

*mgr inż. Krzysztof Andrzej Isajenko*

Centralne Laboratorium Ochrony Radiologicznej w Warszawie

*dr Aneta Łukaszek-Chmielewska*

*dr Michał Bednarek*

*dr Anna Zielicz*

Katedra Nauk Ścisłych

Wydział Inżynierii Bezpieczeństwa Pożarowego

Szkoła Główna Służby Pożarniczej

*dr hab. Marcin Smolarkiewicz, prof. SGSP*

Katedra Inżynierii Bezpieczeństwa

*mł. bryg. dr inż. Tomasz Zwęgliński*

Katedra Bezpieczeństwa Wewnętrznego

Wydział Inżynierii Bezpieczeństwa Cywilnego, SGSP

Szkoła Główna Służby Pożarniczej

## **Zawartość gamma radionuklidów pochodzenia naturalnego i sztucznego w glebach w powiecie puławskim**

### **Streszczenie**

Środowisko przyrodnicze ulega zanieczyszczeniom chemicznym, w tym także pierwiastkami promieniotwórczymi. Pewna grupa pierwiastków obecna jest w skorupie ziemskiej od momentu jej powstania i towarzyszy nam do dnia dzisiejszego. Pierwiastki te stanowią grupę naturalnych izotopów promieniotwórczych, do których zalicza się m.in.  $^{40}\text{K}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  i  $^{232}\text{Th}$ . Oprócz tego typu pierwiastków promieniotwórczych, środowisko przyrodnicze może ulegać skażeniom radioizotopami, takimi jak:  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$  lub  $^{241}\text{Am}$  itp., powstającymi wskutek działalności człowieka. Głównym źródłem ich obecności są awarie reaktorów jądrowych, przeróbka i składowanie paliwa jądrowego oraz zastosowanie metod jądrowych w przemyśle i medycynie.

Zanieczyszczenia antropogeniczne środowiska przyrodniczego są jednym z głównych zagrożeń gleb Polski, ponieważ gleba pełni rolę buforu gromadzącego substancje chemiczne zarówno pochodzenia naturalnego, jak i antropogenicznego. Jak wynika z danych przedstawionych w Raporcie Rocznym z 2011 roku, przygotowanym przez Centralne Laboratorium Ochrony Radiologicznej (CLOR) średnie stężenie  $^{137}\text{Cs}$  w powierzchniowej warstwie gleby w Polsce jest ciągle podwyższone (powyżej  $1\text{ kBq/m}^2$ ) i wynosi  $1,93\text{ kBq/m}^2$  w związku z powyższym wymaga stałego monitorowania.

W artykule przedstawiono zachowanie się radionuklidów naturalnych i sztucznych w glebach w okolicy Zakładów Azotowych Puławy. Do tej pory gleby na tym obszarze badane były pod kątem skażeń chemicznych, a nie radiologicznych.

Omówiono również koncentracje radionuklidów naturalnych i sztucznych takich jak:  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{40}\text{K}$ ,  $^{228}\text{Ac}$  w pionowym profilu glebowym, metodą spektrometrii promieniowania gamma przy użyciu detektora germanowego.

Na podstawie przeprowadzonych pomiarów stwierdzono, że stężenie sztucznego izotopu  $^{137}\text{Cs}$  w glebie jest niższe od zawartości naturalnych izotopów  $^{40}\text{K}$  czy  $^{210}\text{Pb}$ .

**Słowa kluczowe:** radionuklidy, promieniowanie gamma, gleba, szeregi naturalne, promieniowanie jonizacyjne

## **Concentration of the Radionuclides of Natural Origin and Due to Human Activity in the Soil in the Powiat Puławski (Puławski District)**

### **Abstract**

The natural environment is exposed to pollution with chemical substances including radioactive elements. Certain class of elements has been in the earth's crust since its formation and they have been up to this day. These elements form a group of natural radioactive isotopes which include  $^{40}\text{K}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  and  $^{232}\text{Th}$ . In addition to this type of radioactive elements the natural environment can be polluted with radioisotopes such as  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$  or  $^{241}\text{Am}$ , which are released as a consequence of human activity. The main source of these elements are nuclear

reactor incidents, processing and storing nuclear fuels as well as the use of nuclear methods in the industry and in medicine.

The pollution due to human activity is one of the main hazards to the soil in Poland, because soil serves as a buffer which stores chemical substances both of natural origin and of anthropogenic origin. The data in the Annual Report from year 2011 prepared by the Centralne Laboratorium Ochrony Radiologicznej (CLOR, Central Laboratory for Radiological Protection) shows that the average concentration of  $^{137}\text{Cs}$  in the surface layer of soil in Poland is still elevated (over 1 kBq/m<sup>2</sup>) and equal 1,93 kBq/m<sup>2</sup> thus requiring constant monitoring. That is why the paper describes the behavior of radionuclides of natural origin and of anthropogenic origin in the soil surrounding the Zakłady Azotowe Puławy (factory of nitrogen derivatives near Puławy, Poland). So far the soil in this area has been examined in terms of chemical pollution but not in terms of radiological pollution.

In this article we present the results about the concentration of radionuclides of natural and anthropogenic origin such as  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{40}\text{K}$ ,  $^{228}\text{Ac}$  in the vertical soil structure using the method of gamma radiation spectroscopy and a germanium detector.

Our data has shown that the concentration of the artificial isotope  $^{137}\text{Cs}$  in the examined soil is lower than the concentration of the natural isotopes  $^{40}\text{K}$  or  $^{210}\text{Pb}$ .

**Keywords:** radionuclides, gamma radiation, soil, natural series, ionising radiation

## 1. WSTĘP

Gleba odgrywa ważną funkcję w kształtowaniu się warunków egzystencji ekosystemów leśnych. Charakteryzuje się ona zdolnością dostarczania roślinom, a pośrednio i zwierzętom niezbędnych do życia składników odżywczych. Stanowi zewnętrzną warstwę ziemi, która powstała ze skał lub gruntów, przekształconych pod wpływem działalności człowieka oraz organizmów żywych, klimatu, wody itd. W glebie występują pierwiastki stabilne, jak również nuklidy promieniotwórcze pochodzenia naturalnego i antropogenicznego [13].

W skorupie ziemskiej znajduje się 60 naturalnych radionuklidów, które powstały m.in. w wyniku reakcji nukleosyntezy, polegającej na przekształceniu lżejszych pierwiastków w cięższe oraz na skutek oddziaływania promieniowania kosmicznego ze składnikami atmosfery: azotem, tlenem i argonem [12, 16].

Działalność człowieka może powodować wzrost stężeń radionuklidów. Główny wpływ na wzrost radionuklidów w środowisku ma spalanie węgla kamiennego, składowanie popiołu i żużli oraz importowanie z Maroka do Polski fosforanów, które stosowane są do produkcji nawozów fosforowych. Zawierają one uran – średnio 110 g/t fosforanów, podczas gdy średnia koncentracja uranu w Polsce wynosi około 1,36 g/t [10]. Ponadto środowisko przyrodnicze może ulegać skażeniom pierwiastkami promieniotwórczymi poprzez katastrofy reaktorów jądrowych, przeróbkę i składowanie wypalnego paliwa jądrowego, badania medyczne (radioterapia, brachyterapia oraz radiofarmaceutyki).

Głównym źródłem skażeń środowiska przez radioizotopy pochodzenia sztucznego są awarie obiektów atomowych, w szczególności katastrofa w Czarnobylu (1986, były ZSRR), Kyshtymie (1979, były ZSRR), Windscale (1957, Wielka Brytania), a także awaria elektrowni jądrowej w Fukushima (2011, Japonia), które spowodowały uwolnienie znacznych ilości substancji promieniotwórczych do atmosfery, zwłaszcza  $^{137}\text{Cs}$  [6]. Izotopy promieniotwórcze z powietrza osadzają się pod wpływem opadu atmosferycznego na powierzchni ziemi i są w niej gromadzone, a następnie migrują w głąb gleby. Z badań naukowych wynika, że około 99% opadu radioaktywnego gromadzi się w glebie [8]. Jego migracja zależy od rodzaju gleby w ten sposób, że im większa jest powierzchnia rozwinięta cząstek gleby tym mniejsza jest jej przepuszczalność, np.: glina czy gleby pyłowe są mniej przepuszczalne niż piasek.

Dotychczasowe badania gleb w bliskim sąsiedztwie Zakładów Azotowych Puławy dotyczyły przede wszystkim oznaczeń chemicznych, takich jak: pH, P, Mg, K, Na, a nie radiologicznych. Dlatego też autorzy artykułu postanowili poszerzyć wachlarz badań o oznaczenia koncentracji radionuklidów naturalnych i sztucznych, takich jak:  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{40}\text{K}$ ,  $^{228}\text{Ac}$  w pionowym profilu glebowym, metodą spektrometrii promieniowania gamma przy użyciu detektora germanowego w NCBJ (Narodowym Centrum Badań Jądrowych w Świerku).

## 2. CHARAKTERYSTYKA RADIOLOGICZNA GLEB W POLSCE

Badania gleb pod kątem skażeń radiologicznych prowadzone są przez CLOR (Centralne Laboratorium Ochrony Radiologicznej) na zlecenie GIOŚ (Głów-

nego Inspektoratu Ochrony Środowiska) w ramach PMS (Programu Monitoringu Środowiska). Na podstawie analiz zebranych widm energetycznych określono zawartość naturalnych i sztucznych emiterów promieniowania gamma, tj. ołowiu  $^{210}\text{Pb}$ , potasu  $^{40}\text{K}$ , aktynu  $^{228}\text{Ac}$  (odpowiednik toru – eT), cezu  $^{137}\text{Cs}$ .

W przyrodzie występują cztery naturalne izotopy uranu, takie jak:  $^{230}\text{U}$ ,  $^{234}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  i  $^{238}\text{U}$  [2, 3, 14]. Izotopy te ulegają samorzutnemu rozpadowi, a czasy ich połowicznego zaniku są bardzo długie. Największe zawartości tego radioizotopu występują w skałach typu granitoidów, sjenitów, skałach alkaicznych w stężeniach od 3 g/t do 5 g/t. Niewielkimi zawartościami uranu charakteryzują się skały zasadowe i ultrazasadowe, w których zawartość naturalnego izotopu uranu mieści się w zakresie od 0,001 g/t do 1 g/t. Natomiast w przypadku łupków, iłowców i mułowców zawartość uranu wynosi średnio do 4 g/t, a skały węglowe i piaskowce zawierają od 0,5 g/t do 2 g/t naturalnego izotopu uranu. Izotopy uranu w warunkach powierzchniowych podlegają procesowi utlenienia, a następnie migrują w głąb profilu glebowego na znaczne głębokości. W związku z powyższym utwory powierzchniowe są zubożone w ten pierwiastek w stosunku do skał, z których powstały. W Polsce koncentracja uranu w warstwie powierzchniowej mieści się w zakresie od 0 g/t do 13 g/t, a średnia wartość wynosi 1,36 g/t. Główną przyczyną odpowiedzialną za tak niską średnią koncentrację tego pierwiastka w Polsce jest to, że obszar Polski budują utwory glacialne o koncentracji uranu poniżej 2 g/t. Koncentracje uranu powyżej średniej dla Polski występują na obszarze Sudetów, Karpat, Gór Świętokrzyskich, Wyżyny Lubelskiej, Gór Izerskich – Blok Karkonoski, gdzie średnia koncentracja uranu wynosi od 3 g/t do 5 g/t. Najwyższe koncentracje uranu w Polsce znajdują się w Bloku Przedsudeckim [2, 3, 14].

W środowisku naturalnym obecny jest tylko jeden izotop toru, a mianowicie  $^{232}\text{Th}$ , którego największą zawartość posiadają skały kwaśne oraz minerały, takie jak: monacyt, ortyl i cyrkon. Kwaśne skały magmowe zawierają tor w ilości około 18 g/t, podczas gdy w skałach zasadowych koncentracja tego izotopu wynosi około 2 g/t. Średnie stężenie izotopu toru dla obszaru Polski wynosi 3,29 g/t [2, 3, 14]. Najwyższe koncentracje tego radionuklidu występują na południu Polski na terenie Karpat i Sudetów w wierzchniej warstwie gleby, podobnie jak ma to miejsce w przypadku uranu. Podwyższone koncentracje  $^{232}\text{Th}$  występują również na Nizinie Lubelskiej, Rztoczcu,

w południowej części Gór Świętokrzyskich. Inne niziny na których również występują podwyższone koncentracje toru powyżej 4 g/t obejmują obszar Żuław Wiślanych i północno-wschodniej części Polski [2, 3, 14].

Ponadto w przyrodzie występują trzy naturalne izotopy potasu, a mianowicie:  $^{39}\text{K}$  (93,08%),  $^{41}\text{K}$  (6,91%) oraz  $^{40}\text{K}$  (0,0119%). Stosunek izotopu  $^{39}\text{K}$  do  $^{40}\text{K}$  jest stały w minerałach i skałach. Wraz ze wzrostem kwasowości skały, wzrasta stężenie potasu. Średnia wartość stężenia  $^{40}\text{K}$  dla Polski wynosi 428 Bq/kg. Zakresy stężeń tego radionuklidu mieszczą się w granicach od 116 do 1055 Bq/kg. Analizując mapy CLOR, można zauważyć, że rozkład stężenia  $^{40}\text{K}$  charakteryzuje się większą jednorodnością rozkładu na terenie Polski, aczkolwiek również w przypadku tego radionuklidu stanowiącego 0,0119% potasu naturalnego (stały stosunek izotopowy) można zaobserwować pewne prawidłowości związane z występowaniem w glebach potasu naturalnego. Największe jego zawartości obserwuje się w Sudetach, Karpatach i Polsce północno-wschodniej [2, 3, 14].

Poza naturalnymi izotopami promieniotwórczymi w glebie występują izotopy sztuczne, takie jak  $^{137}\text{Cs}$  oraz  $^{134}\text{Cs}$ . Zostały one wprowadzone do środowiska głównie w wyniku awarii elektrowni jądrowej w Czarnobylu, Fukushima oraz próbnych wybuchów jądrowych. Nierównomierność skażeń powierzchni ziemi Polski izotopem  $^{137}\text{Cs}$  wynika zarówno ze skomplikowanych dróg przenoszenia się mas skażonego w efekcie awarii elektrowni jądrowej w Czarnobylu powietrza oraz występowania, w końcu kwietnia i na początku maja 1986 r., lokalnych opadów deszczu na południu Polski. Stężenie powierzchniowe  $^{137}\text{Cs}$  w glebie zawiera się dla Polski w granicach od 0,22 Bq/m<sup>2</sup> do 23,78 kBq/m<sup>2</sup>, przy wartości średniej dla Polski wynoszącej 1,93 kBq/m<sup>2</sup>. Największe wartości średnich stężeń  $^{137}\text{Cs}$  zarejestrowano dla następujących województw: opolskiego – 5,93 kBq/m<sup>2</sup>, dolnośląskiego – 3,34 kBq/m<sup>2</sup>, śląskiego – 3,06 kBq/m<sup>2</sup> oraz małopolskiego – 2,40 kBq/m<sup>2</sup>. Wartość średnia stężenia  $^{137}\text{Cs}$  w tych województwach przekracza wartość średnią stężenia tego radionuklidu dla Polski, która wynosi 1,93 kBq/m<sup>2</sup>. Najmniejszymi średnimi wartościami stężeń  $^{137}\text{Cs}$  charakteryzują się województwa: zachodniopomorskie – 0,63 kBq/m<sup>2</sup>, kujawsko-pomorskie – 0,67 kBq/m<sup>2</sup>, wielkopolskie – 0,80 kBq/m<sup>2</sup> oraz pomorskie – 0,92 kBq/m<sup>2</sup> [2, 3, 14].

### 3. CHARAKTERYSTYKA BADANEGO REGIONU

Badany teren wchodzi w skład jednego z 27 Obszarów Ekologicznego zagrożenia w Polsce. Głównym sprawcą powstania tego zagrożenia jest obecność Zakładów Azotowych w Puławach.

Zakłady Azotowe położone są 4,5 km od Puław w kierunku północnym. Wybudowano je w latach siedemdziesiątych w kompleksie boru sosnowego na terenie Nadleśnictwa Puławy. Badany teren jest wylesiony, szczególnie narażony na emisje przemysłowe.

Okolice Puław wchodzi w skład wschodnio-małopolskiego regionu klimatycznego. Średnia suma opadów rocznych wynosi około 600 mm. Dominują tu wiatry południowo – zachodnie. Wysokość bezwzględna omawianego obszaru mieści się w zakresie od 120 m do 170 m n.p.m. Po wschodniej stronie kombinatu występuje fragmentarycznie relief pagórkowaty z pasami wydm o wysokości względnej dochodzącej do 15–20 m [7, 11].

Utworem geologicznym zalegającym przy powierzchni ziemi są przede wszystkim piaski rzeczne starszych tarasów akumulacyjnych pradoliny Wisły i Wieprza, oraz miejscami piaski i gliny akumulacji lodowcowej. Znaczna część tych piasków została przemodelowana przez wiatr, tworząc obecnie ciągi form wydmowych i rozległe, słabo faliste pokrywy eoliczne [7, 11].

Gleby na badanym terenie powstały z piasków luźnych i piasków słabo gliniastych eolicznych. Cechuje je nadmierna przepuszczalność wodna, niska zawartość próchnicy, mała pojemność sorpcyjna i skorelowana, z tym słaba buforowość, a ponadto niska zawartość składników pokarmowych. Są to gleby przeważnie rdzawe bielicowe i bielicowe właściwe [7, 11].

### 4. POBÓR PRÓBEK GLEBOWYCH I PRZYGOTOWANIE ICH DO ANALIZY RADIOMETRYCZNEJ

Próbki gleb zostały pobrane przez Dział Ochrony Środowiska Zakładów Azotowych Puławy w dwóch punktach przekrojowych, które umieszczono na mapie na rys. 1. Punkt numer I znajduje się w odległości 0,2 km od Zakładów Azotowych w strefie całkowitego zniszczenia lasu, natomiast punkt numer II położony jest w strefie bardzo silnego uszkodzenia lasu, w odległości 1,4 km

od Zakładów. Oba punkty położone były na dominującym kierunku wiatru południowo-wschodnim.



**Rys. 1.** Mapa rozmieszczenia powierzchni doświadczalnych oraz punktów przekrojowych monitoringu gleb leśnych w pobliżu Zakładów Azotowych Puławy (skala 1:25000)

Źródło: Opracowanie własne na podstawie [11]

Poboru próbek dokonano dwa razy w ciągu roku: w marcu i wrześniu z odkrywek numer I i numer II za pomocą cylindrycznych próbników pozwalających na uzyskanie rdzeni o wysokości 400 cm. Następnie rdzenie glebowe cięte były na plastry o mniejszych wysokościach, co pozwoliło na oznaczenie radioizotopów na różnych głębokościach. W każdym z punktów pobrano po 10 próbek glebowych o objętości około 450 cm<sup>3</sup>, co przedstawiono w tabelach 1 i 2.



**Tabela 1.** Oznaczenia próbek glebowych wraz z opisem głębokości z których zostały pobrane – Odkrywka numer I

Oznaczenie próbki	Głębokość pobranych próbek glebowych [cm]
1P1	Brak ściółki
1P2	0–2
1P3	5–10
1P4	15–20
1P5	35–45
1P6	70–75
1P7	100–110
1P8	190–200
1P9	280–300
1P10	380–400

Źródło: Opracowanie własne

**Tabela 2.** Oznaczenia próbek glebowych wraz z opisem głębokości z których zostały pobrane – Odkrywka numer II

Oznaczenie próbki	Głębokość pobranych próbek glebowych [cm]
2P1	ściółka
2P2	0–2
2P3	5–10
2P4	15–20
2P5	35–45
2P6	70–75
2P7	100–110
2P8	190–200
2P9	280–300
2P10	380–400

Źródło: Opracowanie własne

W laboratorium próbki gleby były wstępnie suszone w temperaturze pokojowej, a następnie przez 16 godzin w temperaturze 105°C. Po wysuszeniu, rozdrobnieniu i wymieszaniu gleba była wsypywana do naczyń typu Marinelli o objętości 450 cm<sup>3</sup> i badana na spektrometrze promieniowania gamma w celu wyznaczenia koncentracji radionuklidów.

## 5. OPIS METOD BADAWCZYCH

Do pomiaru stężeń radionuklidów w próbkach gleby zastosowano spektrometr promieniowania gamma składający się z detektora półprzewodnikowego HPGe współpracującego z wielokanałowym analizatorem wyposażonym w oprogramowanie GENIE-2000. Spektrometr zapewniał analizę widma promieniowania gamma w zakresie energii fotonów od kilkunastu do 1800 keV. Zdolność rozdzielcza spektrometru dla <sup>60</sup>Co ( $E_{\gamma} = 1330$  keV) wynosiła 1,8 keV. Detektor był umieszczony w niskotłowym ołowianym domku osłonowym zapewniającym zmniejszenie o dwa rzędy wielkości zewnętrznego tła promieniowania gamma. W celu kalibracji spektrometru użyto źródło referencyjne w geometrii naczynia Marinelli zawierające mieszaninę radionuklidów promieniotwórczych o energiach od 0,088 do 1836 keV. Próbkę analizowano w reżimie 72-godzinnym.

## 6. WYNIKI POMIARÓW

Oznaczenia radionuklidów naturalnych i sztucznych w próbkach gleb zostały wykonane na podstawie zaobserwowanych linii widmowych i dla każdej z próbek zostały wyznaczone koncentracje radionuklidów w Bq/kg. W tabelach – przedstawiono wyniki badań dla poszczególnych radionuklidów w profilu glebowym (skrót LLD – oznacza poniżej dolnego limitu detekcji – ang. *lower limit of detection*).

**Tabela 3.** Zawartość naturalnych i sztucznych radionuklidów w próbkach gleb pobranych w marcu z odkrywki numer I

Oznaczenie próbki	<sup>210</sup> Pb [Bq/kg] suchej masy	<sup>137</sup> Cs [Bq/kg] suchej masy	<sup>40</sup> K [Bq/kg] suchej masy	<sup>228</sup> Ac [Bq/kg] suchej masy
1P1	-----	-----	-----	-----
1P2	234,81	23,73	86,18	< LLD

cd. Tabeli 3.

Oznaczenie próbki	<sup>210</sup> Pb [Bq/kg] suchej masy	<sup>137</sup> Cs [Bq/kg] suchej masy	<sup>40</sup> K [Bq/kg] suchej masy	<sup>228</sup> Ac [Bq/kg] suchej masy
1P3	21,97	7,69	117,19	5,68
1P4	5,01	1,49	102,02	2,98
1P5	< LLD	0,10	100,80	2,91
1P6	1,77	0,18	115,37	2,44
1P7	< LLD	0,11	104,30	2,71
1P8	< LLD	0,08	107,15	2,73
1P9	0,11	< LLD	84,25	2,17
1P10	< LLD	< LLD	96,00	3,22

Źródło: Opracowanie własne

**Tabela 4.** Zawartość naturalnych i sztucznych radionuklidów w próbkach gleb pobranych we wrześniu z odkrywki numer I

Oznaczenie próbki	<sup>210</sup> Pb [Bq/kg] suchej masy	<sup>137</sup> Cs [Bq/kg] suchej masy	<sup>40</sup> K [Bq/kg] suchej masy	<sup>228</sup> Ac [Bq/kg] suchej masy
1P1	-----	-----	-----	-----
1P2	228,68	21,09	123,94	< LLD
1P3	16,61	12,80	117,95	4,83
1P4	7,62	4,41	104,93	3,43
1P5	9,32	0,30	76,51	2,28
1P6	< LLD	0,16	103,97	2,45
1P7	0,37	0,10	100,04	1,43
1P8	0,49	0,19	105,77	1,66
1P9	< LLD	0,13	111,13	2,48
1P10	0,20	< LLD	130,39	4,83

Źródło: Opracowanie własne

**Tabela 5.** Zawartość naturalnych i sztucznych radionuklidów w próbkach gleb pobranych w marcu z odkrywki numer II

Oznaczenie próbki	<sup>210</sup> Pb [Bq/kg] suchej masy	<sup>137</sup> Cs [Bq/kg] suchej masy	<sup>40</sup> K [Bq/kg] suchej masy	<sup>228</sup> Ac [Bq/kg] suchej masy
2P1	727,11	23,62	48,82	< LLD
2P2	192,68	61,66	135,24	6,89
2P3	13,44	4,71	105,95	3,84
2P4	< LLD	1,71	110,67	2,95
2P5	< LLD	0,19	112,90	3,80
2P6	4,40	0,05	101,29	2,25
2P7	2,82	0,12	97,91	2,34
2P8	< LLD	< LLD	92,01	25,58
2P9	1,82	0,12	109,16	2,45
2P10	< LLD	0,04	102,16	3,84

Źródło: Opracowanie własne

**Tabela 6.** Zawartość naturalnych i sztucznych radionuklidów w próbkach gleb pobranych we wrześniu z odkrywki numer II

Oznaczenie próbki	<sup>210</sup> Pb [Bq/kg] suchej masy	<sup>137</sup> Cs [Bq/kg] suchej masy	<sup>40</sup> K [Bq/kg] suchej masy	<sup>228</sup> Ac [Bq/kg] suchej masy
2P1	526,77	87,33	316,12	19,27
2P2	178,16	60,84	130,29	7,57
2P3	12,34	3,06	121,04	5,69
2P4	6,82	0,44	117,88	4,35
2P5	< LLD	< LLD	109,36	3,96
2P6	< LLD	< LLD	108,48	3,26
2P7	< LLD	< LLD	100,52	2,60
2P8	< LLD	< LLD	108,02	2,74
2P9	1,82	0,21	120,10	3,36
2P10	< LLD	< LLD	113,76	3,30

Źródło: Opracowanie własne

Bardzo istotnym izotopem ze względu na główne źródło dawki promieniowania jonizującego jest  $^{210}\text{Pb}$ . Izotop ten jest produktem rozpadu gazowego radonu  $^{222}\text{Rn}$  transportowanego w środowisku geologicznym z wodami podziemnymi i powietrzem glebowym. Stężenie  $^{210}\text{Pb}$  w glebach Polski waha się w granicach 7,9–91,2 Bq/kg, a średnia koncentracja tego radioizotopu wynosi 24,7 Bq/kg, zgodnie z danymi zawartymi w Atlasie Radiologicznym Polski [2, 3, 14]. W przypadku odkrywki numer I koncentracja izotopu ołowiu w marcu zawierała się w granicach 0,11–234,81 Bq/kg, natomiast we wrześniu od 0,00 Bq/kg do 228,68 Bq/kg. Szczególnie wysoką koncentracją tego izotopu cechuje się warstwa gleby zalegająca pod ściółką, pobrana z głębokości 0–2 cm. Wynika to najprawdopodobniej z osiadania na powierzchni terenu stałych pochodnych ekshalowanego z ziemi  $^{222}\text{Rn}$  i ich stopniową migracją w głąb profilu glebowego. Wraz ze wzrostem głębokości, koncentracja ołowiu maleje i można zauważyć że występuje on do głębokości 20 cm, bo głębiej stężenie tego radioizotopu jest bliskie zera. Podobną sytuację stwierdzono dla odkrywki numer II. W tym przypadku najwyższe stężenie zarejestrowano w ściółce, a im głębiej tym koncentracja tego radioizotopu była mniejsza. Stężenie izotopu ołowiu w marcu dla odkrywki numer II mieściło się w zakresie 0,00–727,11 Bq/kg, a we wrześniu w granicach od 0,00 Bq/kg do 526,77 Bq/kg. W próbkach 1P2, 2P1 i 2P2 wystąpiło znaczne podwyższenie średniej koncentracji ołowiu dla Polski. Lokalny wzrost zawartości ołowiu w wierzchniej warstwie gleby może być spowodowany spalaniem węgla, ponieważ w niedalekiej odległości od punktów, z których pobierane były próbki glebowe znajduje się elektrociepłownia Kozienice opalana węglem kamiennym. Ponadto w bliskim sąsiedztwie położona jest duża aglomeracja miejska – Puławy, która stosuje lokalne kotłownie opalane paliwem konwencjonalnym.

Podobny rozkład koncentracji do izotopu  $^{210}\text{Pb}$  wykazuje  $^{137}\text{Cs}$ . Gromadzi się on głównie w ściółce i tuż pod powierzchnią ziemi na niewielkich głębokościach. Obecność tego radioizotopu związana jest z próbnymi wybuchami jądrowymi prowadzonymi w latach 1957–1963 oraz awarią elektrowni jądrowej w Czarnobylu. Do chwili obecnej jest on obecny w środowisku ze względu na swój długi okres połowicznego zaniku wynoszący około 30,2 lat. Badania naukowe [1, 5, 9, 15, 16] wykazały, że migracja cezu w profilu glebowym jest dość powolna (mediana głębokości do jakiej jest

zdolny przenikać cez w trzy lub cztery lata po osadzeniu się na powierzchni gleby wynosi 2–4 cm) i zachodzić może na różne sposoby, m.in. np.:

- podpoziom surowinowy próchnicy/ściółki leśnej i łąkowej ( $O_1$ ) ulega mineralizacji na skutek mechanicznej i chemicznej degradacji, działania mikrofauny, grzybów i bakterii przekształcając się w podpoziom butwinowy próchnic/ściółek leśnych i łąkowych ( $O_p$ ). Następnie rozłożona ściółka zostaje w następnym roku przykryta nową warstwą liści już w mniejszym stopniu skażonych i w ten sposób cez przechodzi do niższej;
- żyjące w glebie dżdżownice przenoszą cez promieniotwórczy w wyniku swoich procesów życiowych, a także rośliny wyższe i zwierzęta odpowiadają za redrepcję cezu w powierzchniowej warstwie gleby.

Przeprowadzone badania wykazały, że największa koncentracja cezu za razem dla odkrywki numer I i II występuje w powierzchniowej warstwie gleb, a zwłaszcza w ściółce i na głębokości od 0 do 2 cm. Tłumaczyć ten fakt należy tym, że materiał roślinny został dobrze zhumifikowany, a zatem cechuje się dużą pojemnością sorpcyjną. W poziomach mineralnych badanych gleb można zauważyć tendencję do migracji cezu w głąb profilu glebowego. Z przeprowadzonych przez PiG (Państwowy Instytut Geologiczny) badań wynika, że ponad 90% radiocezu w glebie znajduje się wciąż w pierwszych 10 cm profilu, ponieważ wykazuje silną tendencję do trwałego wiązania się ze składnikami gleb. Jest on bardzo dobrze sorbowany, a co za tym idzie słabo pobierany przez rośliny. Niemniej jednak radiocez jest bardzo dobrze rozpuszczalny w wodzie (60–90%) i dzięki temu ulega wmywaniu w głąb profilu glebowego [1, 5, 9].

W przypadku izotopu potasu  $^{40}\text{K}$  można zauważyć, że obecny jest on w całym profilu glebowym ze względu na swoje wszechobecne występowanie w skorupie ziemskiej. Stężenie potasu w próbkach gleb pobranych z odkrywki numer I w marcu mieści się w przedziale 84,25–117,19 Bq/kg, a we wrześniu 76,51–130,39 Bq/kg. Natomiast w przypadku odkrywki numer II koncentracja tego izotopu w marcu zawiera się w granicach 48,82–135,24 Bq/kg, a we wrześniu 100,52–316,12 Bq/kg. Według danych CLOR stężenie  $^{40}\text{K}$  dla powierzchniowej warstwy gleby mieści się w przedziale od 123–1020 Bq/kg, a wartość średnia dla Polski wynosi 410 Bq/kg [2–4]. W przypadku odkrywki numer I stężenia izotopu potasu w przypadku zebranych próbek gleb są do siebie zbliżone. Natomiast w przypadku odkrywki numer II stężenie izotopu potasu w ściółce znacznie różni się dla próbek pobranych w marcu i wrześniu. W marcu zawartość  $^{40}\text{K}$  w ściółce jest równa 316,12 Bq/kg, a we wrześniu

48,82 Bq/kg (jest prawie siedem razy mniejsza). Związane to może być z wprowadzaniem do gleby większej ilości nawozów potasowych. Dla pozostałych głębokości zawartości  $^{40}\text{K}$  są do siebie zbliżone w przypadku odkrywki numer II.

$^{228}\text{Ac}$  jest radionuklidem należącym do szeregu torowego. Analizując schemat rozpadu tego izotopu można zauważyć, że rozpad promieniotwórczy tego izotopu jest źródłem promieniowania gamma oraz cząstek alfa. Stężenie aktywności dla 10 cm warstwy gleby dla obszaru Polski, według CLOR [2–4] mieści się w granicy od 3,7–86 Bq/kg, a wartość średnia wynosi 20,7 Bq/kg. W badanych próbkach gleb dla odkrywki numer I stężenie  $^{228}\text{Ac}$  znajdowało się w granicach od 0–5,68 Bq/kg, a dla odkrywki numer II mieściło się w zakresie 0–25,58 Bq/kg. Wartości te należą więc do niskich stężeń, typowych dla środkowej Polski. Należy ponadto wspomnieć, że  $^{228}\text{Ac}$  jest produktem rozpadu  $^{232}\text{Th}$ , który niemal w 100% stanowi tor naturalny. Zatem można stwierdzić że zawartość  $^{232}\text{Th}$  w glebie odpowiada stężeniu  $^{228}\text{Ac}$ , uwzględniając istnienie w przyrodzie równowagi promieniotwórczej.

## 7. WNIOSKI

Na podstawie przeprowadzonych badań można sformułować następujące wnioski:

- stężenia naturalnych i sztucznych izotopów określone na podstawie analiz widm promieniowania gamma nie odbiegają od wartości przeciętnie występujących w glebach Polski za wyjątkiem izotopu  $^{210}\text{Pb}$ ;
- stężenie izotopu  $^{40}\text{K}$  w większości analizowanych próbkach gleb nie przekracza 105 Bq/kg dla odkrywki numer I i 118 Bq/kg w przypadku odkrywki numer II, a więc mieści się w dolnych granicach podanych przez CLOR;
- zarejestrowano podwyższoną koncentrację izotopu  $^{210}\text{Pb}$  w próbkach wierzchniej warstwy gleb, co może być spowodowane spalaniem węgla przez elektrociepłownię Kozienice znajdującą się w niedalekiej odległości oraz nadmiernym stosowaniem nawozów fosforowych;
- skażenie próbek gleb sztucznym pierwiastkiem promieniotwórczym jakim jest  $^{137}\text{Cs}$  jest niewielkie i nie przekracza 13,10 kBq/m<sup>2</sup>;
- w przypadku pobranych próbek gleb można zauważyć, że izotop  $^{137}\text{Cs}$  gromadzi się głównie w ściółce i na niewielkich głębokościach, co jest spowodowane jego silnym wiązaniem się ze składnikami;

- stężenie sztucznego izotopu  $^{137}\text{Cs}$  w profilu glebowym jest znacznie niższe od zawartości naturalnych izotopów promieniotwórczych takich jak:  $^{40}\text{K}$  oraz  $^{210}\text{Pb}$ ;
- największy wkład do dawki promieniowania jonizującego mieszkańcy Puław i pobliskich okolic, otrzymują ze źródeł naturalnych, a nie sztucznych.

#### LITERATURA

- [1] Bergeijk K.E., Nordijk K., Lembrechts J., Frissel M.J., Influence of pH, soil type and soil organic matter content on soil-to-plant transfer of radio-caesium and radiostrontium as analysed by a nonparametric method., *J. Environ. Rad.* 15, 1992, pp. 265–276.
- [2] Isajenko K., Piotrowska B., Fujak M., Kardaś M., *Atlas Radiologiczny Polski 2011*. Biblioteka Monitoringu Środowiska, Warszawa 2012.
- [3] Isajenko K., Piotrowska B., Fujak M., Kuczbajska M., Kiełbasińska A., *Monitoring stężenia  $^{137}\text{Cs}$  w glebie w latach 2010–2011, etap IV, raport roczny*. Centralne Laboratorium Ochrony Radiologicznej, Zakład Dozymetrii, Warszawa, maj 2012.
- [4] Jagielak J., Biernacka M., Henschke J., *Radiologiczny Atlas Polski 1997*. Biblioteka Monitoringu Środowiska, Warszawa 1998.
- [5] Kubica B., Pilotażowe badania zawartości  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$  i  $^{40}\text{K}$  w próbkach gleby z Tatrzańskiego Parku Narodowego. *Kosmos. Problemy Nauk Biologicznych* 2002, t. 51, nr 4 (257), str. 407–413.
- [6] Krajewski P., *Opracowanie i weryfikacja modelu dla oceny dawek od izotopów promieniotwórczych jodu i cezu uwalnianych do środowiska*, praca doktorska wykonana pod kierunkiem prof. dr hab. Zofii Pietrzak-Flis w Zakładzie Higieny Radiacyjnej CLOR, Warszawa 1999.
- [7] Kopron H., *Rewitalizacja terenów leśnych w otoczeniu Zakładów Azotowych w Puławach*, Towarzystwo Przyjaciół Puław – Sekcja Ochrony Środowiska, Puławy 2007.
- [8] Kossakowski S., *Promieniotwórcze skażenie środowiska*. PIW, Puławy 1995
- [9] Niesiołędzka K., *Specjacja radionuklidu  $^{137}\text{Cs}$  w glebach*. *Chem. Inż. Ekol.* 2000, 7(3), 237–247.



- [10] Praca magisterska Anety Łukaszek – Analiza zachowania się radionuklidów pochodzenia naturalnego i antropogenicznego w glebach w okolicy Zakładów Azotowych – Puławy, Uniwersytet Warszawski, Wydział Fizyki, Warszawa 2006.
- [11] Raport Środowiskowy 2004, Zakłady Azotowe „Puławy” Spółka Akcyjna.
- [12] Skiba S., Szymański W., Zawartość  $\gamma$ -radionuklidów  $^{137}\text{Cs}$  i  $^{40}\text{K}$  w glebach Bieszczadzkiego Parku Narodowego. *Roczniki Bieszczadzkie* 2008, 16, str. 301–308.
- [13] Skłodowski P., Bielska A., Właściwości i urodzajność gleb Polski – podstawą kształtowania relacji rolno-środowiskowych. *Woda-Środowisko-Obszary Wiejskie* 2009, t. 9, z. 4(28), s. 203–214.
- [14] Strzelecki R., Wołowicz S., Mapy radiologiczne Polski część 1. PIG, Warszawa 1993.
- [15] Wołkowicz S., Strzelecki R., Geochemia poczynobylskiego cezu w glebach i roślinach anomalii opolskiej. *Przegląd Geologiczny* 2002, vol. 50, nr 10/2, str. 941–944.
- [16] Wróbel Ł., Dołhańczuk-Śródka A., Kłos A., Waclawek M., Promienowanie gamma na wybranych zwałowiskach kopalnianych Górnego Śląska. *Proceedings of ECOpole* 2012,6(2), str. 799–803, DOI: 10.2429/proc.2012.6(2)111.