

## NATURAL AND ARTIFICIAL RADIOACTIVITY IN BULGARIAN SOILS ALONG THE DANUBE RIVER

### ЕСТЕСТВЕНА И ИЗКУСТВЕНА РАДИОАКТИВНОСТ В БЪЛГАРСКИ ПОЧВИ ПО ПОРЕЧИЕТО НА РЕКА ДУНАВ

YORDANOVA I., STANEVA D., BINEVA TZ

Institute for Cryobiology and Food Technology, Laboratory for Radioecology and Radioisotope Research, 7, Shousse Bankya Str., 1080 Sofia, Bulgaria, e-mail:yordan@bgnet.bg

Manuscript received: December 16, 2004; Reviewed: February 24, 2005; Accepted for publication: March 12, 2005

#### ABSTRACT

Data from gamma-spectrometry analyses of soils and sediments samples taken along the Danube river is presented in the paper. Results about the content of natural and artificial radionuclides like Sr-90 and Cs-137 are discussed. The region around the Kozloduj NPP including its exclusion zone is investigated in more details. Data from the last years is compared with such from former investigations of similar samples from the region.

The soil is a natural depot and initial reservoir for spreading of all man-made radionuclides and natural radioactivity. The man-made isotopes with the longest half-life time, like Sr-90 and Cs-137 are mainly investigated. Because of their feature to be bioelements, that is to include themselves in human's metabolism, they are especially dangerous when their concentrations in the nutritious chain increase. That is why the investigation of these nuclides together with the natural once like uranium, thorium and radium started in 1978 with annual determination of their concentrations in soils collected from the region of "Kozloduj" NPP and some places along the Danube river potentially exposed to radioactive contamination.

The aim was to make a picture of the radioecological status of the soils along the Danube river. The period after 1986 is concerned as the accident in Chernobyl's NPP changed basically the radioactive situation in the country.

**KEY WORDS:** radioactivity, soil, caesium, strontium, gamma- spectrometry

#### РЕЗЮМЕ

В работата са представени резултати от гама-спектрометрични анализи на почви и седименти от поречието на р. Дунав. Обсъдени са данни за съдържанието на естествена радиоактивност и техногенни радионуклиди, като Sr-90 и Cs-137. По-детайлно е проучен района около АЕЦ "Козлодуй" заедно със санитарно защитената зона. Сравнени са данни от последната година с такива от изследвания на проби от този район извършени в предишни години.

Почвата е естествено депо и първичен резервоар за разпространение на всички изкуствени радионуклиди и естествена радиоактивност. Изследвани са главно техногенните радионуклиди с най-дълъг период на полуразпад, като Sr-90 и Cs-137. Поради характеристиките им на биоелементи, т.е да се включват в метаболизма на човека, те са особено опасни при увеличаване на концентрацията им в хранителната верига. Поради това от 1978 започва изследването на тези радионуклиди едновременно с естествени, като уран, торий и радий, като се прави ежегодно определяне на концентрациите им в почви, събирани от района на АЕЦ "Козлодуй" и някои области по поречието на р. Дунав, потенциално изложени на радиоактивно замърсяване. Целта е да се изработи картина на радиоecологичния статус по поречието на р. Дунав. Разглеждан е периода след 1986 г., тъй като инцидента в Чернобилската АЕЦ, промени основно радационната обстановка в страната.

**КЛЮЧОВИ ДУМИ:** радиоактивност, почва, цезий, стронций, гама-спектрометрия

## РАЗШИРЕНО РЕЗЮМЕ

От средата на седемдесетте години в Лабораторията по радиоекология и радиоизотопни изследвания се извършват проучвания във връзка с поведението и разпространението на естествена и техногенна радиоактивност в почви от различни райони в страната. Поради наличието на АЕЦ “Козлодуй” и проектирания строеж на АЕЦ “Белене”, районът, който предизвиква най-голям интерес в това отношение е българският бряг на р. Дунав, включващ 30-километровата зона около централата следваща розата на ветровете. При това в Лабораторията е натрупана богата база данни [1, 2, 3].

За целите на настоящата работа през 2003 г. са събрани проби от почви и седименти от предварително реперирани обекти по поречието на реката. Извършен е гама-спектрометричен анализ на пробите. За проби от тези обекти, но събирани в предишни години е определено съдържание на Sr-90. Използвани са методики от рутинната практика на лабораторията [4, 5]. Определянето на Sr-90 е извършвано по дъщерния му продукт Y-90, чрез екстракция с ТБФ (трибутилфосфат) [4].

Резултатите от гама-спектрометричния анализ на почвите са представени в Таблица 1, а в Таблица 2 – на седиментите. Нехомогенността на разпространението на изследваните радионуклиди може да се види от осреднените стойности, представени в последния ред на таблица 1. Сравнение за разпространението на двата техногенни радионуклида Cs-137 и Sr-90 в почви от Северна и Южна България е представено на фиг. 1. По-подробно проучване на разпространението на двата техногенни радионуклида е направено за един от пунктовете “Козлодуй-акациева горичка”. Взети са 12 повърхностни проби от площ около 10m<sup>2</sup>, като в две от точките са взети проби и в дълбочина по профила. Отново е установена повърхностна нехомогенност в разпределението и на двата радионуклида. Резултатите за миграцията в дълбочина са представени на фиг. 2 и 3. Направено е достоверно приближение с експоненциална функция. Направени са следните изводи:

1. Съдържанието на естествена радиоактивност в почви и седименти от българския бряг на р. Дунав е сравнително хомогенно и е в рамките на нивата установени за типа почви разпространени в района.
2. Не е констатирано допълнително отлагане на Cs-137, като замърсяването с Cs-137 и Sr-90 все още е твърде нехомогенно.
3. Миграцията по почвения профил зависи предимно от почвените характеристики и не е реално повлияна

от повърхностното замърсяване.

## INTRODUCTION

Studies on determination of the amount of man-made and natural radioactive elements in soils from sites potentially subjected to radioactive contamination have been conducted in the Laboratory of Radioecology and Radioisotope Researches since mid of 1970s. The whole area along the Bulgarian side of the Danube river was of special interest because of the Kozloduj NPP and the foreseen construction of new NPP in Belene. Sampling points were selected along the river including the 30-kilometer area around the Kozloduj Nuclear Power Plant. Soil and silt from the Danube were regularly collected and analyzed. As a result of these analyses, the Laboratory has at its disposal a rich database regarding the presence of technogenic and natural radioactive elements – Cs-137, Sr-90, uranium, radium, thorium, etc. [1, 2, 3].

## MATERIALS AND METHODS

In 2003 an expedition was done for collecting soil and silt samples from the sampling points included in the regular program for monitoring of the region. The samples were dried, homogenized and grinded before being analyzed by gamma-spectrometry. Specific activity of Sr-90 was determined for samples collected in previous years. Procedures used in the routine practice of the lab were used for the analyses [4, 5]. Strontium was determined using its daughter product Y-90 after extraction with TBP (tributylphosphate) from an acidic leaching solution [4]. The measurement was done by a low background counter.

The measuring system for the gamma-spectrometry consists from HPGe detector with MCA of CANBERRA type. Data accumulated in this way together with the information received before 1986 allows to make comparative assessment of the radioactive status of the soils and silts in the region.

## RESULTS AND DISCUSSION

Results from the gamma-spectrometry analyses of the samples collected in the year of 2003 are presented in Table 1. Cesium 137 was measured by its 661.7 keV gamma-ray. U-238 was determined using its progeny Th-234 with its gamma-rays at 62,3 keV and 92.3 keV. For determination of Ra-226, the peaks of Bi-214 at 609,3 keV and Pb-214 at 351,9 keV were used.

In the last row of the Table 1 the average values for different radionuclides are estimated. Interesting is the non homogeneity of the distribution of Cs-137 isotope

## NATURAL AND ARTIFICIAL RADIOACTIVITY IN BULGARIAN SOILS ALONG THE DANUBE RIVER

Table 1: Results from gamma-spectrometry analyses of soil samples from different sites along the Bulgarian part of the Danube river [Bq/kg]

Таблица 1: Резултати от гама-спектрометрични анализи на почвени проби от различни места на пробовземане по българската част на р. Дунав [Bq/kg]

№ Sampling place	Depth cm	Cs-137	U-238	U-235	Ra-226	Th-232
1. Belene, the harbor	0-5	4±0,5	37 ± 10	1 ± 0,5	9 ± 2	30 ± 3
2. Oresh	0-5	26 ± 2	45 ± 10	2 ± 0,5	20 ± 3	25 ± 3
3. Petkladentzi	0-5	28 ± 2	50 ± 10	2 ± 0,5	30 ± 3	50 ± 5
4. Svishtov-1	0-5	21 ± 1	35 ± 10	1 ± 0,5	30 ± 3	30 ± 3
5. Leskovetz	0-5	76 ± 2	45 ± 10	2 ± 0,5	40 ± 4	40 ± 4
6. Oryahovo	0-5	12 ± 1	40 ± 10	2 ± 0,5	25 ± 3	24 ± 3
7. Kozlodouy-the piping	0-5	3 ± 1	50 ± 10	2 ± 0,5	35 ± 5	40 ± 4
8. Kozlodouy –acacia forest.	0-5	21 ± 1	40 ± 10	2 ± 0,5	36 ± 5	40 ± 4
9. Kozlodouy –Botev alley.	0-5	17 ± 2	50 ± 15	2 ± 0,5	35 ± 5	42 ± 4
10. Kozlodouy –veterinary station	0-5	2 ± 0,5	40 ± 10	1 ± 0,5	30 ± 3	30 ± 3
11. Kozlodouy -harbor	0-5	21 ± 2	25 ± 7	1 ± 0,5	25 ± 3	23 ± 3
12. Dolni Tzibar	0-5	20 ± 1	30 ± 10	1 ± 0,5	25 ± 3	30 ± 3
13. Glogene	0-5	24 ± 2	35 ± 7	1 ± 0,5	30 ± 3	38 ± 4
14. Boutan	0-5	15 ± 2	45 ± 10	1 ± 0,5	33 ± 5	35 ± 4
15. Hiredene	0-5	17 ± 1	23 ± 5	1 ± 0,3	18 ± 2	20 ± 2
16. Septemvrijtzi	0-5	16 ± 1	35 ± 7	2 ± 0,5	28 ± 3	35 ± 4
17. Bazovetz	0-5	38 ± 2	50 ± 10	2 ± 0,5	40 ± 5	50 ± 5
18. Sofronievo	0-2,5	13 ± 2	28 ± 6	1 ± 0,3	20 ± 4	12 ± 2
19. Bjala Slatina	0-2,5	20 ± 1	40 ± 8	1 ± 0,5	35 ± 5	40 ± 4
20. Knega	0-5	14 ± 1	50 ± 10	2 ± 0,5	38 ± 5	36 ± 5
21. Vratza	0-5	9 ± 1	46 ± 14	2 ± 0,5	36 ± 2	50 ± 3
22. Belene	0-5	11 ± 1	45 ± 8	1,5 ± 0,5	40 ± 5	50 ± 8
23. Svishtov -2	0-5	33 ± 1	35 ± 7	1 ± 0,5	30 ± 3	30 ± 3
<b>AVERAGE</b>		<b>20 ± 14</b>	<b>40 ± 8</b>		<b>30 ± 8</b>	<b>34 ± 12</b>

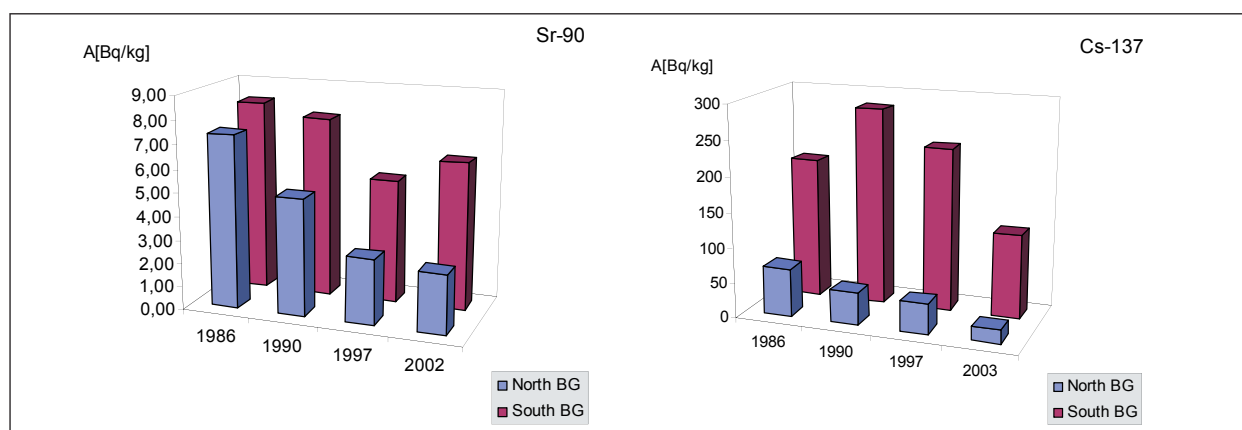


Fig. 1: Average amount of Sr-90 and Cs-137 in soils from Northern and Southern Bulgaria in different years.

Фиг. 1: Осреднено съдържание на Sr-90 и Cs-137 в почви от Северна и Южна България в различни години

Table 2: Results from gamma-spectrometry analyses of silt samples from different sites along the Bulgarian part of the Danube river [Bq/kg]

Таблица 2: Резултати от гама-спектрометрични анализи на седименти от различни места на пробовземане по българската част на р. Дунав [Bq/kg]

№ Sampling place	Cs-137	U-238	U-235	Ra-226	Th-232
1. Belene - silt	8 ± 1	42 ± 8	1,5 ± 0,5	34 ± 5	40 ± 5
2. Svishtov -silt	9 ± 1	40 ± 8	1,5 ± 0,5	35 ± 5	30 ± 3
3. Oryahovo -silt	25 ± 1	40 ± 8	1,5 ± 0,5	35 ± 5	33 ± 4

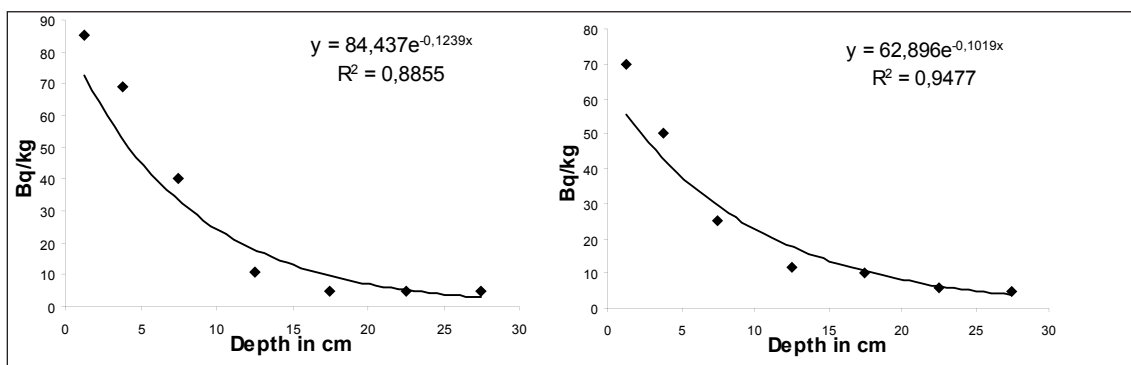


Fig. 2: Migration of Cs-137 down the soil profile for two sampling points at Kozlodouy – acacia forest  
 Фиг.2: Миграция на Cs-137 в дълбочина по почвения профил за две точки на пробовземане от Козлодуй-акациева горичка

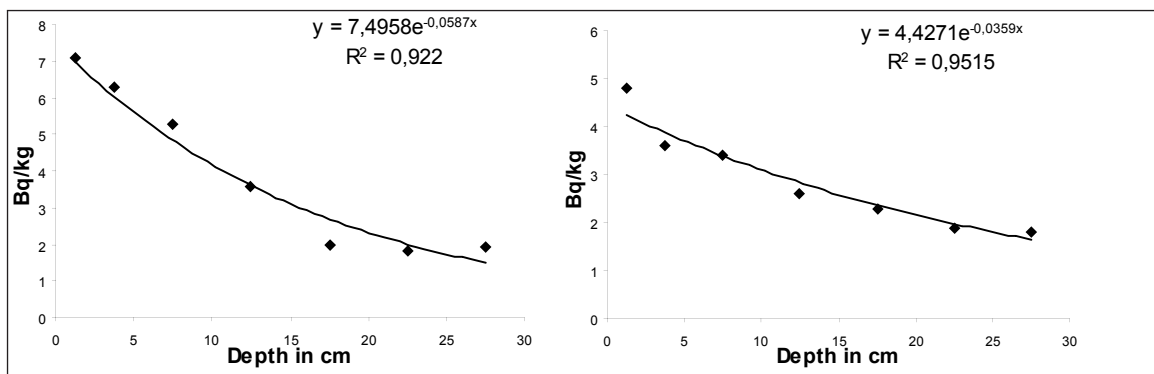


Fig. 3: Migration of Sr-90 down the soil profile for two sampling points at Kozlodouy – acacia forest  
 Фиг.3: Миграция на Sr-90 в дълбочина по почвения профил за две точки на пробовземане от Козлодуй-акациева горичка

a fact which leads to great variations in estimating the average values. This also makes it difficult to establish slight variation in the case of radioactive contamination with this radionuclide. Such big variation is not established for the natural radionuclides which show lack of artificial contamination with them.

The Table 2 shows some results for silts from the river. The specific activities for the different measured isotopes are in the range of the background quantities.

For a more precise evaluation of the changes in the soil radiation status in the studied region, Fig. 1 provides

the average values for the amount of Cs-137 and Sr-90 measured in soils from Northern and Southern Bulgaria. In all the studies non homogeneity of distribution of these two radioisotopes was observed. The variations in calculating the average values were up to 80%.

In order to characterize the distribution of Cs-137 and Sr-90 one of the sampling places (Kozlodouy – acacia forest) was studied in more details. The samples for this study were collected in a previous year. Twelve samples were taken from an area of about 10 m<sup>2</sup>. The specific activities of Cs-137 varied from 19 to 80 Bq/kg.

Variation in estimating of the average value was about 50%. The same lack of homogeneity was established for Sr-90 with variety up to 50% as well. In two cases samples were taken from depth down to 30 cm in five cm layers in order to study the migration of the nuclides down the profile of the soil. The results are graphically presented on Fig. 2 and 3, for Cs and Sr respectively.

The experimental results for both isotopes were successfully fitted with exponential function with coefficient of regression ( $R^2$ ) almost equal to 1. In spite of the difference in the surface contamination the distribution down in the depth of the soil is similar for both points what logically was expected as it depends mainly on the soil characteristics.

### CONCLUSIONS

As a result the following conclusions may be done:

1. The distribution of natural radioactivity in the analyzed soils and silts samples taken from the area along the Bulgarian site of the Danube river is relatively homogeneous and the amount is in the levels characteristic for the types of soils characteristic for this region.
2. Compared to the previous years no additional amount of Cs-137 was determined, the contamination with Cs-137 and Sr-90 is still quite non homogeneous.
3. The migration down the soil profile depends mainly on the soil characteristics and is not really affected by the surface contamination.

### REFERENCES

- [1] Naydenov M., I. Yordanova, Hr. Turpanova, Dynamics of the Soil Surface Contamination with Cs-137 and Sr-90 for 1986-1988 Period, Proc. "Scientific Reports and Letters", Part I, Agricultural Academy, (1989), Sofia, 18-25 (in Bulgarian).
- [2] Staneva D., I. Yordanova, Hr. Turpanova, M. Naydenov, "Status of Soil Radioactive Contamination of Some Regions in the Country for 1992 and Comparison with the Changes in their Pollution after the Accident in the Chernobyl NPP", Proc. of Conference "Metrology and Control in Agroecology METROAGROECO-93", (1993), Sofia, 119-122. (in Bulgarian).
- [3] Yordanova I., L. Misheva, D. Staneva, M. Naydenov, "Ten Years after Chernobyl – Radioecological Status of Bulgarian Soils", Journal of Balkan Ecology, (1998), vol. 1, No 1, 92-98.
- [4] Naydenov M., I. Yordanova, D. Staneva, L. Misheva, "Procedures for Determination of Alpha-Beta- and Gamma-Emitting Radioactive Isotopes in Environmental Samples", National Center for Agricultural Science, Sofia, (2001), p.40.  
(in Bulgarian).
- [5] Papachristodoulo C.A., P.A. Assmakopoulos, N. E. Patronis, K. G. Ioannides, "Use of HPGe  $\gamma$ -ray Spectrometry to Assess the Isotopic Composition of Uranium in Soils", Journal of Environmental Radioactivity, 64, (2003), 195-203.

