

Друштво за заштиту од зрачења Србије и Црне Горе

Монографија
ЧЕРНОБИЉ
30 година после

Уредник
др Гордана Пантелић

Београд
2016

Монографија: **ЧЕРНОБИЉ 30 година после**

Издавач: Институт за нуклеарне науке „Винча“, Лабораторија за заштиту од зрачења и заштиту животне средине „Заштита“
Друштво за заштиту од зрачења Србије и Црне Горе

За издавача: др Борислав Грубор

Рецензенти: др Оливера Џирај Бјелац
др Иштван Бикит
др Владимир Удовичић
др Невенка Антовић
др Ивана Вуканац
др Драгослав Никезић
др Душан Mrђа
др Марија Јанковић
др Јелена Крнета Николић

Уредник: др Гордана Пантелић

Лектор/коректор: Мариола Пантелић, MSc

Објављивање монографије помогли:
Министарство просвете, науке и технолошког развоја

ISBN 978-86-7306-138-2

Штампа: Штампарија Института за нуклеарне науке „Винча“, 522,
11001 Београд, Тел. 011-8066-746
Тираж: 150 примерака

DISTRIBUCIJA ^{137}CS U OBRADIVOM ZEMLJIŠTU

Ivana Ž. VUKAŠINOVIĆ¹, Miloš B. RAJKOVIĆ¹ and Dragana J. TODOROVIĆ²

1) Univerzitet u Beogradu, Poljoprivredni Fakultet, Beograd-Zemun, Srbija

2) Univerzitet u Beogradu, Institut za nuklearne nauke "Vinča", Laboratorija za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine, Beograd, Republika Srbija

Rezime

Usled padavina koje su usledile nakon Černobilskog akcidenta 1986. godine, proizvedeni radionuklid ^{137}Cs je deponovan u zemljишtu. S obzirom na njegovo dovoljno dugo vreme poluraspada (30,05 godina), posebno je važna radiološka zaštita kultivisanog (obradivog) zemljишta jer se postavlja pitanje da li se ovaj radionuklid zadržava u površinskim slojevima zemljишta, da li biva usvojen od strane biljaka ili se spušta u dublje slojeve zemljишta. U ovom radu prikazani su rezultati merenja specifične aktivnosti ^{137}Cs metodom gama-spektrometrije u zemljisu 15 godina starog voćnjaka pod zasadom breskvi. Priprema zemljisha za sadnju bresaka izvršena je rigolovanjem, posle čega je usledila 12 godina duga nega voćnjaka, a zatim uzorkovanje zemljisha je izvršeno tri godine nakon prestanka svih poljoprivrednih tretmana. U radu je prikazan pregled rezultata analize uticaja dugogodišnje kultivacije (obradivanja) zemljisha na preraspodelu ^{137}Cs duž profila dubine 0-80 cm. Linearna i višestruka regresiona analiza primenjene su da bi se procenilo u kojoj meri su nivoi radioizotopa cezijuma povezani sa: nivoima izotopa kalijuma ^{40}K detektovanim u zemljisu; zatim, osnovnim osobinama koje karakterišu zemljiste (pH, sadržaj humusa, sadržaj karbonata, granulometrijski sastav, sadržaj higroskopske vlage); mineralnim sastavom glinovite frakcije zemljisha i dostupnim sadržajima mikroelemenata (Zn, Cu, Mn, Fe). Obrasci distribucije ^{137}Cs sa dubinom ukazivali su da je cezijum bio mehanički prenesen iz površinskih ka nižim slojevima zemljisha tokom kultivacije. Rezultati analiza su pokazali da na zatečenu distribuciju izotopa cezijuma sa dubinom glavni uticaj imaju varijacije sadržaja humusa i minerala glinovite frakcije zemljisha, vermikulita, ilita i smektiha.

1. UVOD

Prirodni cezijum sastoji se od jednog stabilnog izotopa (^{133}Cs), dok su ostali (od ukupno 22) veštačkog porekla i u prirodi se pojavljuju uglavnom kao rezultat antropogene aktivnosti. Za proizvedeni radionuklid ^{137}Cs se smatra da u životnoj sredini većinom potiče od radioaktivnih padavina proizvoda nuklearne fisije nastalih kao posledica Černobilskog akcidenta 1986. godine, a do tog trenutka se pojavljuje kao rezultat intenzivnih nuklernih proba u atmosferi. ^{137}Cs je biološki značajan radionuklid s obzirom na svoje dovoljno dugo vreme poluraspada (30,05 godina) koje mu obezbeđuje prisustvo u lancima ishrane. Uključivanje u lanac ishrane potiče prvenstveno iz zemljisha, pa je fokus mnogih studija ponašanje ^{137}Cs u kultivisanom (obradivom) zemljisu [1-5]. Glavni mehanizmi taloženja ^{137}Cs u zemljisu su suva i vlažna depozicija („fallout“). Po kontaminaciji, nakon taloženja iz atmosfere, visoka aktivnost ^{137}Cs zastupljena je u površinskim slojevima zemljisha i sa dubinom profila ona brzo eksponentijalno opada [4,5]. Duž neobradivih (nekultivisanih) profila zemljisha cezijum nije ravnomerno

rasporeden, a tokom vremena, njegovo kretanje u dublje slojeve postaje sporije pri čemu vertikalna migracija zavisi od fizičko-hemijskih interakcija sa datim matriksom zemljишta [6-8]. Duž obradivih (kultivisanih) profila zemljишta, ^{137}Cs se takođe neravnomerno raspoređuje. U ovom slučaju, u procesu obrade zemljишta dolazi do mešanja (rotiranja) slojeva zemljишta, prvobitna zemljишna struktura biva poremećena i radiocezijum se mehanički preraspodeljuje. Dubina do koje će cezijum biti dodatno distribuiran zavisiće od stepena obrade zemljишta pri čemu se njegova raspodela može izraziti različitim funkcijama opadajućeg trenda sa dubinom [4,5]. Obradivanje zemljишta koje se nastavi tokom dužeg vremenskog perioda doveće do uniformne distribucije ^{137}Cs duž dubine oranja [8].

Radiocezijum se u zemljisu vezuje za čestice zemljisha ili se pojavljuje u obliku zemljisnih rastvora. Na njegovu mobilnost u zemljisu utiču: a) retenzija cezijuma nastala kao rezultat interakcije matriksa i vlažnosti zemljisha, b) fizičko-hemiska svojstva zemljisha kao što su mehanički sastav, pH reakcija, sadržaj organskih materija, mineraloški sastav i c) procesi i elementi (korenov sistem, sastav mikroorganizama) biološkog porekla koji se odvijaju u zemljisu [8-10].

Iako se smatra da je rastvorljivost radioaktivnog cezijuma visoka, radiocezijum „u suštini nije dostupan i 95% ^{137}Cs je nepovratno podložno sorpciji u zemljisu čak i pod uslovima koji teorijski povećavaju oslo bađanje“ [3]. ^{137}Cs prisutan u zemljisu može da bude apsorbovan na organskim česticama (huminske materije) i frakcijama gline, praha i peska [9-11]. Sposobnost minerala gline da fiksiraju ^{137}Cs ključno utiče na njegovu pojavu u zemljisnim rastvorima pa time i na vertikalnu mobilnost i transfer iz zemljisha u biljke. Sorpcija ^{137}Cs je najveća na mineralima gline bogatim kalijumom, naročito na ivicama međuslojeva („frayed edge sites“) glina tipa kristalne rešetke 2:1 koja su dostupna samo monovalentnim katjonima sa niskom energijom hidratacije (npr. K, Cs, Rb) [7,8]. S obzirom da cezijum nije esencijalni element u ishrani biljaka za razliku od svog geohemijskog analoga kalijuma, čiji su K^+ joni normalno prisutni u obradivom zemljisu, utvrđeno je da od koncentracije kalijuma u zoni rizosfere zavisi usvajanje Cs od strane korena [11]. Konačno, procenjuje se da je u obradivom zemljisu oko 10% i 20% ukupnog ^{137}Cs sadržano u razmenljivim i organskim, a oko 70% u rezidualnim frakcijama zemljisha [12].

Aktivnost ^{137}Cs u zemljisu u Srbiji pre 1986. godine bila je ispod 5 Bq/kg, a posle akcidenta u Černobilju karakteriše je izrazito nehomogena raspoređenost u tlu [13,14]. Ispitivanjem zemljisa planinskih predela utvrđeno je da su koncentracije ^{137}Cs u škriljcima bile više (462 Bq/kg) nego u krečnjačkom zemljisu (88 Bq/kg) na planini Tara, 1991. godine, koje se nisu bitno razlikovale od maksimalno izmerene vrednosti od 270 Bq/kg izmerenim na planini Šara, 1997. godine, a niže vrednosti, koje su bile manje od 87 Bq/kg izmerene su 2000. godine na Staroj planini [13]. Ispitivanje vertikalne raspodele koncentracije ^{137}Cs u zemljisu pokazalo je da se do 1996. godine černobiljski cezijum zadržao u prvih 15 cm tla [13]. U periodu 2003-2008. godine u Srbiji, nivo izotopa cezijuma u blizini termolektrana na ugalj nalazio se u intervalu 3-68 Bq/kg, a u urbanim područjima u periodu 2001-2007. godine u intervalu 4-70 Bq/kg, a navedene razlike su tumačene kao rezultat različitog tipa, geološkog porekla i potencijalnog obradivanja zemljisha [13]. Na području Beograda (2008. godine) zabeležene su specifične aktivnosti ^{137}Cs (u intervalu 0,30-160 Bq/kg) neobradivih profila zemljisha različitog tipa i dubine 0-50 cm, pri čemu je u svakom profilu vrednost manja od 10 Bq/kg detektovana na dubini ispod 25 cm [14].

U ovom radu prikazan je pregled rezultata merenja specifične aktivnosti ^{137}Cs nakon 22 godine od akcidenta u Černobilju u profilima zemljisha dubine 0-80 cm sakupljenih sa

voćnjaka pod zasadom breskvi na oglednom školskom poljoprivrednom dobru „Radminovac“ (Poljoprivredni fakultet, Univerzitet u Beogradu). Takođe, prikazani su rezultati analize uticaja dugogodišnje obrade na preraspodelu ^{137}Cs duž profila zemljišta. Linearna i višestruka regresiona analiza su bile primenjene da bi se procenilo u kojoj meri su nivoi radioizotopa cezijuma povezani sa: *a*) nivoima izotopa kalijuma ^{40}K detektovanim u zemljишtu; *b*) osnovnim osobinama koje karakterišu zemljишte (pH, sadržaj humusa, sadržaj karbonata, granulometrijski sastav, sadržaj higroskopske vlage); *c*) mineralnim sastavom glinovite frakcije zemljišta i *d*) dostupnim sadržajima mikroelemenata (Zn, Cu, Mn, Fe).

2. MATERIJALI I METODE

Uzorkovanje zemljišta. Voćnjak pod zasadom breskvi, školskog poljoprivrednog dobra „Radminovac“, Poljoprivrednog Fakulteta, Univerziteta u Beogradu je bio mesto uzorkovanja četiri profila zemljišta, u letu 2008. godine. Godine 1992., dubokim oranjem (rigolovanjem) do dubine od 1 m prirodnog zemljišta tipa *černozem* izmenjene su endomorfološke karakteristike zemljišta. Pri tome je formirano antropogeno zemljишte tipa *antrosol* prema međunarodnoj FAO klasifikaciji [15]. Voćnjak je kultivisan i tretiran fosfatnim đubrivicima u periodu od 12 godina. Zatim, posle perioda od tri godine u kome nikakvi tretmani voćnjaci (oranje, đubreњe, irrigacija) nisu primenjivani pristupilo se kolekciji uzoraka jer je struktura zemljišta bila dovoljno stabilna da bi se ustanovile osobine formiranog *antrosola*. Uzorci zemljišta sakupljeni su iz Ap-horizonta močnosti 80 cm na svakih 20 cm (gornji sloj dubine 0-20 cm, slojevi u zoni korenovog sistema 20-40 cm i 40-60 cm i donji sloj 60-80 cm). Tri profila zemljišta (**P₁**, **P₂**, **P₃**) otvorena su u blizini korena stabla breskve, a četvrti (**P₄**) sa dela zemljišta pokrivenog travom, van korenovog sistema.

Analize osobina zemljišta. U cilju pripreme 16 uzoraka zemljišta za merenje vršeno je vazdušno sušenje uzoraka, a zatim je zemljишte prosejavano kroz sito promera 2 mm. Standardne tehnike analize zemljišta korišćene su za određivanje hemijskih i fizičkih osobina: mehanički sastav prema metodi prosejavanja i sedimentacije (pipet metod), zemljишna kiselost u vodi potenciometrijski, sadržaj kalcijum-karbonata pomoću Šajblerovog kalcimetra i sadržaj humusa metodom Tjurina.

Gama-spektrometrijska merenja. Za određivanje koncentracije aktivnosti radionuklida применjen je metod gama spektrometrije. Uzorci zemljišta pakovani su u Marineli posude zapremine 500 cm³, zapečaćeni pčelinjim voskom i čuvani 4 nedelje radi dostizanja radioaktivne ravnoteže. Korišćen je koaksijalni detektor *p*-tipa (Canberra Industries, Inc., Meriden, CT, USA) relativne efikasnosti 20% i energetskom rezolucijom 1,8 keV na energiji 1332 keV izotopa ^{60}Co . Referentni materijal matriksa zemljišta (National Office of Measures OMH, Budapest) u geometriji Marineli posude zapremine 500 cm³ sa homogeno raspoređenim radionuklidima (^{22}Na , ^{57}Co , ^{60}Co , ^{89}Y , ^{133}Ba i ^{137}Cs) ukupne aktivnosti 1,5 kBqkg⁻¹ na dan 01.07.1991. korišćen je za kalibraciju efikasanosti detektora. Merenje je vršeno u intervalu vremena 70000 s. Spektar je analiziran standardnim softverskim paketom *Genie 2000*. Aktivnost ^{137}Cs i ^{40}K određena je na osnovu njihovih γ – energije 661,66 keV i 1460 keV, respektivno. Ukupna eksperimentalna neodređenost metoda iznosila je 10%.

Analize mineraloškog sastava. U cilju određivanja mineraloškog sastava zemljišta применjena je metoda rendgenske difrakcije. Ovom metodom su ispitivani uzorci glinovite frakcije zemljišta profila **P₁**, **P₂** i **P₃** koja je prethodno dobijena mehaničkom analizom. Izvršeno je snimanje orijentisanog uzorka, uzorka zasićenog etilen glikolom i

žarenog uzorka na 550°C. Rendgenski dijagrami praha snimljeni su krišćenjem rendgenskog difraktometra za prah Philips (PW-1010).

Analyze pristupačnih sadržaja mikroelemenata. Sadržaji pristupačnih elemenata Fe, Mn, Cu i Zn u zemljишtu dobijeni su ekstrakcijom sa rastvorom 0,005 MDTPA i analizirani metodom atomske apsorpcione spektrofotometrije korišćenjem uređaja Varian SpectraA 250 plus.

3. REZULTATI I DISKUSIJA

3.1. Karakteristike ispitivanog zemljишta

U tabeli 1 predstavljeni su rezultati merenih veličina duž profila zemljишta **P₁**, **P₂**, **P₃** i **P₄** u intervalima dubine 20 cm čije vrednosti su preuzete iz naših prethodnih istraživanja istog antrosola [16-19]. Merene su vrednosti specifične aktivnosti (Bq kg^{-1}) radionukida ^{137}Cs i ^{40}K [16-17], glavnih osobina zemljишta (pH, sadržaj humusa, sadržaj karbonata, mehanički (granulometrijski) sastav i sadržaj higroskopske vlage) [16], zatim procentualni mineralni sastav glinovite frakcije zemljишta [18], kao i pristupačni sadržaji mikroelemenata (mg kg^{-1}) Zn, Cu, Mn i Fe [19]. Vrednosti specifične aktivnosti su predstavljene u obliku "merena vrednost \pm eksperimentalna nesigurnost".

Na osnovu osobine zemljишta može se zaključiti da se profili međusobno bitno ne razlikuju i da ih karakteriše ista praškasto-glinasta tekstura. Sadržaj gline (čestice dimenzija $< 0,002$ mm) varira od 33,08 do 43,33%, a peska (čestice dimenzija $> 0,05$ mm) od 2,18 do 16,12%. Primećuje se izlučivanje čestica gline u zoni korenovog sistema (20-60 cm) i njihova akumulacija u dubljim slojevima, a trend je suprotan u slučaju krupnih čestica kao što je pesak. U poređenju sa ostalim profilima kod kojih je sadržaj karbonata mnogo manji, do 1%, profil **P₂** sadrži 7-10% karbonata. Takva razlika uticala je na vrednosti pH, pa **P₂** pokazuje alkalnu reakciju dok zemljишte ostalih profila varira od slabo kisele do neutralne reakcije. Ukupno, sadržaj higroskopske vlage varira 18%. Sadržaj humusa značajno opada sa dubinom, i varira ukupno do 40% [16,17].

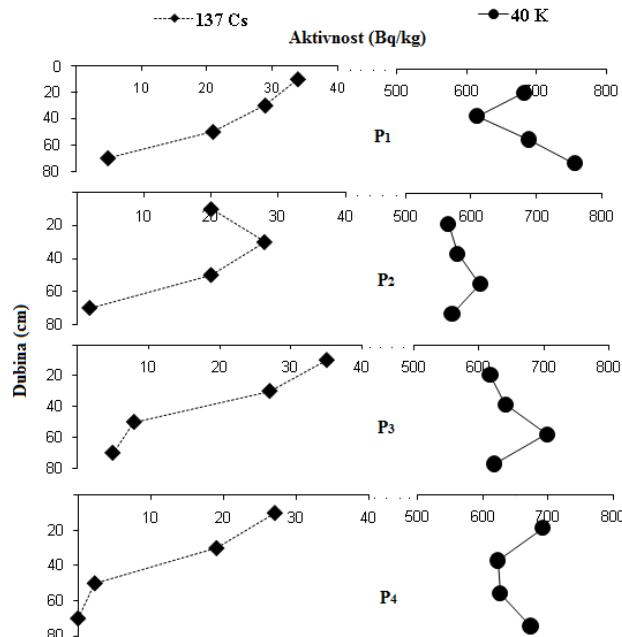
3.2. Distribucija specifične aktivnosti ^{137}Cs

Specifične aktivnosti ^{137}Cs u zemljишtu nalazile su se u intervalu (Bq kg^{-1}): 1,8-35,0 i bile u skladu sa regionalnim nivoima radiocezijuma u zemljishi [13,14]. Sa slike 1 može se videti da koncentracija aktivnosti cezijuma varira na sličan način duž slojeva profila zemljishi **P₁**, **P₂** i **P₃** s obzirom da se kod njih značajan nivo cezijuma našao u dubljim slojevima (40-60 cm). Na osnovu koficijenta varijacije specifične aktivnosti može se pretpostaviti da je uticaj mehaničke obrade postojao duž profila **P₁** i **P₂** i u manjoj meri duž **P₃**, gde su varijacije cezijuma iznosile ~60% i ~80%, respektivno. To se može zaključiti i na osnovu distribucija u **P₁**, **P₂** i **P₃** koja se razlikovala od one tipične za nekultivisana zemljishi u kojima je ^{137}Cs koncentrisan u gornjem sloju dubine 20 cm i koji brzo eksponencijalno opada sa dubinom [14], a odgovarala je profilu **P₄** (uzorkovanom van zone rizosfere) u kome cezijum varira ~100% i postaje manji od minimalne detektibilne koncentracije (MDC) na dubini 60-80 cm (Slika 1). Konačno, distribucija koncentracije aktivnosti radiocezijuma Cs (Bq kg^{-1}) na datoj dubini z (cm) zemljishi mogla je biti opisana jednačinom predloženom za kultivisana zemljishi [5]:

$$Cs = a \cdot (1 - z/H)^b \quad (1)$$

čiji su koeficijenti $a > 1$ i $0 < b < 1$. Smatrujući da ukupna dubina sloja H (cm) u kome cezijum može biti detektovan u ovom zemljишtu iznosi 85 cm, dobijeni koeficijenti fita jednačine (1) iznosili su $a = 38$ i $b = 0,81$ [17]. Jednačina (1) opisuje 76% varijacija cezijuma sa dubinom ($p < 0,05$), i pokazuje da ako obrada zemljишta bude nastavljena distribucija cezijuma postaje više uniformna ($b \rightarrow 0$, $Cs \rightarrow a$).

Može se ovakva raspodela proizvedenog radionuklida ^{137}Cs uporediti sa raspodelom primordijalnog radionuklida ^{40}K , izotopa kalijuma, u zemljишtu veoma rasprostranjenog, ali u različitoj meri u zavisnosti od prirode stena koje su učestvovale u genezi datog zemljишta. Specifične aktivnosti ^{40}K nalazile su se u intervalu $565\text{-}755 \text{ Bq kg}^{-1}$ i bile u skladu sa vrednostima gama-zračenja terestrijalnog porekla u intervalu $140\text{-}850 \text{ Bq kg}^{-1}$ preporučenim za ^{40}K [1]. Sa slike 1 može se videti da je distribucija ^{40}K u profilima zemljишta duž 80 cm dubine konstantna. Specifične aktivnosti među profilima se ne razlikuju značajno ($CV \sim 4\text{-}8\%$) i sve razlike su u okviru eksperimentalne nesigurnosti određivanja aktivnosti ovog radionuklida. Kao i većina kalijuma, ^{40}K je homogeno distribuiran po dubini zemljишta jer pripada mineralnim komponentama zemljишta [16]. Sadašnja distribucija ^{40}K se koristi kao referentna pri analiziranju ponašanja ^{137}Cs u datom zemljisu i može da služi kao aproksimacija buduće raspodele cezijuma nastale posle dovoljno dugog vremena [8]. U ovom trenutku, linearna korelacija između ^{137}Cs i ^{40}K nije mogla biti uspostavljena s obzirom na značajne razlike njihovog porekla u zemljisu (antropogeno odnosno prirodno).

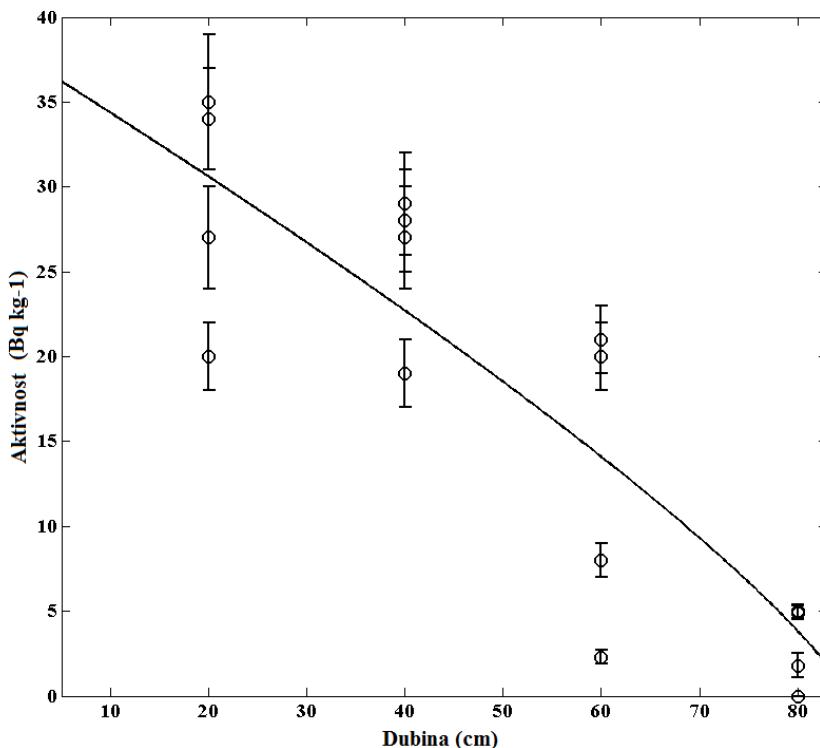


Slika 1. Promene specifičnih aktivnosti proizvedenog ^{137}Cs i prirodnog ^{40}K duž ispitivanih profila zemljisha (P₁, P₂, P₃ i P₄) dubine 0-80 cm sa korakom od 20 cm.

Tabela 1. Особине земљишта, минералски састав глиновите фракције, специфичне активности (Bq kg^{-1}) ^{137}Cs и ^{40}K и приступачни садржаји микроелемената (mg kg^{-1}) Zn, Cu, Mn и Fe испитиваних профила земљишта P₁, P₂, P₃, P₄ у интервалима дубине 20 cm [16-19].

Dubina (cm)	pH _{1:10}	Humus (%)	Sulfat karbonata (%)	Peral (%) (2-0,05 mm)	Peral (%) (0,05-0,002 mm)	Glini (%) (<0,002 mm)	Hiposlojeju vlažnost (%)	Glinovita frakcija zemljista			^{137}Cs (Bq kg ⁻¹)	^{40}K (Bq kg ⁻¹)	Pristupachi sadržaji mikroelemenata				
								Ish (%)	Sulfatni (%)	Varnudni (%)			Zn (mg kg ⁻¹)	Cu (mg kg ⁻¹)	Mn (mg kg ⁻¹)	Fe (mg kg ⁻¹)	
<i>Profil 1 (P₁)</i>																	
0-20	7,47	2,12	0,25	2,18	54,80	43,02	3,21	52	19	10	19	34 ± 3	683 ± 68	1,10	6,80	29,20	23,60
20-40	7,64	1,36	0,29	6,62	51,75	41,63	4,31	48	24	8	20	29 ± 3	615 ± 62	0,90	5,80	15,60	19,80
40-60	7,59	1,19	0,38	6,01	52,37	41,62	3,33	45	29	7	19	21 ± 2	689 ± 79	0,40	3,80	13,20	21,20
60-80	7,57	0,92	0,24	4,54	52,13	43,33	3,60	46	35	5	14	4,9 ± 0,7	755 ± 76	0,30	1,80	13,40	22,50
<i>Profil 2 (P₂)</i>																	
0-20	8,16	1,27	9,04	12,31	52,98	34,71	2,82	47	17	8	28	20 ± 2	565 ± 56	0,50	3,80	16,40	7,20
20-40	8,27	1,1	7,98	12,46	54,39	33,15	2,90	45	24	7	24	28 ± 2	579 ± 58	0,60	5,00	14,80	7,80
40-60	8,32	0,75	9,04	16,12	50,89	33,19	2,90	41	22	9,5	27	20 ± 2	614 ± 61	0,40	3,80	11,60	7,00
60-80	8,29	0,48	10,3	13,19	53,45	33,36	2,92	42	29	7	22	1,8 ± 0,4	571 ± 58	0,20	1,20	9,20	5,80
<i>Profil 3 (P₃)</i>																	
0-20	7,45	1,42	0,17	13,32	52,01	34,67	3,06	48	18	9	25	35 ± 4	617 ± 62	1,20	7,60	34,20	30,10
20-40	7,18	1,06	0,21	14,56	52,36	33,08	3,11	47	24	9	20	27 ± 3	641 ± 64	0,90	6,20	24,20	41,60
40-60	6,85	0,67	0,21	13,89	52,83	33,28	3,28	46	26	7	21	8,0 ± 1,0	705 ± 71	0,50	2,20	17,00	32,10
60-80	7,04	0,46	0,25	12,89	53,80	33,51	3,28	45	30	7	18	5,0 ± 0,6	624 ± 62	0,40	1,80	17,40	28,60
<i>Profil 4 (P₄)</i>																	
0-20	7,71	2,8	1,05	5,33	55,92	38,75	1,38	-	-	-	-	27 ± 3	692 ± 69	1,30	5,40	14,60	25,40
20-40	7,82	1,97	0,98	9,61	52,60	37,79	0,98	-	-	-	-	19 ± 2	623 ± 62	1,20	3,80	11,40	15,40
40-60	7,95	1,64	0,63	5,97	55,71	38,32	1,22	-	-	-	-	2,3 ± 0,4	627 ± 63	0,30	1,20	10,00	13,80
60-80	7,94	1,05	0,46	8,22	56,30	35,48	0,94	-	-	-	-	<1,5	673 ± 67	0,20	1,00	11,60	14,60

*Zbirni procenat udela minerala (pojedinačno zastupljenim < 9%): hlorit, MSS, kaolinit, kalcit, feldspar, kvarc

Slika 2. Raspodela specifične aktivnosti ^{137}Cs sa dubinom zemljišta [17]

3.3. Uticaj osobina zemljišta na distribuciju ^{137}Cs

Uticaj osobina zemljišta na varijacije koncentracije aktivnosti ^{137}Cs po dubini zemljišta analiziran je prostom linearnom regresijom [17]. Sa ^{137}Cs , samo je sadržaj humusa bio u korelaciji slabe jačine ($r = 0,51$; $p < 0,05$) opisujući 27% varijabilnosti cezijuma, ali ta veza je poboljšana ($r = 0,82$; $p < 0,001$) i opisivala 68% varijabilnosti kada je profil \mathbf{P}_4 isključen iz analize. Zatim, rezultat višestruke linearne regresije pokazao je povezanost aktivnosti cezijuma i sa drugim osobinama zemljišta, a to su sadržaj humusa, gline i higroskopske vlage koje su opisivale 81% ponašanja cezijuma (tabela 2). Rezultati ove analize bili su u skladu sa literaturnim podacima na osnovu kojih je poznato da huminske materije u glinovitom zemljištu olakšavaju interakcije između rastvorljivih oblika radiocezijuma i čestica zemljišta što omogućava, iako veoma sporo, kretanje cezijuma ka dubljim slojevima zemljišta [17].

Higroskopska vлага je definisana kao deo ukupne zemljišne vlage koja je čvrsto vezana na površini zemljišnih čestica adhezionim silama bez sposobnosti da isparava pod atmosferskim pritiscima i temperaturama što je i razlog njene nedostupnosti biljkama. Prema rezultatima višestruke regresione analize, u profilima zemljišta $\mathbf{P}_1\text{-}\mathbf{P}_4$, higroskopska vлага igra ulogu u raspodeli cezijuma. Ovo se može objasniti razlikom između sadržaja gline koji je predstavljen ukupnim

procentom zemljšnih čestica manjim od 0,002 mm i samog mineraloškog sastava gline. Karakteristika većine minerala gline je negativni naboj kojim oni privlače molekule vode stvarajući tanke (približno monomolekulske) slojeve vode na svojoj površini (higroskopska vlaga) što je slično njihovoj sposobnosti da privlače $^{137}\text{Cs}^+$ jone i adsorbuju ih na svojoj površini ili ih uključuju u strukturu svoje kristalne rešetke. Prema tome, povezanost cezijuma sa varijacijama sadržaja higroskopske vlage najverovatnije indirektno predstavlja njegovu povezanost sa mineralima gline prisutnim u zemljštu koji opisuju ponašanje cezijuma bolje nego ukupni sadržaj gline [17].

Tabela 2. Rezultati višestruke linearne regresije između izabranih osobina zemljšta, sadržaja minerala gline i specifične aktivnosti ^{137}Cs (R^2 - koeficijent determinacije; nivo značajnosti 95% sa greškom * $p\leq 0,0001$, ** $p\leq 0,01$)

Aktivnost (Bq·kg ⁻¹)	Humus (%)	Gлина (%)	Higroskopska vlaga (%)	Konstanta	R^2 (%)
<i>0 - 80 cm (P₁, P₂, P₃, P₄)</i>					
^{137}Cs	23,3	-1,8	11,6	21,4	81*
<i>0 - 80 cm (P₁, P₂, P₃)</i>					
	Humus (%)	Iilit+Smektit (%)	Vermikulit (%)	Konstanta	R^2 (%)
^{137}Cs	26,1	-0,53	1,6	17,5	80**

3.4. Uticaj mineralnog sastava glinovite frakcije na distribuciju ^{137}Cs

Da bi se ispitala prethodna pretpostavka, analizirano je da li mineralni sastav frakcije gline ima uticaja na koncentracije aktivnosti ^{137}Cs u zemljštu. Rezultati određivanja mineralnog sastava glinovite frakcije zemljšta istog *antrosola* preuzeti su iz literature [18]. U profilima P₁-P₃ glinovita frakcija zemljšta sastojala se od minerala ilita, smektita, vermekulita, MSS (mešovitih silikatnih minerala), hlorita, kaolinita, kvarca i feldsapara dok su profili P₂ i P₃ sadržali i mineral kalcit. Pri tome, sadržaj ilita predstavljao je 41-52% ukupnog sadržaja minerala. Rezultati višestruke linearne regresije potvrdili su ($p<0,003$) da raspodela sadržaja dominantnih minerala ilita, smektita i vermekulita nađenih u zemljštu zajedno sa sadržajem humusa najbolje opisuju raspodelu ^{137}Cs sa dubinom zemljšta (tabela 2).

Hemijska analogija cezijuma sa kalijumom može objasniti ovakav rezultat. Među mineralima gline, oni sa većim sadržajem kalijuma su minerali građe rešetke 2:1 (kao što su ilit, smektit, vermekulit) koji se odlikuju posebnom sposobnošću da adsorbuju i desorbuju kalijum, tj. da vrše razmenu katjona [20]. Usvajanjem kalijuma biljke smanjuju njegovu koncentraciju neposredno u zoni rizosfere što dovodi do proširenja prostora između kristalnih slojeva minerala u kojima su

fiksirani kalijumovi joni i do odavanja kalijuma čime se oslobođaju mesta adsorpcije koja zauzimaju drugi prisutni katjoni kao što je $^{137}\text{Cs}^+$. Pri tome, rezultati naše analize bili su u skladu sa razlikama kapaciteta izmene katjona koji opada upravo u nizu organska materija < vermiculit < ilit \approx smektit [20].

3.5. Korelacija ^{137}Cs i pristupačnih mikroelemenata

Teški metali bitni u ishrani biljaka kao što su cink, bakar, mangan i gvožđe su najvažniji mikroelementi potrebeni u vrlo malim količinama za pravilan rast biljaka. U istraživanju zemljišta pod zasadom breskvi određeni su i pristupačni sadržaji ovih mikroelemenata, a njihove vrednosti dobijene su ekstrakcijom sa rastvorom 0,005 M DTPA. Pristupačni sadržaji Fe, Mn, Cu i Zn su se u zemljишtu nalazili u intervalu (mg kg^{-1}): 5,8-41,6; 9,2-34,2; 1,0-7,6 i 0,2-1,3, respektivno [19]. Uočeno je tada da su obrasci distribucije po dubini profila pristupačnih oblika Fe i Mn bili više konstantni, manjeg koeficijenta varijacije (17% i 28%, respektivno) u odnosu ne pristupačne oblike Cu i Zn čije su varijacije bile približno 60% i koje su se mogle uporediti sa varijacijama ^{137}Cs koje su ukupno iznosile $\sim 80\%$.

Rezultati proste linearne regresione analize su pokazali da je najverovatnije uzajamni afinitet prema organskoj materiji (humusu) zemljишta uticao na takvu njihovu distribuciju. Sadržaj humusa bio je u jakoj korelaciji sa dostupnim Zn ($p<0,001$) i u slabijoj, ali značajnoj korelaciji sa dostupnim Cu ($p<0,05$) i specifičnom aktivnosti ^{137}Cs ($p<0,05$) [19]. Organska materija opisala je veći procenat varijacija dostupnog Zn sa dubinom (56%) u poređenju sa varijacijama dostupnog Cu i radioaktivnog Cs (25%). Sadržaji pristupačnih mikroelemenata Fe i Mn, pokazali su da imaju drugačiju, više uniformnu distribuciju po dubini ispitivanih profila zemljишta koja nije mogla biti opisana varijacijama humusa.

Poznato je da organska materija ima značajan kapacitet adsorpcije elemenata u travovima, a u zavisnosti od rastvorljivosti organskog liganda ona može igrati dvostruku ulogu: može da ih imobiliše formirajući sa njima nerastvorljive komplekse dok, sa druge strane, prisustvo rastvorljivih organskih materija može da dovede do stvaranja jakih kompleksa koji povećavaju rastvorljivost i pokretljivost elemenata u travovima [21]. Prepostavljeno je da je u sloju *antrosol* dubine 0-80 cm, organska materija najverovatnije imala dvojaki uticaj na ispitivane elemente u travovima: sa jedne strane povećavala je pristupačnost Cu i Zn u zemljишtu, a sa druge ograničavala pokretljivost radioaktivnog cezijuma [19].

4. ZAKLJUČAK

U ovom radu prikazan je pregled prvih rezultata merenja specifične aktivnosti radionuklida ^{137}Cs černobiljskog porekla i njegove raspodele sa dubinom kultivisanog zemljишta tipa *antrosol*, 15 godina starog voćnjaka pod zasadom breskvi. Specifične aktivnosti ^{137}Cs su se kretale od 1,8 Bq kg^{-1} do 35,0 Bq kg^{-1} , bitno su varirale sa povećanjem dubine zemljишta i dostigle ukupni koeficijent varijacije od 83%. Dugogodišnja kultivacija (obradivanje) zemljишta bitno je uticala na distribuciju ^{137}Cs s obzirom da je mehanička manipulacija zemljишta prenosila izotop cezijuma u dublje slojeve zemljишta (40-60 cm). Linearna korelacija između antropogenog ^{137}Cs i prirodnog ^{40}K (detektovanog u intervalu 565 Bq kg^{-1} -755

Bq kg^{-1}) nije mogla biti uspostavljena s obzirom na značajne razlike u njihovom poreklu u zemljištu. Rezultati višestruke linearne regresione analize pokazali su da je distribucija ^{137}Cs u zemljištu povezana sa sadržajem humusa, gline i higroskopske vlage. Veza sa higroskopskom vlagom bila je objašnjena indirektnom povezanošću izotopa cezijuma sa mineralnim sastavom gline u zemljištu i potvrđena kada su registrovani minerali ilita, smektita i vermikulita (zbirno u opsegu 72-86%) čije prisustvo u zemljištu karakteriše intenzivna sorpcija i fiksacija cezijuma. Sa druge strane sadržaji pristupačnih mikroelemenata Fe, Mn, Cu i Zn nalazili su se u opsegu (mg kg^{-1}): 5,8-41,6; 9,2-34,2; 1,0-7,6, odnosno 0,2-1,3. Uočeno je da su obrasci distribucije po dubini profila radionuklida ^{137}Cs i pristupačnih oblika Cu i Zn bili veoma slični, a rezultati analize su pokazali da je uzajamni afinitet pomenutih elemenata prema organskoj materiji zemljišta mogao da utiče na takvu njihovu distribuciju.

Zahvalnica

Ovaj rad je podržan od strane Ministarstva za nauku i tehnološki razvoj Srbije pod projektom: III43007.

5. LITERATURA

- [1] United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. Sources and effects of ionizing radiation. Report to the General Assembly, Vol. 1. Annex J Exposures and effects of the Chernobyl accident (NY: UNSCEAR) 2000.
- [2] IAEA. Applicability of Monitored Natural Attenuation at Radioactively Contaminated Sites. Technical Reports Series No. 445, International Atomic Energy Agency, Vienna, Austria (2006)
- [3] C. Tamponeau, A. Martin-Garin, M.-A. Gonze, N. Parekh, R. Vallejo, T. Sauras-Yera, J. Casadesus, C. Plassard, S. Staunton, M. Nordern, R. Avila and G. Shaw. An overview of BORIS: Bioavailability of Radionuclides in Soils. *Journal of Environmental Radioactivity* 99(5) (2008) 820-830.
- [4] M. Hrachowitz, F.J. Maringer and M.H. Gerzabek. Soil redistribution model for undisturbed and cultivated sites based on chernobyl-derived Cesium-137 fallout. *J. Environ. Qual.* 34(4) (2005) 1302-1310.
- [5] M. Du, H. Yang, Q. Chang, K. Minami and T. Hatta. Caesium-137 fallout depth distribution in different soil profiles and significance for estimating soil erosion rate. *Soil. Sci. 3(1)* (1998) 23-33.
- [6] N.A. Beresford. Land contaminated by radioactive materials. *Soil Use and Management* 21 (2006) 468-474.
- [7] R. Fujiyoshi and S. Sawamura. Mesoscale variability of vertical profiles of environmental radionuclides (40K, 226Ra, 210Pb and 137Cs) in temperate forest soils in Germany. *Sci. Total Envir.* 320 (2004) 177-188.
- [8] I. Shcheglov, O.B. Tsvetnova and A.L. Klyashtorin. Biogeochemical migration of technogenic radionuclides in forest ecosystems: by the materials of a multilayer study in the areas severely contaminated due to the Chernobyl incident. Publisher: Nauka, Moscow, (2001)
- [9] S. Golmakani, M.M. Vahabi and H. Tahereh. Factors affecting the transfer of radionuclides from the environment to plants. *Radiat. Prot. Dosim.* 130 (2008) 368-375.
- [10] N. Kruyts and B. Delvaux. Soil organic horizons as a major source for radiocesium biorecycling in forest ecosystems. *J. Environ. Radioactiv.* 58 (2002) 175-179.

- [11] M. Larsson. The influence of soil properties on the transfer of ^{137}Cs from soil to plant: results from a field study 21 years after the Chernobyl accident. MSc Thesis, Swedish University of Agricultural Science, (2008)
- [12] H. Tsukada, A. Takeda, S.I. Hisamatsu, J. Inaba. Concentration and specific activity of fallout ^{137}Cs in extracted and particle-size fractions of cultivated soils. *Journal of environmental radioactivity*. 99(6) (2008) 875-81.
- [13] D. Popović, D. Todorović, V.S. Jokić, J. Nikolić, J. Ajtić. Contents of radionuclides in soils in Serbia: Dose calculations and environmental risk assessment. *Advances in Environmental Research* 6 (2009) 91-134.
- [14] S.D. Dragovic, B. Gajic, R.M. Dragovic, Lj. Jankovic-Mandic, L. Slavkovic- Beskoski, N.L. Mihailovic, M. Momcilovic, M. Cujic. Edaphic factors affecting the vertical distribution of radionuclides in the different soil types of Belgrade, Serbia. *J. Environ. Monit.* 14 (2012) 127-137.
- [15] IUSS WORKING GROUP WRB. World Reference Base for Soil Resources. World Soil Resources Reports 103. Rome: FAO, (2006)
- [16] I. Vukašinović, A. Đorđević, M.B. Rajković, D. Todorović and V.B.Pavlović. Distribution of natural radionuclides in anthrosol-type soil. *Turk. J. Agric. For.* 34(6) (2010) 539-546.
- [17] I. Vukašinović, D. Todorović, A. Đorđević, M.B. Rajković and V.B. Pavlović. Depth Distribution of ^{137}Cs in anthrosol from the experimental field "Radmilovac" near Belgrade, Serbia. *Arh. Hig. Rada Toksikol.* 64(3) (2013) 425-430.
- [18] Z.P. Tomić, A.R. Đorđević, M.B. Rajković, I. Vukašinović, N.S. Nikolić, N.S., V.B. Pavlović, C.M. Lačnjevac. Impact of Mineral Composition on the Distribution of Natural Radionuclides in Rigosol-Anthrosol. *Sensors and Transducers* 125 (2011) 115-130.
- [19] I.Ž. Vukašinović, D.J. Todorović, A.R. Đorđević, M.B. Rajković and V.B. Pavlović. Depth Distribution of Available Micronutrients in Cultivated Soil. *J. Agric. Sci.* 60(2) (2015) 177-187.
- [20] R. Kastori, Ž. Ilin, I. Maksimović, M. Putnik-Delić. Kalijum u ishrani biljaka. Poljoprivredni fakultet Novi Sad, Univerzitet u Novom Sadu, (2013)
- [21] B.J. Alloway, B.J. Heavy metals in soils: Trace metals and metalloids in soils and their bioavailability. In: Alloway, B.J. (Ed.), Environmental pollution 22. Springer, Netherlands, (2013)

DEPTH DISTRIBUTION OF ^{137}CS IN CULTIVATED SOIL

Ivana Ž. VUKAŠINOVIĆ¹, Miloš B. RAJKOVIĆ¹ and Dragana J. TODOROVIĆ²

¹*University of Belgrade, Faculty of Agriculture, Belgrade-Zemun, Serbia*

²*Laboratory of Radiation and Environmental Protection, Vinča Institute of Nuclear Sciences, Belgrade, Serbia*

Due to the fallout followed by Chernobyl accident in 1986 anthropogenic radionuclide ^{137}Cs was deposited in the soil. Given long half-life of ^{137}Cs (30.05 years), cultivated soils in particular are subject of radiological protection because the question is whether this radionuclide would be retained in the surface layers of the soil, adopted by plants or transferred to the deeper soil layers. This paper presents an overview of the results of ^{137}Cs specific activity measurements by gamma-spectrometry method in cultivated anthrosol soil of a 15-year old peach tree plantation at the experimental field "Radmilovac". Preparing the land for planting peach trees deep ploughing was conducted followed by 12-year-long cultivation, and soil sampling was carried out three years after the termination of all agricultural treatments. Overview of the analyzes of the long-term cultivation impact on ^{137}Cs redistribution in the soil along the 0-80 cm profile depth is presented. Linear and multiple regression analysis was applied to assess to what extent the levels of cesium radioisotopes are associated with *a*) levels of potassium isotope ^{40}K detected in the soil; *b*) the basic features that characterize the soil (pH, humus content, carbonate content, grain size distribution, moisture content of hygroscopic); *c*) mineral composition of the clay fraction of soil and *d*) available DTPA-extracted microelements Zn, Cu, Mn and Fe. Patterns of ^{137}Cs distribution with depth indicated that radiocesium was mechanically transferred from the surface to the lower layers of soil during the cultivation. The results of the statistical analysis showed that on radiocesium variations with depth a major impact had the contents of humus and the main minerals of the clay fraction of soil – vermiculite, illite, and smectite.

СИР - Каталогизација у публикацији –
Народна библиотека Србије, Београд

614.876(082)
621.311.25(477.41)(082)
504.5:539.16(497.11)(082)

ЧЕРНОБИЉ : 30 година после : монографија / уредник
Гордана Пантелић. - Београд : Институт за нуклеарне науке
"Винча", Лабораторија за заштиту од зрачења и заштиту
животне средине "Заштита" : Друштво за заштиту од зрачења
Србије и Црне Горе, 2016 (Београд : Институт за нуклеарне
науке "Винча"). - 286 стр. : илустр. ; 25 cm

Тираж 150. - Библиографија уз сваки рад. - Summaries.

ISBN 978-86-7306-138-2 ("Винча")

1. Пантелић, Гордана [уредник]
- a) Нуклеарна електрана "Чернобиљ" - Хаварија - Зборници
- b) Животна средина - Загађење радиоактивним материјама
- Србија - Зборници c) Несреће у нуклеарним електранама
- Последице - Зборници d) Јонизујуће зрачење - Штетно
дејство - Србија - Зборници

COBISS.SR-ID 226685452