

МОДЕЛЮВАННЯ ПРОЦЕСІВ ТА ЯВИЩ

УДК 543.429.3 : 550.835.23

ОСОБЛИВОСТІ ЗАСТОСУВАННЯ ТЕХНОЛОГІЙ ВИМІРЮВАНЬ *IN SITU* ТА *EX SITU* ДЛЯ ВИЗНАЧЕННЯ ЗАБРУДНЕННЯ ҐРУНТІВ ^{137}Cs

В. Грабовський, О. Дзендзелюк

Львівський національний університет імені Івана Франка
вул. Ген. Тарнавського, 107, 79017 Львів, Україна
v_grabovskyi@franko.lviv.ua

Наведено результати вимірювання щільності радіоактивного забруднення ^{137}Cs ґрунтів однієї й тієї ж території з використанням технологій вимірювань *in situ* та *ex situ*. Проаналізовано особливості застосування, переваги і недоліки використання кожного виду вимірювань для визначення щільності радіоактивного забруднення ґрунтів. Отримані результати відображено у вигляді тривимірних карт, побудованих за допомогою пакета прикладних програм Surfer8. З'ясовано, що використання методики *in situ* забезпечує експресність і простоту проведення радіологічного аналізу, а також прийнятну точність отриманих результатів за умови коректного визначення та застосування значень поправкових коефіцієнтів, що їх використовують пакети розрахункових прикладних програм. Зроблено висновок, що отримані розподіли щільності забруднення ґрунтів радіонуклідами можуть помітно відрізнятися залежно від методу визначення для однієї й тієї ж ділянки, особливо в умовах його мозаїчного характеру, і загалом давати лише деяку усереднену, а не точну картину цього забруднення.

Ключові слова: технології *in situ* та *ex situ*, гамма-спектрометрія, радіоактивне забруднення, радіоцезій.

Широке використання радіаційних та ядерних технологій у другій половині ХХ ст. (зокрема, у ядерній енергетиці), низка масштабних ядерних аварій призвели до масштабного радіоактивного забруднення довкілля. Проблема радіоактивного забруднення середовища проживання останнім часом стала однією з найважливіших, оскільки прямо загрожує всьому живому на Землі, від її вирішення багато в чому залежить саме майбутнє людства.

З погляду здоров'я людей сьогодні найбільшу небезпеку спричиняє внутрішнє опромінення, зумовлене випромінюванням радіонуклідів, які були викинуті в навколишнє середовище внаслідок ядерних аварій, потрапили в організм через "харчові ланцюжки" та інкорпоровалися в його органи та тканини. Особливу роль у цьому разі нині відіграє середньоживучий ізотоп ^{137}Cs , який після низки радіаційних аварій останніх десятиліть поряд з ^{90}Sr став потенційно найнебезпечнішим за наслідками дії на організм людини. Для оцінки потенційної небезпеки цього забруднювача важливо знати його вміст у продуктах харчування, насамперед у рослинах, які прямо або опосередковано (через продукти тваринництва) люди вживають у їжу.

Радіоактивне забруднення рослин головно зумовлене вмістом радіонукліда в прикореновому шарі ґрунту, його доступністю для засвоєння кореневою системою, а також здатністю конкретного виду рослин його засвоювати [1]. Тому визначення забруднення ґрунтів цим радіонуклідом та особливостей його переходу в рослини набуло дуже важливого значення, нині його виконують фактично всі радіологічні лабораторії світу.

Здатність рослин засвоювати радіонукліди найчастіше оцінюють з використанням коефіцієнта переходу K_{Π} [1], що рекомендований МАГАТЕ [2] як параметр, що характеризує здатність рослин і грибів нагромаджувати радіонуклід з ґрунту. Кількісно його визначають як відношення питомої активності радіонукліда в рослині (або її частині) у [Бк/кг], до його вмісту у прикореновому (найчастіше – 20 см) шарі ґрунту (так званої щільності забруднення ґрунту радіонуклідом) у [Бк/м²]. Отже, визначення щільності забруднення ґрунту (тобто вмісту радіонукліда в приповерхневому 20-сантиметровому шарі ділянки ґрунту площею поверхні 1 м² [1]) не лише важливе з погляду з'ясування радіологічного статусу території, що дуже важливо в разі районування радіоактивно забруднених територій, а й є визначальним у ході оцінювання радіоактивного забруднення представників рослинного світу, які на ній зростають, а отже, і оцінювання можливого забруднення організму людей, які вживають продукцію рослинництва і тваринництва, вироблену на забруднених територіях, у їжу. Тому розроблено технології його визначення як з використанням методів стаціонарних лабораторних досліджень (*ex situ*), так і в режимі практично реального часу безпосередньо на забрудненій території (*in situ*) [3].

Для визначення щільності забруднення ґрунту гамма-випромінювальними радіонуклідами за технологією *ex situ* на досліджуваній місцевості за конкретною методикою відбирають проби ґрунту, перевозять у стаціонарну лабораторію, там (знову ж таки за визначеною технологією) готують їх до вимірювань та проводять аналіз на стаціонарному гамма-спектрометрі [3]. Використовувані для отримання спектрів електронна апаратура та програми опрацювання отриманих спектрів дають змогу визначати щільність забруднення радіонуклідами досліджуваного ґрунту з точністю не менше $\pm 15\%$. Найчастіше для отримання вірогідного результату в ході таких вимірювань використовують спектрометр з напівпровідниковим детектором із надчистого германію та спектрометричну апаратуру з великою кількістю каналів реєстрації. Однак досить часто під час аналізування застосовують і сцинтиляційну вимірювальну апаратуру.

Технологія *in situ* [4–8] полягає у вимірюванні спектрів випромінювання наявних у ґрунті радіонуклідів портативним спектрометром (радіометром), детектор якого (сцинтиляційний або ж напівпровідниковий) розміщений на фіксованій висоті над його поверхнею, та їхньому опрацюванні безпосередньо на місці дослідження з використанням спеціально розроблених програмних пакетів. Метод не передбачає, на відміну від методу вимірювань *ex situ*, стадій відбору проб ґрунтів та їхньої підготовки до вимірювань, що значно спрощує як сам процес вимірювання, так і їхні часові рамки та вартість. Нині його з успіхом застосовують як для визначення характеристик радіоактивного забруднення довкілля, так і для оцінки ступеня небезпеки цього забруднення для живих організмів, насамперед людини.

Оскільки під час радіологічних вимірювань методом *in situ* реєструють випромінювання, яке потрапляє на детектор від радіонукліда, розміщеного в товщі досліджуваного ґрунту на різних глибинах, то для отримання коректних оцінок необхідно враховувати його поглинання в ґрунті. З огляду на це кількісні оцінки забруднення ґрунту потребують введення під час розрахунків спеціальних поправок на поглинання гамма-випромі-

нювання заглиблених у його товщу радіонуклідів, некоректний облік якого може призводити до похибок у визначенні справжньої активності радіонуклідів у декілька (а то й у десятки) разів. Для введення таких поправок використовують різні методики: від введення розрахованих за певними шаблонами поправок у розрахункові формули до застосування спеціальних програм моделювання отриманих експериментальних спектрів [4–7], наприклад, методом Монте-Карло. Відомі також підходи, які дають змогу за результатами вимірювань методом *in situ* визначити профіль забруднення ґрунту радіонуклідами за глибиною, зокрема, з використанням під час опрацювання набраного спектра методу так званого G-фактора визначення кратності ослаблення гамма-випромінювання екранованого джерела [8].

У ході розробки прикладних програм розрахунків часто попередньо створюють “шаблони”, що описують профілі заглиблення радіонуклідів у товщі ґрунту; їх використання дає змогу зробити поправки на поглинання гамма-випромінювання в ньому й уникнути помилок у разі визначення сумарного забруднення. Ці “шаблони” зазвичай “виготовляють” за результатами лабораторного гамма-спектрометричного радіонуклідного аналізу досить великої кількості проб забрудненого ґрунту (декількох десятків і більше – залежно від розміру і характеристик ділянки місцевості), відібраних на досліджуваній території. Кількість і різновид відібраних проб повинні коректно описувати розподіл радіонуклідів за площею та глибиною. Хоча такий метод визначення поправок трудомісткий та потребує тривалого часу, однак забезпечує хорошу точність отриманих під час вимірювань результатів.

Інший метод, який також часто використовують, полягає у визначенні поправок за результатами полігонних досліджень на забруднених ґрунтах різних типів. Отримані для кожного такого ґрунту результати дають змогу визначити “усереднену” поправку, яку й використовують для дослідження забруднення реального ґрунту певного типу. Недоліками такого методу визначення поправок є практична неможливість реального врахування нюансів конкретного радіоактивного забруднення кожного виду ґрунту та, як наслідок, більша похибка отриманих кількісних характеристик його забруднення.

Порівняння результатів визначення щільності забруднення ґрунту ^{137}Cs методами *ex situ* та *in situ* виконано на прикладі вимірювань щільності забруднення радіоцезієм території біолого-географічного стаціонару Львівського національного університету імені Івана Франка (розміщеного на західному березі оз. Пісочне, Шацький р-н, Волинська обл.) за допомогою стаціонарної напівпровідникової спектрометрії та з використанням портативного радіометра гамма-активності Virtuoso (Спаринг-Віст, Львів).

Для порівняння використано результати проведеного 2011 р. за стандартними методиками в лабораторії гамма-спектрометрії ЛНУ ім. І. Франка аналізу на стаціонарному гамма-спектрометрі з напівпровідниковим Ge(Li)-детектором проб ґрунтів, відібраних “методом конверта” [9] у липні 2011 р. Під час відбирання проб територія стаціонару була розбита на 25 ділянок, причому центральна точка відбору кожної ділянки збігалася з її центром. Координати центру кожної ділянки визначали за допомогою GPS Garmin eTrex Vista HCx. Методика виконання спектрометричних вимірювань забезпечила точність отриманих аналітичних результатів у межах $\pm 15\%$.

У липні 2015 р. у точках території стаціонару, координати яких збігаються з координатами центрів ділянок відбору проб ґрунту у 2011 р., методом *in situ* за допомогою радіометра гамма-активності Virtuoso зі сцинтиляційним CsJ-детектором визначено щільності забруднення ґрунтів ^{137}Cs . Вимірювання проводили, розміщуючи детектор

радіометра на висоті 10 см над ґрунтом; для корекції результату обрано коригувальний коефіцієнт для піщаного ґрунту з набору коригувальних коефіцієнтів, внесених у пам'ять програми опрацювання радіометра.

Отримані в обох випадках результати використано для побудови за допомогою програмного середовища SURFER 8 тривимірної карти щільності забруднення ґрунтів досліджуваної території. Одержані результати показано на рис. 1, 2, відповідно.

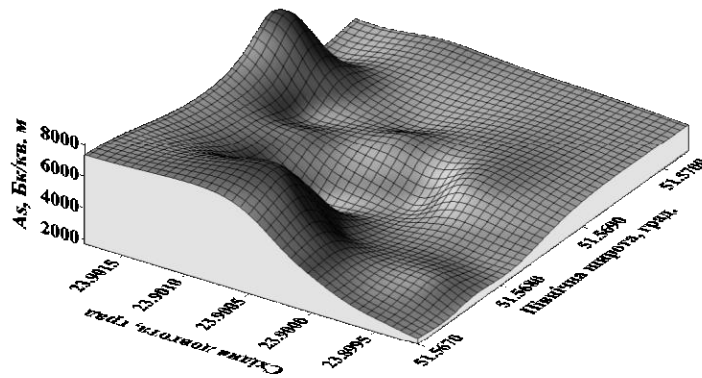


Рис. 1. Щільність забруднення ґрунту A_s території біолого-географічного стаціонару ЛНУ ім. І. Франка (вимірювання *ex situ* з використанням стаціонарного напівпровідникового гамма-спектрометра; 2011 р.).

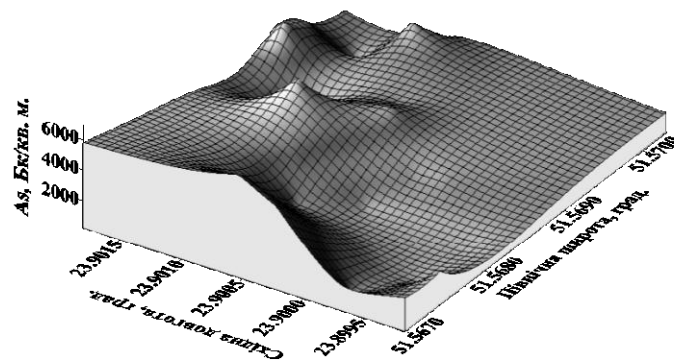


Рис. 2. Щільність забруднення ^{137}Cs ґрунту території біолого-географічного стаціонару ЛНУ ім. І. Франка (вимірювання *in situ*; радіометр гамма-активності Virtuoso; 2015 р.).

Як бачимо з зображених на рис. 1, 2 тривимірних карт щільності забруднення ґрунтів ^{137}Cs досліджуваної території, незважаючи на загалом досить подібну загальну картину забруднення, простежуються і деякі відмінності в наведених результатах. Зокрема, під час вимірювань *in situ* (рис. 3) зафіксовано дещо менші значення забруднених місць, ніж у випадку вимірювань за методикою *ex situ*, а також деякі відмінності в розміщенні точок локалізації максимальних та мінімальних забруднень. Ці відмінності можуть бути

зумовлені декількома чинниками.

Одним з таких чинників, що може мати визначальний характер і суттєво впливати на отримані методом *ex situ* результати визначення щільності забруднення радіонуклідом ґрунту, є мозаїчність, яка, зокрема, притаманна постчорнобильському забрудненню лісових ґрунтів Полісся [10]. Відомо, що на Поліссі навіть на відстані в декілька метрів на одній і тій же лісовій ділянці ґрунту вміст ^{137}Cs у ґрунтах може змінюватися в кілька разів [10]; тому в разі відбору проб методом конверта на одній і тій же ділянці за такої мозаїчності забруднення можливі значні варіації наявного в досліджуваній пробі радіонукліда, оскільки “уколи” пробовідбірником (відстань між ними – понад 10 м) роблять у місцях з різним вмістом радіонукліда, і, відповідно, результатів визначеної щільності забруднення ним ґрунту за такою методикою.

Підтвердженням такого висновку можуть бути отримані нами результати вимірювань щільності забруднення радіоцезієм території біолого-географічного стаціонару ЛНУ ім. І. Франка, виконаних за тією ж методикою у 2003 і 2004 рр., які відображають (за практично майже однакового середнього забруднення території) досить значні відхилення його значень для окремих точок одних і тих же ділянок, визначені з використанням методу *ex situ* в разі відбору проб у різних точках одних і тих же ділянок і, відповідно, деталей картини розподілу (див. рис. 3).

Різницю в рівні середнього забруднення досліджуваної території можна пояснити як результатом природного розпаду радіонукліда за час, що минув між вимірюваннями (за період 2011–2015 рр. розпалося близько 14 % наявного у ґрунті ^{137}Cs), так і похибками у визначенні аналітичних значень щільності забруднення (точність визначення щільності забруднення ґрунтів ^{137}Cs в акредитованих лабораторіях становить не більше $\pm 15\%$ у разі використання стаціонарної напівпровідникової спектрометрії [2, 3]), а також мозаїчністю забруднення ґрунтів, про яку йшлося вище і яка може зумовити досить значну відмінність отриманих результатів.

Загалом обидва методи вимірювань можна з успіхом використати для отримання аналітичних даних щодо екологічного стану довкілля, у тому числі для визначення щільності забруднення ґрунтів. Вони мають як свої переваги, так і недоліки.

До явних переваг застосування вимірювань *in situ* належить порівняно проста методика виконання вимірювань, їхня експресність і нижча вартість, а також дещо менші вимоги до апаратури порівняно з вимірюваннями *ex situ*. До недоліків методу можна зачислити труднощі у визначенні та коректному використанні поправкових коефіцієнтів для проведення розрахунків і врахуванні реального розподілу радіонукліда в досліджуваному ґрунті. Використовувана методика усереднення в ході реєстрації гамма-випромінювання наявного в ґрунті радіонукліда за площею зумовлює також меншу точність отриманих результатів для конкретних точок досліджуваної території. Через практичну неможливість точного визначення коригувальних коефіцієнтів для всіх можливих типів ґрунтів можливе також виникнення помилок (у деяких випадках – досить значних) під час вимірювань.

Незважаючи на перелічені особливості і недоліки, зазначимо, що використання вимірювань *in situ* дає змогу (у разі коректного врахування розподілу вмісту радіонуклідів у товщі ґрунту і типу самого ґрунту) отримати близьку до реальної картину забруднення, проте з деякими відмінностями його екстремальних значень.

З іншого боку, метод вимірювань *ex situ* дає змогу отримати точніші аналітичні результати забруднення для окремих точок території, однак ставить певні досить жорсткі

вимоги до апаратури (зазвичай, нині в лабораторних умовах для проведення гамма-спектрометричних вимірювань переважно використовують детектори з надчистого германію, тоді як у вимірюваннях *in situ* – часто сцинтиляційні детектори), яку використовують під час таких вимірювань, а, отже, і до її вартості.

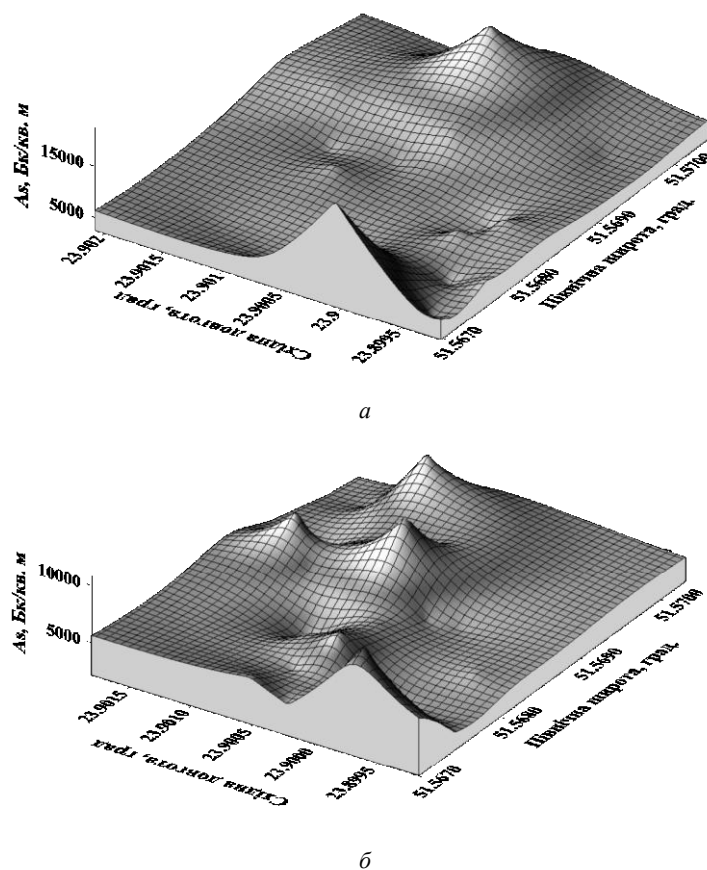


Рис. 3. Карти щільності забруднення ^{137}Cs ґрунту території біолого-географічного стаціонару ЛНУ ім. Івана Франка, визначені методом *ex situ* з використанням гамма-спектрометра з Ge(Li)-детектором: *a* – у 2003 р., *б* – у 2004 р.

Також його застосування потребує набагато більше затрат як праці, так і часу на сам процес виконання вимірювань і, відповідно, суттєво збільшує їхню вартість. Крім того, за значної мозаїчності забруднення радіонуклідом досліджуваної території саме це може призвести в окремих випадках навіть до більших похибок визначення середнього забруднення ґрунтів радіонуклідом, ніж у разі визначення аналогічного параметра методом *in situ*.

Отже, використання методики вимірювань *in situ* забезпечує експресність і просто-

ту (і, відповідно, меншу вартість) виконання радіологічного аналізу порівняно з застосуванням методики *ex situ*, а також прийнятну точність отриманих результатів за умови коректного визначення поправкових коефіцієнтів, що їх використовують пакети розрахункових прикладних програм, та їхнього правильного застосування під час розрахунків за умов реальних вимірювань. Потрібно також пам'ятати, що отримані конкретні розподіли щільності забруднення ґрунтів радіонуклідами можуть помітно відрізнятися залежно від методу, який використовували для їхнього одержання (*ex situ* чи *in situ*) і загалом з певною точністю можуть давати лише деяку усереднену, а не точну картину цього забруднення.

СПИСОК ВИКОРИСТАНОЇ ЛІТЕРАТУРИ

1. Сельскохозяйственная радиоэкология. / [Р. М. Алексахин, А. В. Васильев, В. Г. Дикарев и др.] : под ред. Р. М. Алексахина, Н. А. Корнеева – М. : Экология, 1992. – 400 с.
2. Handbook of parameter values for the prediction of radionuclide transfer in terrestrial and freshwater environments. – Vienna : International Atomic Energy Agency, 2010. – 194 p.
3. Руководство по мониторингу при ядерных или радиационных авариях. – Вена : МАГАТЭ, 2002. – 313 с.
4. Nuccetelli C. In-situ gamma spectroscopy in environmental research and monitoring / C. Nuccetelli // Applied Radiation and Isotopes. – 2008. – Vol. 66. – P. 1615–1618.
5. Caciolli A. A new FSA approach for in situ γ -ray spectroscopy / A. Caciolli, M. Baldoncini, G. P. Bezzon [et al.] // Science of the Total Environment. – 2012. – Vol. 414. – P. 639–645.
6. Жуковский А. И. Измерение радиоактивности почв методом *in situ* / А. И. Жуковский, К. Моги, С. А. Кутень // Весці НАН Беларусі, Фізика-Тэхнічная серыя. – 2016. – № 3. – С. 105–110.
7. Rostron Peter D. Comparison between *in situ* and *ex situ* gamma measurements on land areas within a decommissioning nuclear site: a case study at Dounreay / Peter D. Rostron, John A. Heathcote, Michael H. Ramsey // J. Radiol. Prot. – 2014. – Vol. 34, N 3. – P. 495–508.
8. Дровников В. В. In-situ сцинтилляционная гамма спектрометрия с принципиально новыми возможностями. Некоторые результаты исследования содержания естественных и техногенных радионуклидов в грунте / В. В. Дровников, М. В. Егоров, Н. Ю. Егоров [и др.] // АНРИ, М. : Научно-производственное предприятие “Доза”. – 2011. – № 1. – С. 56–64.
9. Методика комплексного радіаційного обстеження забруднених внаслідок Чорнобильської катастрофи територій (за винятком зони відчуження). – К. : Атіка-Н, 2007. – 60 с.
10. Краснов В. П. Прикладна радіоекологія лісу / В. П. Краснов, О. О. Орлов, В. О. Бузун [та ін.] ; за ред. В. П. Краснова. – Житомир : Полісся, 2007. – 680 с.

Стаття: надійшла до редакції 15.01.2018,
доопрацьована 23.01.2018,
прийнята до друку 27.01.2018.

**FEATURES OF APPLICATION OF THE *IN SITU* AND *EX SITU*
MEASUREMENT TECHNIQUES FOR DETERMINATION OF ^{137}Cs
SOIL CONTAMINATION**

V. Grabovskyi, O. Dzendzelyuk

*Ivan Franko National University of Lviv,
107 Tarnavsky St., UA-79017 Lviv, Ukraine
v_grabovskyi@franko.lviv.ua*

In this paper we present the results of the ^{137}Cs soil contamination density measuring of the same area with using *in situ* and *ex situ* measurement techniques. The soil contamination density is understood as the activity of a radionuclide contained in a near-surface layer of soil with 20 cm thick per square meter of surface. Measurements were carried out during 2003–2015 on the territory of Shatsk Biological-Geographical Station of Lviv Ivan Franko National University located on the west bank of the PISOCHNE Lake (Shatsk district of the Volyn region). For measurements using the *ex situ* technique, a stationary gamma spectrometer equipped with a semiconductor Ge(Li)-detector was used, and for the measurements of the *in situ* technique, a gamma radiometer Virtuoso (manufactured by Sparing Vist, Lviv) equipped with a scintillation CsJ-detector. The obtained by both methods experimental results were used to create three-dimensional soil contamination maps of the investigated area with using the Surfer 8 program package.

The peculiarities of application, advantages and disadvantages of the use of both measurement technologies were analyzed. It has been shown that in the case of correct definition and application of coefficients that taking into account the absorption of gamma radiation of a radionuclide located in the depth of the soil, the results of *in situ* measurements with acceptable accuracy correlate with the results obtained with using of *ex situ* technique. Obtained by both methods results were shown a reliable picture of the distribution of radionuclide content in soils. The observed differences in the values of the minimum and maximum of radioactive contamination of investigated soils and the features of their sites localizations was explained both by the peculiarities of the measurement techniques and the natural decay of available in the soil radionuclide.

Using *in situ* method of the radiological measurements provides less time and simplicity of the analysis, their lower cost compared to the *ex situ* methodics. The acceptable reliability of the obtained results is ensured, if the adjusted coefficient values used by the application software packages for calculations are correctly applied. It was shown that the received distributions of the soil radionuclide contamination density can somewhat vary depending on the method of their determination. It is concluded, in the result of using of both techniques of radiological measurements only a certain averaged evaluation, and not an exact picture of the soil radionuclide contamination density can be given in general.

Key words: *in situ* and *ex situ* techniques, gamma spectrometry, radioactive contamination, radiocaesium.