

УДК 551.510.412

## Атмосферный перенос искусственных радионуклидов в Дальневосточном регионе Азии после аварии на АЭС «Фукусима-1»

А.С. Нерода, В.Ф. Мишуков, В.А. Горячев\*

*Тихоокеанский океанологический институт им. В.И. Ильичева ДВО РАН  
680041, г. Владивосток, ул. Балтийская, 43*

Поступила в редакцию 19.01.2012 г.

В результате гамма-спектрометрического анализа проб атмосферных аэрозолей, отобранных с 11 марта по 17 июня 2011 г. в районе г. Владивостока, были зарегистрированы искусственные радионуклиды йод-131 ( $^{131}\text{I}$ ), цезий-134 ( $^{134}\text{Cs}$ ) и цезий-137 ( $^{137}\text{Cs}$ ), а также природные изотопы бериллия-7 ( $^7\text{Be}$ ) и калия-40 ( $^{40}\text{K}$ ). Искусственные радионуклиды были также обнаружены в атмосферных мокрых выпадениях. Изменчивость гамма-активности природных изотопов  $^7\text{Be}$  и  $^{40}\text{K}$  не превышает одного порядка в течение всего периода отбора проб. Синоптический анализ обратных траекторий движения воздушных масс показал, что радиоактивное облако пришло из районов Сибири и северо-восточной части Китая.

*Ключевые слова:* искусственные радионуклиды, авария АЭС «Фукусима-1», атмосфера, перенос; artificial radioactive isotopes, Fukushima reactor accident, atmosphere, transport.

### Введение

С 1989 г. в Тихоокеанском океанологическом институте им. В.И. Ильичева ДВО РАН изучался химический состав аэрозолей приземного и приводного слоя атмосферы, сухих и мокрых выпадений в различных районах зоны перехода от Азиатского континента к Тихому океану [1–5]. К основным результатам исследований можно отнести влияние явления «Коза» на перенос природного аэрозоля из центральных районов Азиатского континента в прибрежные и морские районы в зимне-весенний период, на который накладывается антропогенное воздействие, вызывающее повышение концентраций в составе аэрозоля полициклических ароматических углеводородов и тяжелых металлов, входящих в состав летучей золы угля.

Цель настоящей работы заключалась в изучении возможного влияния аварии на атомной станции «Фукусима-1» на состав аэрозолей в регионе Японского моря и возможных механизмов трансграничного переноса радионуклидов в атмосфере.

Природные радионуклиды терригенного ( $^{40}\text{K}$ ) и космогенного ( $^7\text{Be}$ ) происхождения, как правило, постоянно присутствуют в атмосферном воздухе в составе аэрозолей и поэтому не вызывают такого интереса, как искусственные радионуклиды, например цезий-134 ( $^{134}\text{Cs}$ ), цезий-137 ( $^{137}\text{Cs}$ ) и йод-131 ( $^{131}\text{I}$ ), которые долгое время могут находиться в окружаю-

щей среде. Так, после аварии на Чернобыльской АЭС в окружающей среде долгое время присутствовал  $^{137}\text{Cs}$ . В момент аварии концентрация  $^{137}\text{Cs}$  в воздухе достигала  $2 \text{ Бк}/\text{м}^3$  (5–6 мая 1986 г.) и его выпадения на поверхность земли составляли  $24 \text{ кБк}/\text{м}^2$  в районе Салоник Северной Греции [7].

По данным Национального института здоровья (США) (National Institute of Health), два радионуклида, попадающие в окружающую среду в результате аварий на АЭС, создают наибольший риск заболеваний раком – это  $^{131}\text{I}$  и  $^{137}\text{Cs}$  [6].

Следует отметить, что большая часть искусственных радионуклидов попала в атмосферу в результате испытаний ядерного оружия, проводимых США и СССР в 1950-х и начале 1960-х гг., и в меньшей степени от испытаний, проведенных Соединенным Королевством, Францией и Китаем [8].

Последний крупный выброс продуктов деления искусственных радионуклидов произошел у восточного побережья Японии. Так, 11 марта 2011 г. в 14:46 по местному времени произошло подводное землетрясение у восточного побережья о. Хонсю (Япония), которое вызвало сильное цунами, что явилось причиной радиационной аварии на АЭС «Фукусима-1». В результате аварии в атмосферу были выброшены радиоактивные элементы, включая йод-131 и цезий-134 и -137.

### Методы отбора и анализа проб

Отбор проб аэрозоля в ходе всех исследований проводился с помощью японской установки (фирма

\* Андрей Сергеевич Нерода (aneroda@poi.dvo.ru); Василий Федорович Мишуков; Владимир Алексеевич Горячев.

Kimoto, Япония) по методике, апробированной в Международной программе SEAREX [9]. Атмосферные аэрозоли отбирались на кремний-волоконистые мембранные фильтры Pallflex. Объем прокачанного воздуха составлял в среднем  $3500 \text{ м}^3$  за 7 сут непрерывного отбора. Фильтры до и после прокачки доводились до постоянной массы в эксикаторе и затем взвешивались. По разности массы при известном объеме прокачанного воздуха была определена концентрация пыли в атмосфере.

Отбор проб начался 11 марта 2011 г. в 12:18 по местному времени в пригороде г. Владивостока на ст. Чайка. Было отобрано 14 проб. Мокрые выпадения отбирались с 3 по 17 мая 2011 г., после чего пробы дождей фильтровались и осадок высушивался до постоянной массы в эксикаторе. Анализ радионуклидов проводился в лаборатории ядерной океанологии ТОИ ДВО РАН на гамма-спектрометре с детектором из сверхчистого германия GEM150 с цифровым многоканальным анализатором DSPEC jr 2.0.

Для анализа переноса воздушными массами аэрозольного вещества строились обратные 7-суточные траектории движения на основе модели NOAA HYSPLIT ([10] <http://www.ready.noaa.gov/ready/hysplit4.html>).

## Результаты анализа и обсуждение

На рис. 1 представлены результаты гамма-спектрометрического анализа проб атмосферных аэрозолей. Спектры обрабатывались с использованием ПО Gamma Vision-32 (ORTEC).

Мы установили, что повышение концентрации атмосферных аэрозолей с 25 марта по 15 апреля от  $121$  до  $322 \text{ мкг/м}^3$  сопровождалось ростом концентрации  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{131}\text{I}$ . В период с 18 марта по 8 апреля 2011 г. концентрации  $^{134}\text{Cs}$  и  $^{137}\text{Cs}$  увеличиваются на 2 порядка: до  $\sim 100 \text{ мБк/м}^3$  относительно минимально детектируемой концентрации (МДК), концентрация  $^{131}\text{I}$  также резко повышается: от  $(46 \pm 28)$  до  $(1047 \pm 42) \text{ мБк/м}^3$  (МДК: 1,5–3,5, 1–2,5 и 2,5–5  $\text{мБк/м}^3$  для  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{134}\text{Cs}$  и  $^{131}\text{I}$  соответственно). Далее с 8 по 29 апреля 2011 г. идет плавное понижение концентраций  $^{131}\text{I}$  при повторном повышении  $[(16 \pm 7) \text{ мБк/м}^3]$  с 20 по 27 мая 2011 г. С 15 апреля 2011 г. понижаются концентрации  $^{134}\text{Cs}$  и  $^{137}\text{Cs}$  при повторном повышении с 27 мая по 3 июня 2011 г. до  $(18 \pm 5) \text{ мБк/м}^3$ . Изменчивость концентраций природных изотопов, таких как  $^7\text{Be}$ ,  $^{40}\text{K}$ , не превышает одного порядка в течение всего периода отбора проб.

Радионуклиды  $^{131}\text{I}$  и  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ , вероятно, адсорбировались на твердых частицах субмикронного размера в момент взрыва и были перенесены под воздействием сильных западных ветров от Японии в Тихий океан. Вскоре радиоактивные частицы достигли берегов США и Канады, а затем пересекли Атлантический океан и дошли до Европы.

Наши прошлые исследования показывают, что на формирование атмосферных аэрозолей около Владивостока в значительной степени влияет глобальный атмосферный перенос, который наблюдается в зимне-весенний период. В эти периоды происходит перенос атмосферных аэрозолей с запада и центральных районов Азиатского континента. Этот глобальный

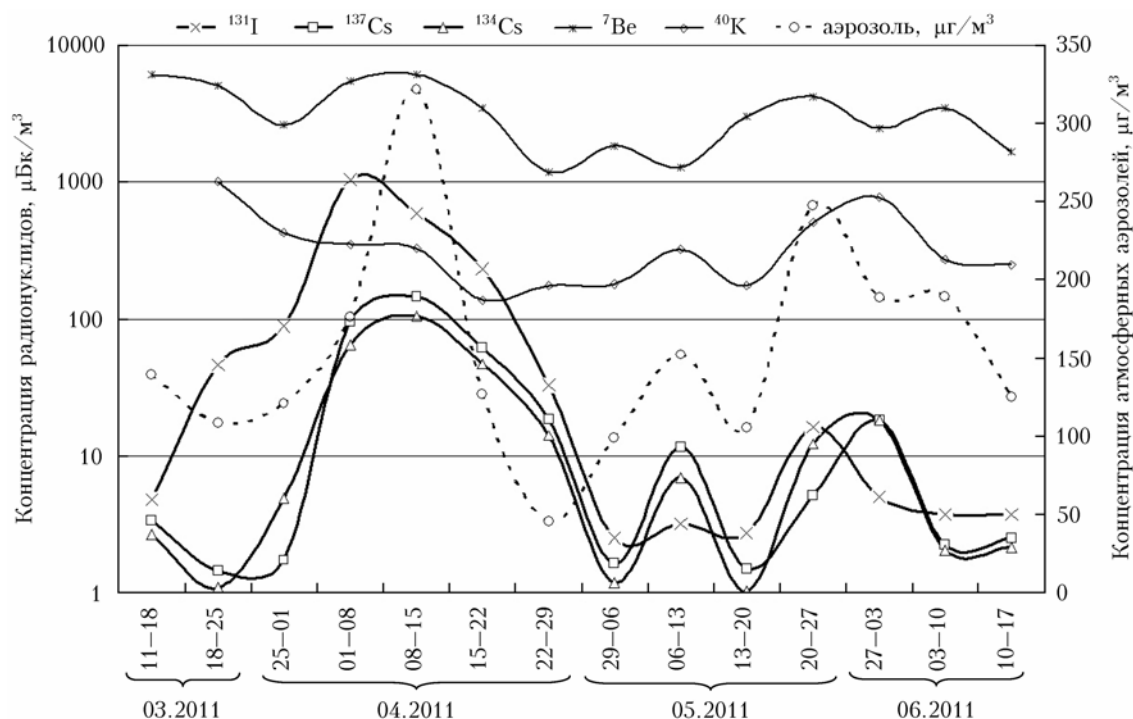


Рис. 1. Изменение во времени концентрации природных и антропогенных изотопов в атмосфере над г. Владивостоком ( $43^{\circ}20'14,04''$  с.ш. и  $131^{\circ}9'27,82''$  в.д.) (левая ось) и концентрации атмосферных аэрозолей (правая ось)

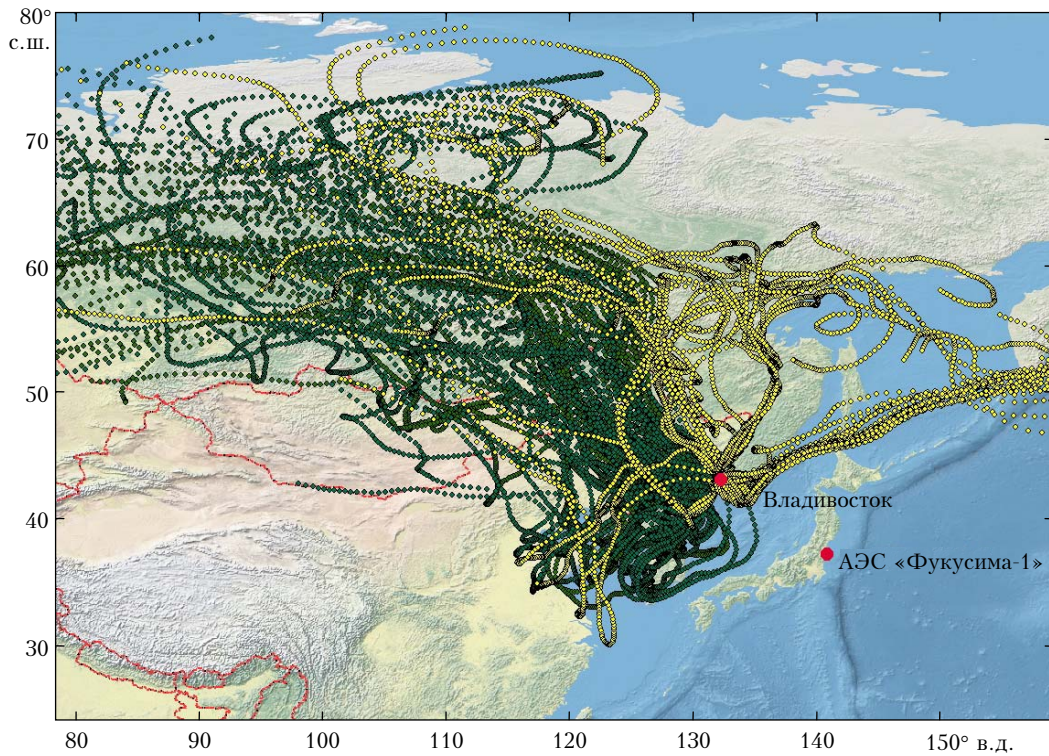


Рис. 2. Обратные траектории движения воздушных масс к пункту отбора проб в периоды максимальных значений гамма-активности  $^{134}\text{Cs}$  и  $^{137}\text{Cs}$  (с 1 по 22 апреля 2011 г.). Темными точками обозначены траектории с 1 по 15 апреля 2011 г., светлыми – с 15 по 22 апреля 2011 г.

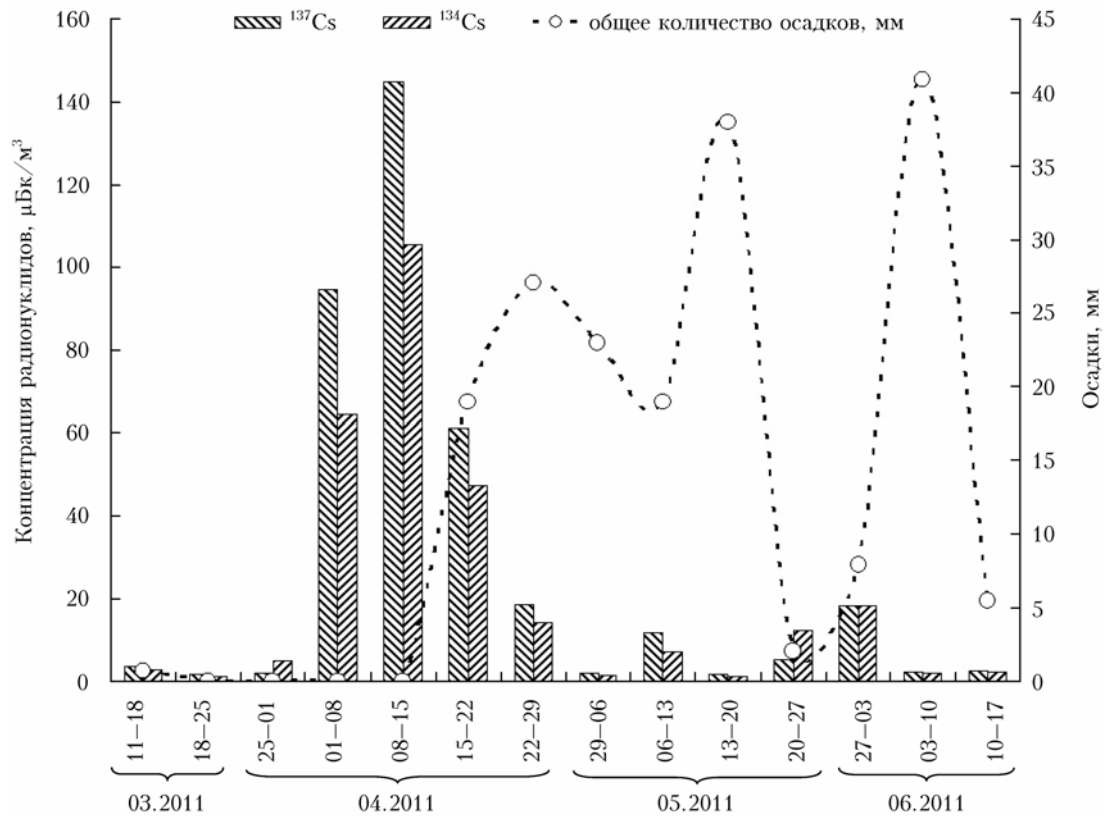


Рис. 3. Гамма-активность  $^{134}\text{Cs}$  и  $^{137}\text{Cs}$  в атмосферных аэрозолях (левая ось) и общее количество осадков (правая ось)

атмосферный перенос вносит вклад макроэлементов от природных источников (глины, земной коры и почвы).

В результате корреляционного анализа между концентрациями радионуклидов и концентрацией атмосферных аэрозолей для первых 6 проб было выделено 2 группы связей: первая — аэрозоль —  $^{134}\text{Cs}$  —  $^{137}\text{Cs}$  —  $^{131}\text{I}$  с коэффициентом корреляции от 0,7 до 0,9; вторая группа объединила в себе радионуклиды природного происхождения.

На рис. 2 представлены 7-суточные обратные траектории движения воздушных масс к месту отбора проб в период максимальных концентраций  $^{134}\text{Cs}$  и  $^{137}\text{Cs}$ . Расчет обратных траекторий переноса воздушных масс с 1 по 15 апреля показал, что атмосферные аэрозоли пришли к месту отбора проб из Сибири через северо-восточную часть КНР. С 15 по 22 апреля воздушные массы двигались от юго-западных берегов Аляски через Берингово и Охотское моря. После этого периода гамма-активность  $^{134}\text{Cs}$  и  $^{137}\text{Cs}$  начала снижаться. После 22 апреля 2011 г. снижение концентрации  $^{134}\text{Cs}$  и  $^{137}\text{Cs}$  в составе атмосферных аэрозолей обусловлено вымыванием их из атмосферы мокрыми выпадениями.

За период с 25 марта по 15 апреля 2011 г. при общем количестве осадков от 0 до 0,1 мм средние значения гамма-активности  $^{134}\text{Cs}$  и  $^{137}\text{Cs}$  в аэрозолях составили 58 и 80  $\mu\text{Бк}/\text{м}^3$  соответственно. За период с 15 апреля по 20 мая 2011 г. при общем количестве осадков 25,2 мм средние значения гамма-активности  $^{134}\text{Cs}$  и  $^{137}\text{Cs}$  в аэрозолях составили 14 и 18  $\mu\text{Бк}/\text{м}^3$  соответственно.

Результаты анализа проб дождей и атмосферных аэрозолей позволили сделать вывод о том, что атмосферные осадки играют важную роль в процессе самоочищения атмосферы от радионуклидов (рис. 3).

В период с 6 по 20 мая 2011 г. в атмосферных аэрозолях средненедельная гамма-активность  $^{137}\text{Cs}$  (7  $\mu\text{Бк}/\text{м}^3$ ) выше, чем  $^{134}\text{Cs}$  (4  $\mu\text{Бк}/\text{м}^3$ ), и в нерастворимой части мокрых выпадений с 3 по 17 мая 2011 г. гамма-активность  $^{137}\text{Cs}$  [(92 ± 34) мБк/г] выше, чем  $^{134}\text{Cs}$  [(68 ± 16) мБк/г]. Увеличение общего количества атмосферных осадков сопровождается снижением гамма-активности  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{134}\text{Cs}$  в составе атмосферных аэрозолей.

## Заключение

В результате гамма-спектрометрического анализа проб атмосферных аэрозолей, отобранных с 11 марта по 17 июня 2011 г., над г. Владивостоком были зарегистрированы искусственные радионуклиды  $^{131}\text{I}$ ,  $^{134}\text{Cs}$  и  $^{137}\text{Cs}$ , а также природные изотопы  $^7\text{Be}$ ,  $^{40}\text{K}$ . Искусственные радионуклиды были также обнаружены в атмосферных мокрых выпадениях.

Мы установили, что повышение концентрации атмосферных аэрозолей с 25 марта по 15 апреля от 121 до 322  $\text{мкг}/\text{м}^3$  сопровождается ростом концентрации радионуклидов  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{131}\text{I}$ . В период с 18 марта по 15 апреля 2011 г. гамма-активность  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{134}\text{Cs}$

в атмосферных аэрозолях увеличилась в 100 раз по сравнению с МДК. Изменчивость гамма-активности природных изотопов, таких как  $^7\text{Be}$ ,  $^{40}\text{K}$ , не превышает одного порядка в течение всего периода отбора проб.

Установлена значимая корреляционная связь между концентрацией атмосферных аэрозолей и гамма-активностью  $^{131}\text{I}$ ,  $^{134}\text{Cs}$  и  $^{137}\text{Cs}$ .

Синоптический анализ обратных траекторий движения воздушных масс показал, что радиоактивное облако пришло из Европы и прошло через Сибирь и северо-восточную часть КНР. Относительно высокие концентрации искусственных радионуклидов оставались в воздухе до 22 апреля 2011 г. Метеорологические данные, собранные в момент отбора проб, позволили сделать вывод о том, что общее количество атмосферных осадков способствует активному вымыванию из атмосферы цезия-134 и цезия-137. В атмосферных аэрозолях максимальные концентрации искусственных радионуклидов  $^{134}\text{Cs}$  (105  $\mu\text{Бк}/\text{м}^3$ ),  $^{137}\text{Cs}$  (145  $\mu\text{Бк}/\text{м}^3$ ),  $^{131}\text{I}$  (1047  $\mu\text{Бк}/\text{м}^3$ ) за весь период отбора проб не превысили допустимой объемной активности  $^{134}\text{Cs}$  (19 Бк/м<sup>3</sup>),  $^{137}\text{Cs}$  (27 Бк/м<sup>3</sup>) и  $^{131}\text{I}$  (7,3 Бк/м<sup>3</sup>) в воздухе [11].

Работа выполнена при частичной финансовой поддержке российско-японского гранта РФФИ № 12-05-92104 ЯФ\_а и интеграционного гранта ДВО РАН № 12-II-0-07-006.

1. Mishukov V.F., Medvedev A.N., Slinko E.N. Study of aerosol contents at Russia Far East // J. Ecotechn. Res. 2001. V. 7, N 1. P. 61–70.
2. Mishukov V., Hayakawa K., Tabata M. Some results of joint investigations of aerosols element concentrations at region of the Sea of Japan // J. Ecotechn. Res. 2001. V. 7, N 2. P. 124–132.
3. Mishukov V.F., Medvedev A.N., Neroda A.S. Sources of Chemical Elements in the Air over Vladivostok // Pacific Oceanogr. 2004. V. 2, N 1–2. P. 109–116.
4. Tang N., Hattori T., Taga R., Igarashi K., Yang X., Toriba A., Kizu R., Hayakawa K., Tamura K., Kakimoto H., Mishukov V.F. Polycyclic aromatic hydrocarbons and nitropolycyclic aromatic hydrocarbons in urban air particulates and their relationship to emission sources in the Pan-Japan Sea countries // Atmos. Environ. 2005. V. 39, N 32. P. 5817–5826.
5. Mishukov V.F., Neroda A.S., Belan T.V., Kondrat'ev I.I., Semykina G.I., Kachur A.N. National Report of the Russian Federation on Atmospheric Deposition of Contaminants into the Marine and Coastal Environment in NOWPAP Region / National Reports on Atmospheric Deposition of Contaminants into the Marine and Coastal Environment in NOWPAP Region. POMRAC, Vladivostok, Russian Federation / Ред. А.Н. Качур, С.И. Коженкова. Владивосток: Изд-во Дальневост. ун-та, 2006. С. 165–208.
6. National Institute of Health – Accidents at Nuclear Power Plants and Cancer Risk.
7. Papastefanou C., Manolopoulou M., Charalambous S. Radiation measurements and radioecological aspects of fallout from the Chernobyl reactor accident // J. Environ. Radioact. 1988. V. 7, iss. 1. P. 49–64.
8. Beck H.L. Monitoring Nuclear Fallout // Radioactive Air Sampling Methods / Ed. by Mark D. Hoover. CRC Press LLC. 2011. Chapter 18. P. 369–387.

9. Uematsu M., Duce R.A., Prospero J.M., Chen L., Merrill J.T., McDonald R.L. Transport of mineral aerosol from Asia over the North Pacific Ocean // J. Geophys. Res. C. 1983. V. 88, iss. 9. P. 5343–5352.
10. Draxler R.R., Hess G.D. Description of the HYSPLIT\_4 modeling system. 1997. NOAA Tech. Memo. ERL ARL-224, NOAA Air Resources Laboratory, Silver Spring, MD. 24 p. [http://www.arl.noaa.gov/HYSPLIT\\_pubs.php](http://www.arl.noaa.gov/HYSPLIT_pubs.php)
11. *Нормы радиационной безопасности (НРБ-99): Гигиенические нормативы.* М.: Центр санитарно-эпидемиологического нормирования, гигиенической сертификации и экспертизы Минздрава России, 1999. 116 с.

**A.S. Neroda, V.F. Mishukov, V.A. Goryachev. Atmospheric transport of artificial radio nuclides at Far Eastern region of Asia after the Fokusima reactor accident.**

Artificial radio nuclides, such as iodine-131 ( $^{131}\text{I}$ ), cesium-134 ( $^{134}\text{Cs}$ ) and cesium-137 ( $^{137}\text{Cs}$ ), as well as natural isotopes of beryllium-7 ( $^7\text{Be}$ ) and potassium-40 ( $^{40}\text{K}$ ) have been registered in atmospheric aerosols over Vladivostok selected from 11 March to June 17, 2011. Artificial radio nuclides were also discovered in atmospheric wet depositions. Variability of gamma activity of natural isotopes of  $^7\text{Be}$  and  $^{40}\text{K}$  is not greater than one order of magnitude throughout the sampling period. Synoptic analysis of back trajectories movement of air masses showed that the radioactive cloud came from the regions of Siberia and North-Eastern part of China.