процесів, що впливали на досліджувані об'єкти протягом часу еволюції. Це пояснює необхідність системного дослідження водообміну донних відкладень рік Закарпаття для різних сезонів року та для ділянок водозбору з різним антропогенним навантаженням.

Пробовідбір зразків мулу річок для дослідження (вагою по 1500 – 2000 г) здійснювався у фіксованих точках ручним методом з глибини 2-15 см з використанням драг. Проби упаковувались, транспортувались і зберігались згідно ДСТО 17.4.3.01-83 в поліетиленових пакетах, що містили пакувальний ярлик із зазначенням дати відбору, номера проби та інформацію про місце відбору проб. Віддаль між точками пробовідбору не перевищувала 6-10 км, що дозволяє робити висновки про джерела та шляхи потрапляння радіонуклідів у донні відкладення цих річок.

Предметом дослідження є вміст та динаміка зміни в намулах ГАН торієвого та уранового рядів, а також ^{40}K та техногенної «мітки» – ^{137}Cs . Враховуючи, що у природних рядах має існувати радіоактивна рівновага дочірніх радіонуклідів, достатньо обмежитися вибором ^{212}Pb , як «мітки» торієвого та ^{214}Bi , відповідно, уранового рядів як тих, що надійно ідентифікуються у спектроскопічних дослідженнях.

В математичному плані задача, сформуована за даними радіоекологічного експерименту, представляє багатфакторну модель, а дослідження просторових та часових кореляційних залежностей між техногенними та природними ГАН потребує застосування методів багатомірного кластерного статистичного аналізу.

Виміри абсолютної активності проб донних відкладень проводилися в низько фоновій лабораторії відділу фотоядерних процесів ІЕФ НАН України на гамма-спектрометричному комплексі з коаксіальним напівпровідниковим Ge(Li)-детектором, ефективний об'єм якого 100 см³. Методика вимірювання природної активності зразків викладена в [3].

Отримані результати та висновки

Сезонні особливості вмісту вказаних ГАН в зразках намулу досліджено на прикладі р. Боржава. На Рис. 1 представлено дані вимірювання протягом 2006-2008 рр. питомих активностей ⁴⁰K (б), ²¹²Pb та ²¹⁴Bi (в) та ¹³⁷Cs (г) для найвищої точки пробовідбору, де вплив факторів життєдіяльності людини на довкілля найменший. Оскільки пробовідбір здійснювався протягом різних сезонів, див. Рис 1 а), на якому відкладено рівні води (усереднені за відповідний місяць), то активності ГАН мають осцилюючий характер – з максимумами в зимово-весняний період та мінімумами – в літній.

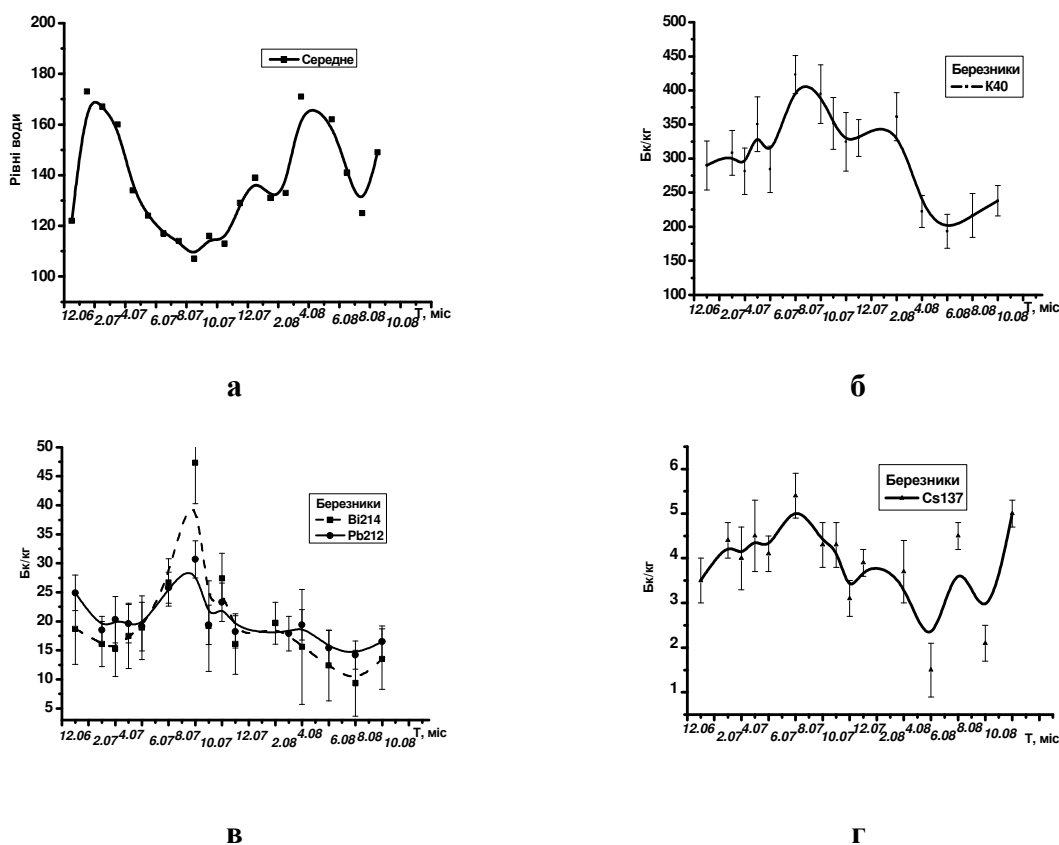


Рис. 1. Залежність питомої активності ГАН природного та техногенного походження від часу пробовідбору зразків намулу р. Боржава (б – г); дані по рівнях води в ці ж періоди (а).

Як видно, таку ж осцилюючу залежність, але з протилежною фазою за даний період демонструє питома активність

ГАН для зразків намулу. Поясненням може бути наявність своєрідного механізму «самоочищення» ділянок Карпат

під час повеней (зима-весна), тоді як у посушливі періоди року намули активно акумулюють важкі метали та ГАН.

Цікаво дослідити просторову кореляцію (вздовж русел рік) вказаних ГАН, враховуючи, що при зниженні точки пробовідбору посилюються вплив факторів життєдіяльності людини. Будемо виходити з того факту, що донні відкладення переважно є продуктами руйнування гірських порід і, в цілому, повторюють їх ізотопні спектри, відрізняючись лише різкішим відхиленням від радіоактивної рівноваги за рахунок більшої питомої поверхні, доступної для вилужування атомів віддачі. Ізотопні спектри для донних відкладень річок обумовлені як природно-кліматичними, так і геологічними умовами. Останні можна характеризувати різним співвідношенням вмісту

в породах хімічних елементів (ізотопів) уранового та торієвого рядів. В умовах техногенного забруднення середовища можливі аномальні відхилення від радіоактивної рівноваги як в рядах розпаду, так і між дочірніми нуклідами торієвого та уранового рядів. Інформацію про ступінь порушення рівноваги між різними ГАН може дати метод кластерного статистичного аналізу даних моніторингу.

На Рис. 2 приведена ієрархічна дендрограма процесу кластеризації ГАН-«маркерів» уранового та торієвого рядів для точок пробовідбору: (а) - р. Уж: перелік населених пунктів з верхньої точки, сс. Сіль, Забрідь, Березний, Зарічево та Оноківці, а також р. Латориці (б), відповідно, - сс. Підполоззя, Ганьковиця, Неліпино, Пасіка та Кольчино.

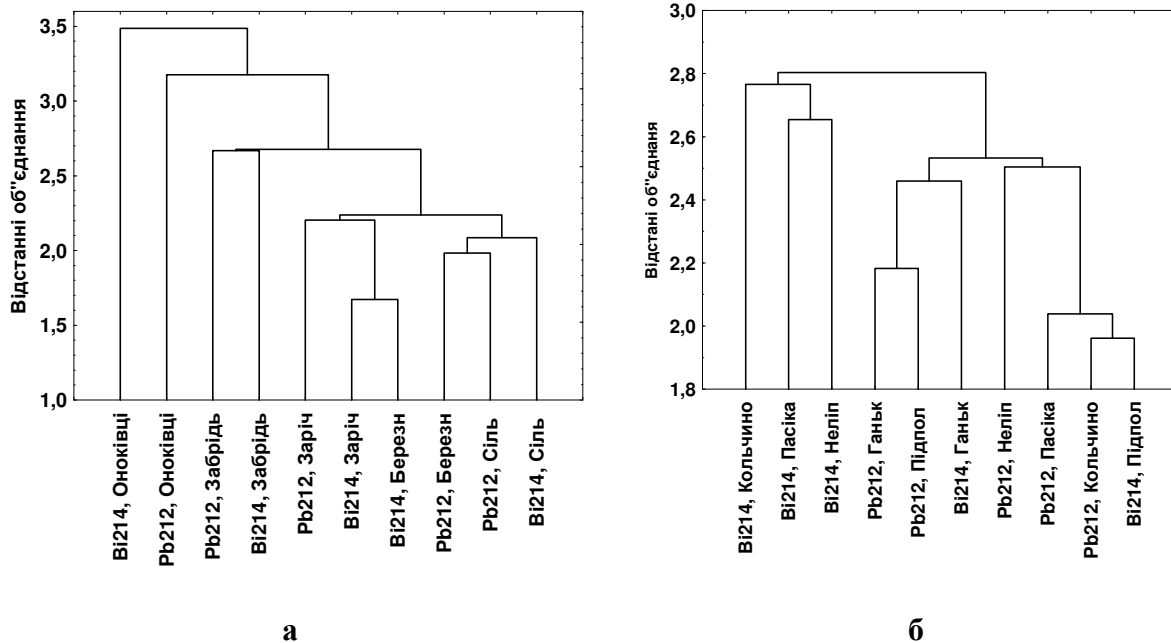


Рис.2. Дендрограма об'єднань для точок пробовідбору між ГАН уранового та торієвого рядів: річка Уж (а), річка Латориця (б).

Вказана дендрограма відображає ступінь зв'язку між вмістом ізотопів уранового та торієвого рядів для кожної з точок пробовідбору протягом всього періоду моніторингу. Приведені дані ілюструють зазначені вище тенденції розподілу ГАН вздовж русел річок: ступінь кореляції (об'єднання) між

ГАН є вищою для верхніх точок пробовідбору: для р. Уж – це сс. Сіль та Березний, для р. Латориця – сс. Підполоззя та Ганьковиця, тоді як на низинній території тіснота кореляції між нуклідами є меншою. Останнє можна пояснити впливом факторів життєдія-

льності людини. Можна також зробити висновки про більшу, загалом, кореляцію ГАН уранового, а не торієвого природних рядів.

Запропонована методика дозволяє вивчати особливості геохімічної будови гірських районів: якщо на території, де протікає р. Уж, спостерігається значна кореляція між вмістом ГАН уранового ряду, то для басейну р. Латориця така кореляція вже є меншою, дещо збільшується зв'язок ГАН торієвого ряду. Це може свідчити про різне співвідношення материнських ізотопів ^{232}Th та ^{238}U при формуванні геологічних порід вказаних регіонів на початку еволюції.

Таким чином, проведені дослідження дозволили встановити спектральний склад та середню питому активність природних та штучних ГАН зразків намулів таких річок Закарпаття, як Боржава, Уж та Латориця. Показано відносну сталість активностей природних та штучних ГАН зразків наму-

лів, що свідчить про відсутність потужних джерел їх надходження, досліджено роль просторових факторів гірських районів Карпат та сезонних умов на формування хімічного складу намулів. Дослідження закономірностей просторового та порядкового вмісту ГАН зразків намулів показало, що кореляція ГАН уранового ряду є вищою, ніж для рядів торію, причому кореляція між вказаними ГАН зменшується при віддаленні від верхньої точки пробовідбору.

Автори вдячні В.Т. Маслоку за консультації, М.В. Фронтасьєвій (м. Дубна, Росія) за корисні поради по темі дослідження, а також Управлінню екології, Управлінню меліорації та водного господарства Закарпатської області за сприянні у виконанні роботи.

Література

1. Н.А Титарева. Геохимия изотопов радиоактивных элементов (U, Th, Ra) <http://geo.web.ru/db/disser/view.html/mid=171496>.
2. В. Грабовський, О. Дзензелюк, Г. Дуцяк. Вісник Львів. УН-ТУ. Серія фізична 36, 30 (2003).
3. Н.І. Симканич, М.В. Стець, та інші, Вісник УжНУ. Серія Фізика Серія Фізика 8, 173-176 (2007).

CROSS-CORRELATIONS AND TIME DEPENDENCES OF RADIONUCLIDES CONTENT IN SILTS OF THE MOUNTAIN RIVERS IN ZAKARPATYA REGION: 2006-2008 YEARS

N.Symkanich¹, V. Muchychka²

¹ Institute of Electron Physics, Ukr. Nat. Acad. Sci., Universitetska St. 21, Uzhhorod, 88000
e-mail: nuclear@email.uz.ua

²Transcarpatian State University, Zanykovetska St.87 b), Uzhhorod, 88000

Investigation of content and change dynamics of natural (U-, Th-chains, K-40) and technogenic radionuclides in the silts of the Uzh, Latorytsya, Borzhava river has been carried out. Cross-correlation dependences and influence of seasonal and spatial factors have been established. The mechanism of "self-purification" of Carpathian mountains from anthropogenic activity and possibility of investigated GAN use as tracers of geochemical features have been discussed.

