

# Pluton w środowisku naturalnym w Polsce

J.W.Mietelski

*Zakład Fizykochemii Jądrowej IFJ PAN*

*Radzikowskiego 152, 31-342 Kraków*

[jerzy.mietelski@ifj.edu.pl](mailto:jerzy.mietelski@ifj.edu.pl)

# PLAN

1. Właściwości Pu
2. Źródła Pu w środowisku
3. Metody analityczne
4. Gleby, ściółki, torfy (przykład TPN)
5. Powietrze i opad
6. Grzyby, rośliny, owady
7. Kości zwierząt
8. Kości ludzkie – wstępne wyniki

# Pluton

- Pluton (Pu) - transuranowiec grupa III b UO
- $Z=94$ ,  $A=244$  (najtrwalszy izotop). nie posiada stabilnego izotopu.
- sześć odmian alotropowych metalicznego Pu
- Gęstość **19.84** g/cm<sup>3</sup> w 25° C dla podstawowej odmiany alfa.
- temperatura topnienia **639.5° C**, wrzenia **3235° C (metal, - odm. alfa)**
- Pu ma największą z metali oporność elektryczną (- stopy nadprzewodzące....)

# Izotopy Pu

| A   | T <sub>1/2</sub>         | Typ i średnia energia dla beta energia max. [MeV]. |
|-----|--------------------------|----------------------------------------------------|
| 232 | 34 m                     | $\alpha$ (6.60), $\epsilon$ ;                      |
| 233 | 20.9 m                   | $\epsilon$ ; $\gamma$ ( 0.235,0.536)               |
| 234 | 8.8h                     | $\epsilon$ , $\alpha$ (6.20);                      |
| 235 | 25.3 m                   | $\epsilon$ , $\alpha$ (5.85); $\gamma$ (49,756)    |
| 236 | 2.85 lat                 | $\alpha$ (5.77)                                    |
| 237 | 45.3 d                   | $\epsilon$ ; $\gamma$ (0.060)                      |
| 238 | 87.7 lat                 | $\alpha$ (5.50)                                    |
| 239 | 24100 lat                | $\alpha$ (5.15)                                    |
| 240 | 6540 lat                 | $\alpha$ (5.15)                                    |
| 241 | 14.4 lat                 | $\beta^-$ ( 0.021), $\alpha$ (4.89)*               |
| 242 | 376 000 lat              | $\alpha$ (4.90)                                    |
| 243 | 4.95 h                   | $\beta^-$ ( 0.6); $\gamma$ (0.084)                 |
| 244 | 82.6·10 <sup>6</sup> lat | $\alpha$ (4.60)                                    |
| 245 | 10.5 h                   | $\beta^-$ ( 0.9); $\gamma$ (0.327, 0.560)          |
| 246 | 10.9 d                   | $\beta^-$ ( 0.2); $\gamma$ (0.044,0.224)           |

\* - prawdopodobieństwo emisji na poziomie 0.001;

Oznaczenia:  $\alpha, \beta, \gamma$  - odpowiednie rodzaje promieniowania,  $\epsilon$  - wychwyt elektronu

# Granica rozpuszczalności dla różnych stopni utlenienia

| Stopień utlenienia | Granica pH (dla rozpuszcza się) | mniej. |
|--------------------|---------------------------------|--------|
| Pu (III)           | 5                               |        |
| <b>Pu (IV)</b>     | <b>~1</b>                       |        |
| Pu (V)             | 9                               |        |
| Pu (VI)            | 7                               |        |

# Ale dodatkowo...

Jony  $\text{Pu}^{+4}$  są kompleksowane przez kwasy humusowe i fulwowe.

Kompleksy z kwasem humusowym tworzą polimery  $\text{PuO}_2$  adsorbowane na powierzchniach makropolimerów tych kwasów

Możliwa mobilność Pu w środowiskach zasadowych!

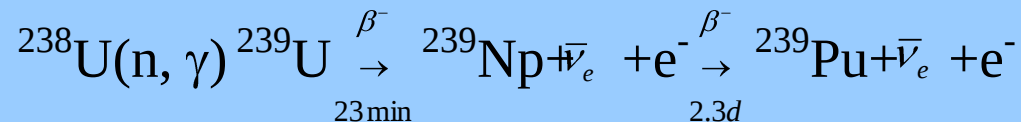
W wodach gruntowych Pu tworzy roztwory koloidowe, najczęściej w postaci Pu (IV), potem Pu (VI, III i V)

# Masy i aktywności Pu

| Izotop            | Aktywność 1 g | Masa 1 Bq          |
|-------------------|---------------|--------------------|
| $^{238}\text{Pu}$ | 675 GBq       | 1.48 pg            |
| $^{239}\text{Pu}$ | 2.46 GBq      | 0.407 ng           |
| $^{240}\text{Pu}$ | 9.05 GBq      | 0.110 ng           |
| $^{241}\text{Pu}$ | 4.11 TBq      | 0.243 pg           |
| $^{242}\text{Pu}$ | 154 MBq       | 6.49 ng            |
| $^{244}\text{Pu}$ | 716 kBq       | 1.40 $\mu\text{g}$ |

# Naturalny Pu

**<sup>239</sup>Pu** powstaje naturalnie (od 4 do 30 kg/rok)



Najwyższe stężenia nat. <sup>239</sup>Pu, ( $\sim 10^{-11} \div 10^{-13}$  g/g) są w rudach uranowych

średnia w skorupie ziemskiej  $2 \times 10^{-14}$  g/kg

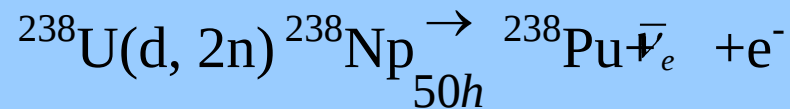
W złożach rud ziem rzadkich jest <sup>244</sup>Pu - pochodzenie nie jest jasne! (ok. 10 g w skali całego globu pozostały do dziś od powstania Ziemi).

Może pochodzić z opadu materii kosmicznej!

# Produkcja Pu

1940 r w Berkeley (G.Seaborg)

$\beta^-$



1941 -  $^{239}\text{Pu}$ ,

1944 - produkcja na skalę przemysłową

Zastosowanie: ładunki jądrowe (masa krytyczna dla  $^{239}\text{Pu}$  wynosi ok. 250–300 g )

$^{238}\text{Pu}$  w czujnikach dymów, zasilacze (SNAP)

**Wytworzono ok. 1200 t plutonu (dziś 20 t/rok)**

# Zasoby Pu

## **Militarne zapasy wydzielonego Pu:**

|                    |                  |
|--------------------|------------------|
| Federacja Rosyjska | 130 t            |
| USA                | 89 t             |
| Francja            | 6 t              |
| Wielka Brytania    | 3 t              |
| ChRL               | 2.5 t            |
| Izrael             | od 350 do 700 kg |
| Indie              | 360 kg           |

Ponadto: Argentyna, Brazylia, KRLD i Pakistan

# Wchłanianie Pu

Silnie toksyczny ciężki metal

Wysoce radiotoksyczny

Główną drogą narażenia inhalacja aerozoli

**inhalacja aerozoli o średnicach w zakresie  $\phi=0.5-5 \mu\text{m}$**

Przy zjadaniu **w formie tlenku 99.98%** pozostaje w odchodach

W innych formach (np. cytrynian) znacznie łatwiej przyswajalny

# Metabolizm Pu u człowieka

Wg ICRP-19 (1972) 25% inhalowanego tlenku Pu gromadzi się w płucach, z czego 60% wydalanych jest z czasem biologicznego połowicznego zaniku  $T_{b1/2}=500$  dni, 19.5% zainhalowanego Pu dostaje się do krwioobiegu, z czego: 45% gromadziłoby się w kościach z czasem biologicznego półzaniku  $T_{b1/2}=70$  lat, 45% znajdowałoby się w wątrobie ( $T_{b1/2}=35$  lat), a pozostałe 10% dostawałoby się przede wszystkim do śledziony.

Wg ICRP 67 (1993) 30% Pu gromadzi się w wątrobie, 50% kościach a pozostałe 20% jest rozproszonych w pozostałych organach lub jest szybko wydalanych. Czasy biologicznego połowicznego zaniku 20 lat dla wątroby i 50 lat dla szkieletu.

Z badań przeprowadzonych w 2000 na ochotnikach, za pomocą  $^{237}\text{Pu}$  i liczników całego ciała oraz ultra-czystego  $^{244}\text{Pu}$  (AMS) wynika, że w wątrobie gromadzi się średnio aż 73% wchłoniętego do organizmu Pu,

Proces ten ma charakter powolnego nagromadzania, osiągając stan nasycenia po kilkudziesięciu dniach (co tłumaczy wcześniejsze niedoszacowanie). Stwierdzono różnicę pomiędzy przedstawicielami różnych płci w czasach biologicznego połowicznego zaniku Pu (kobiety wydają Pu szybciej) [Newton i Dmitriev, 2001].

# Radiotoksyczność Pu

Skuteczna dawka obciążająca dla osób postronnych przy jednostkowym wchłonięciu plutonu [Sv/Bq], dla różnych grup wiekowych za [Euroatom, 1996; ICRP, 1993]

| Izotop            | Spożycie / wiek[lat] |                     |                     | Inhalacja / wiek[lat] |                     |                     |
|-------------------|----------------------|---------------------|---------------------|-----------------------|---------------------|---------------------|
|                   | <1                   | 2-7                 | >17                 | <1                    | 2-7                 | >17                 |
| <sup>238</sup> Pu | $4.0 \cdot 10^{-6}$  | $4.0 \cdot 10^{-7}$ | $2.3 \cdot 10^{-7}$ | $2.0 \cdot 10^{-4}$   | $1.4 \cdot 10^{-4}$ | $1.1 \cdot 10^{-4}$ |
| <sup>239</sup> Pu | $4.2 \cdot 10^{-6}$  | $4.2 \cdot 10^{-7}$ | $2.5 \cdot 10^{-7}$ | $2.1 \cdot 10^{-4}$   | $1.5 \cdot 10^{-4}$ | $1.2 \cdot 10^{-4}$ |
| <sup>240</sup> Pu | $4.2 \cdot 10^{-6}$  | $4.2 \cdot 10^{-7}$ | $2.5 \cdot 10^{-7}$ | $2.1 \cdot 10^{-4}$   | $1.5 \cdot 10^{-4}$ | $1.2 \cdot 10^{-4}$ |
| <sup>241</sup> Pu | $5.6 \cdot 10^{-8}$  | $5.7 \cdot 10^{-9}$ | $4.8 \cdot 10^{-9}$ | $2.8 \cdot 10^{-6}$   | $2.6 \cdot 10^{-6}$ | $2.3 \cdot 10^{-6}$ |

Limity dawki

50 mSv na rok - zawartości w organizmie 500 Bq <sup>239</sup>Pu ( 0.2 µg)

1 mSv na rok przy 10 Bq.

# Toksyczność Pu

W sensie tolerowanych stężeń chemicznych pluton jest porównywalny [Zmysłowski, 1991]:

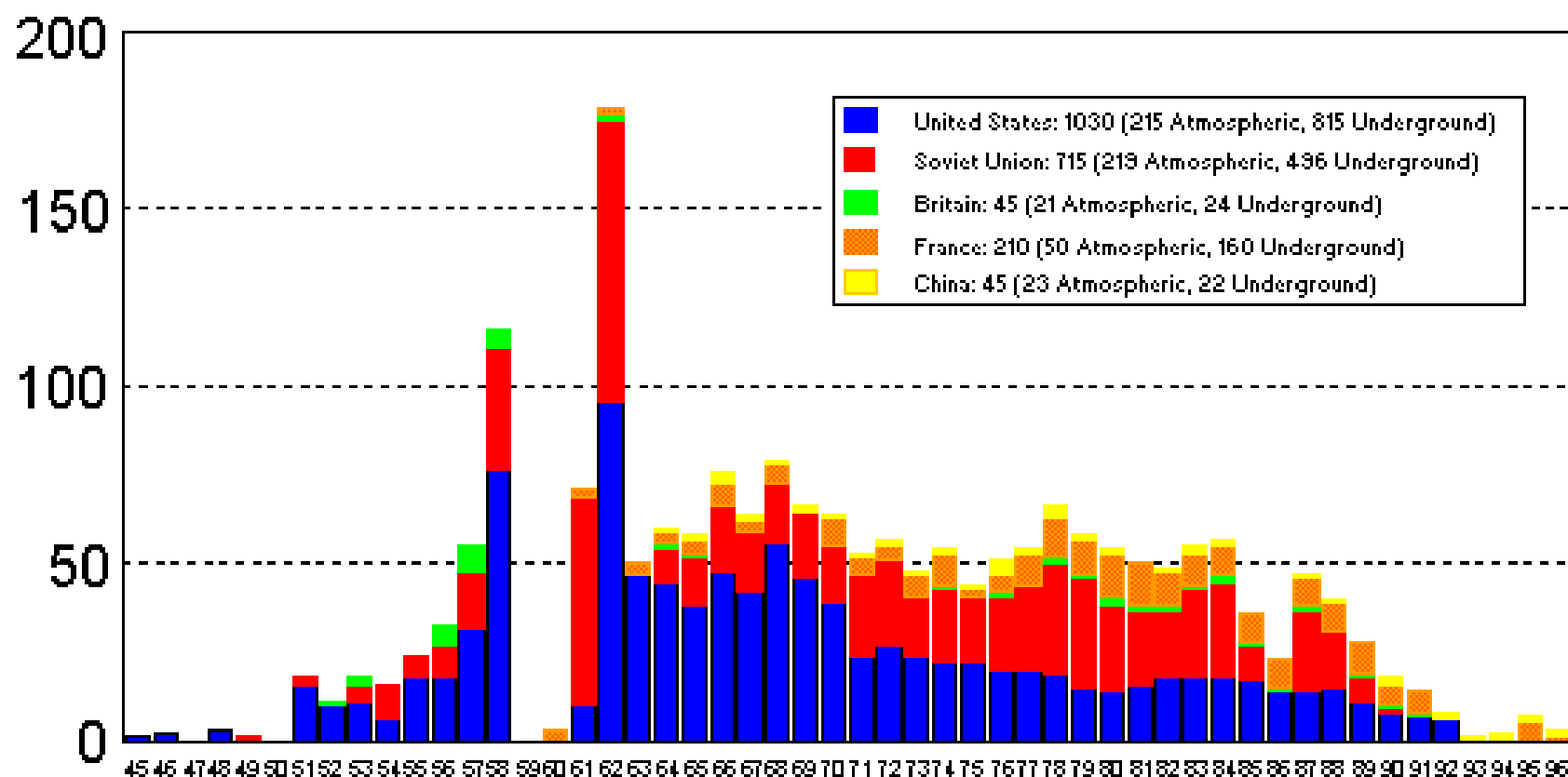
- przy spożyciu ( $\text{PuO}_2$ ) z octanem ołowiowym (100-krotnie mniej toksyczny od cyjanków, 10-krotnie bardziej toksyczny od arszeniku),
- przy bezpośrednim wstrzyknięciu do krwioobiegu z jadem okularnika (10 cio-krotnie bardziej toksyczny od kurary),
- przy inhalacji ( $\text{PuO}_2$ ) jest stukrotnie bardziej toksyczny od fosgenu lub pyłu kadmowego.

Graniczne dla skutków ostrych stężenie Pu w organizmie człowieka (i innych ssaków) wynosi 300 ppb ( $3 \cdot 10^{-7}$  g/g), co dla  $^{239}\text{Pu}$  równoważne jest stężeniu aktywności 750 kBq/kg.

**Dla  $^{239}\text{Pu}$  toksyczność mniej istotna niż radiotoksyczność**

# Global Nuclear Weapons Tests

1945-1996



U.S. total does not include the two atomic bombs dropped on Hiroshima and Nagasaki in August 1945.

The U.S. and the Soviet Union conducted 27 and 124 "Peaceful Nuclear Explosions," respectively, which are included in the above totals.

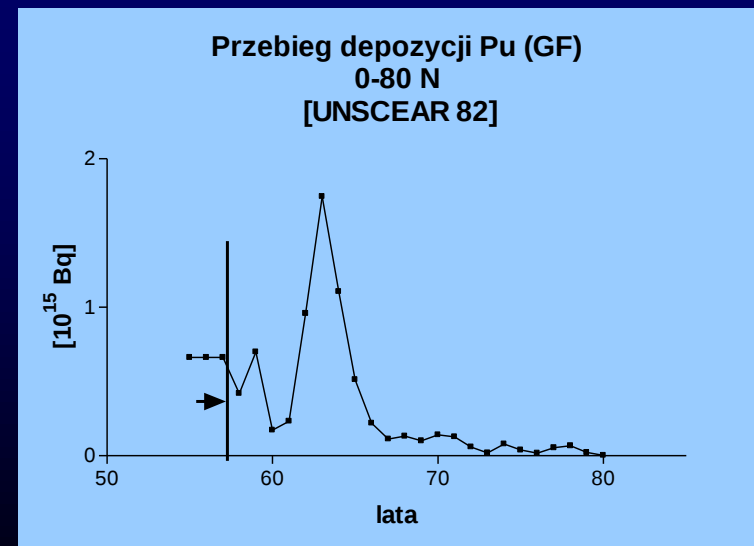
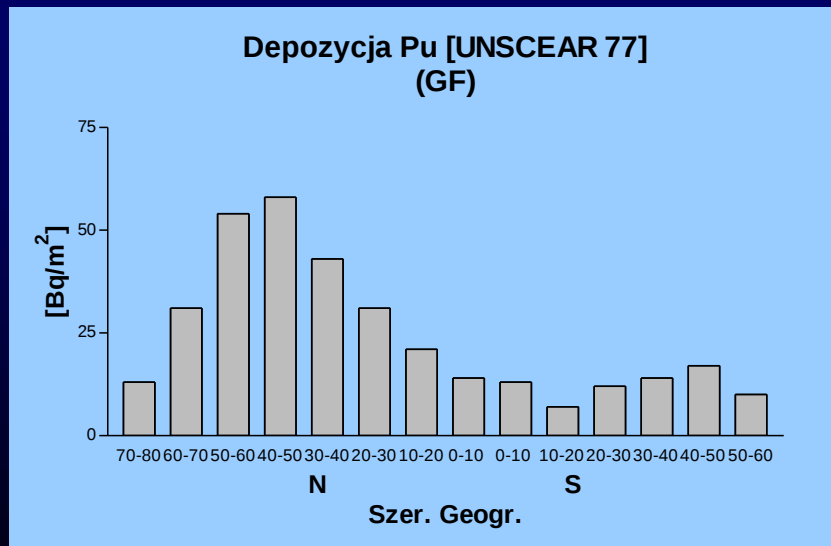
India conducted an underground nuclear test in 1974.

Sources: U.S. Department of Energy; Natural Resources Defense Council, Nuclear Weapons Databook Project

# Opad globalny

1945-1963 (...1980):

- 429 eksplozji , >500 MT TNT (ponad 20 000 x Hiroshima)
- W tym 217 MT z rozszczepienia
- Poligony: Nowa Ziemia, Semipałatyńsk, Bikini, Nevada, Sahara, Nowa Kaledonia, Woomera,...
- Transport – powietrze



# Opad globalny w Polsce

Depozycje (kBq/m<sup>2</sup>)

Cs-137: 5

Sr-90: 3

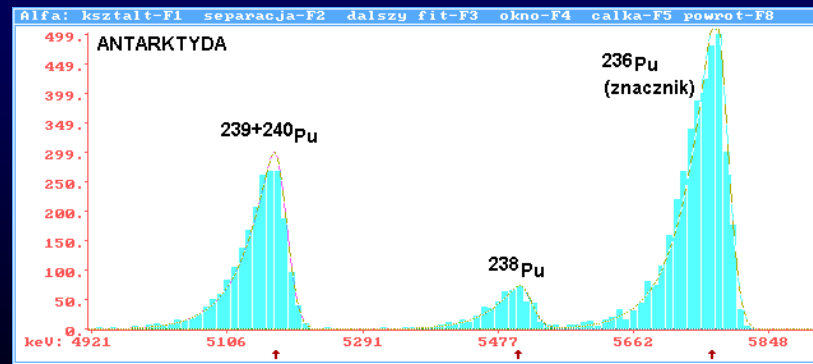
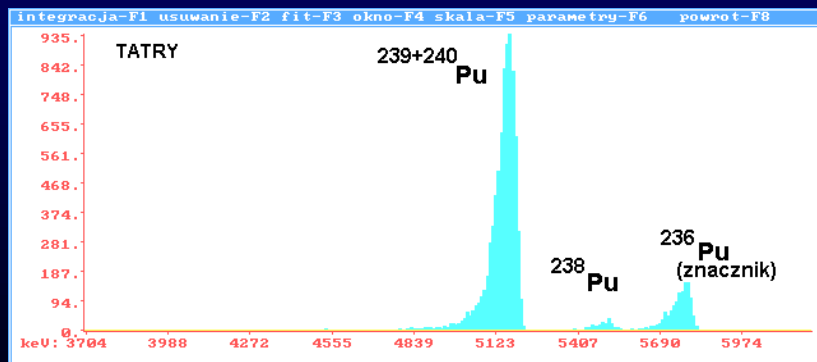
(aktywności dla 1963) Pu-239 i 240: 0.058

*Czyli ok. 18 TBq w całej Polsce (ok. 7 kg Pu)*

.....

Satelita SNAP 9A, '64 (ok. 1 kg <sup>238</sup>Pu)

Pu-238: 0.002



# Katastrofa czarnobylska

- IV blok RBMK 1000
- 2 lata eksploatacji
- Eksperyment!
- Wybuch (chemiczny!) i pożar

(26.04.1986-6.05.1986....)

- Uwolnione:

100% gazów

Ok. 30 % lotnych

Ok. 3 % nietlotnych, w tym Pu i inne aktywności oraz Sr-90

Rzędu  $10^{18}$ Bq,

W tym ok. 0.5 kg Pu



# Opad czarnobylski

- „Składowa ciągła”, depozycja w Polsce (kBq/m<sup>2</sup>):

Izotopy długożyciowe:

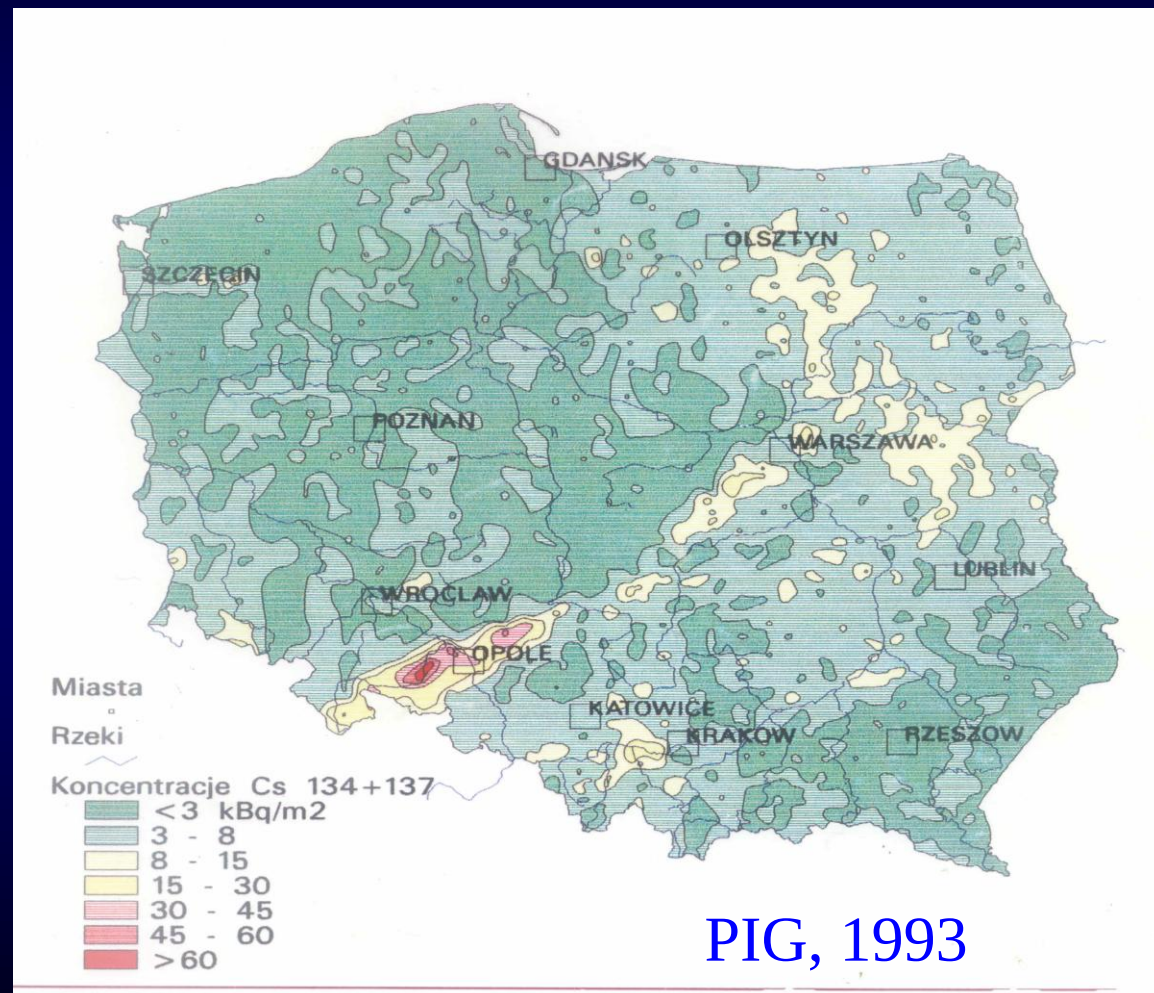
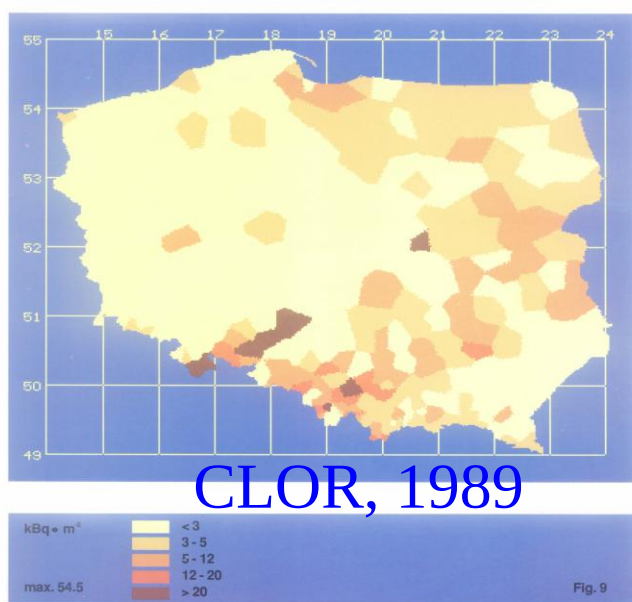
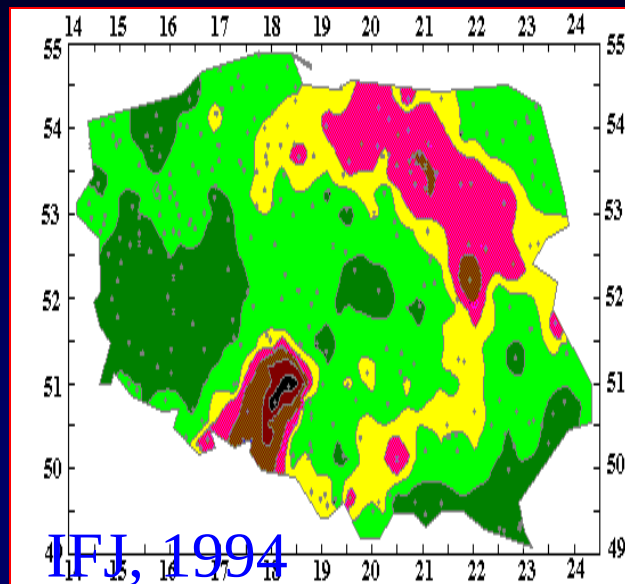
Cs-137 - średnio ok. 5 (max. 100)

Sr-90 -  $1/50 \times \text{Cs-137}$

$^{239+240}\text{Pu}$   $10^{-6} \times \text{Cs-137}$

+Kilkadziesiąt izotopów krótkożyciowych (jodu, telluru, rutenu, baru, lantanu, ceru...)

# Opad czarnobylski - Orientacyjne mapy skażeń Polski $^{137}\text{Cs}$



PIG, 1993

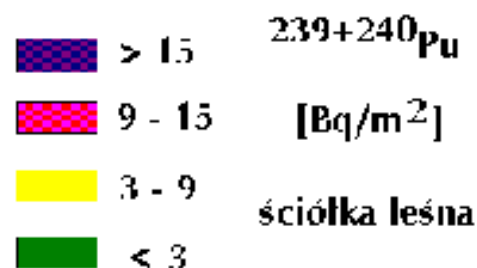
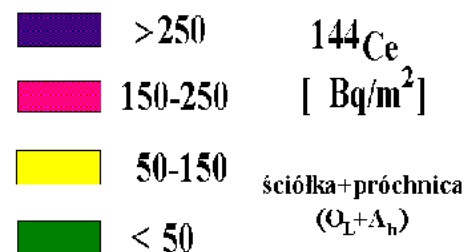
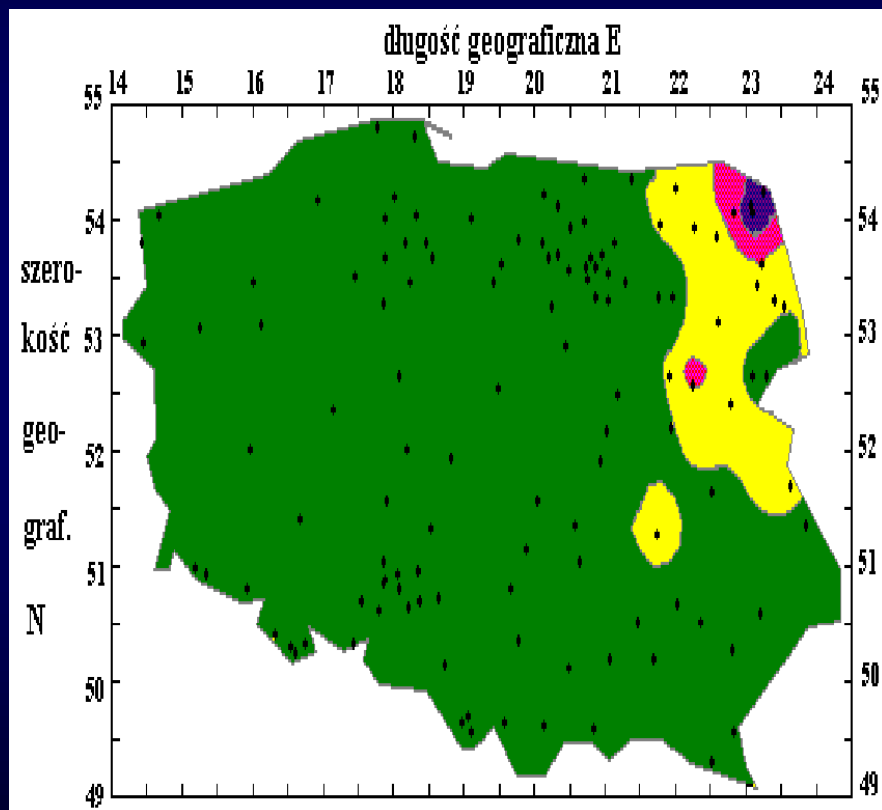
# „Gorące cząstki”

- Typ paliwowy - matryca  $\text{UO}_2$  lub  $\text{U}_3\text{O}_8$   
 $^{238,239,240,241}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{243,244}\text{Cm}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{154}\text{Eu}$ ,  
( $^{141,144}\text{Ce}$ ,  $^{95}\text{Zr}$ ,  $^{95}\text{Nb}$ ,  $^{155}\text{Eu}$ ,  $^{89}\text{Sr}$ ,  $^{242}\text{Cm}$ ...)
- Typ „kondensacyjny” („condensation”, „monoelemental”) - kondensacja par?/ „white inclusions”? – oba mechanizmy? (Kashparov, 1999)

Matryca  $\text{Ru}$ ,  $\text{Mo}$ , ... $\text{Fe}$ ,  $\text{Ni}$ ... ( $^{103,106}\text{Ru}$ ...)  $^{63}\text{Ni}$ ,  $^{99}\text{Tc}$ ?

# HP- Rozkład geograficzny (przybliżony)

Mietelski, IFJ, 1994

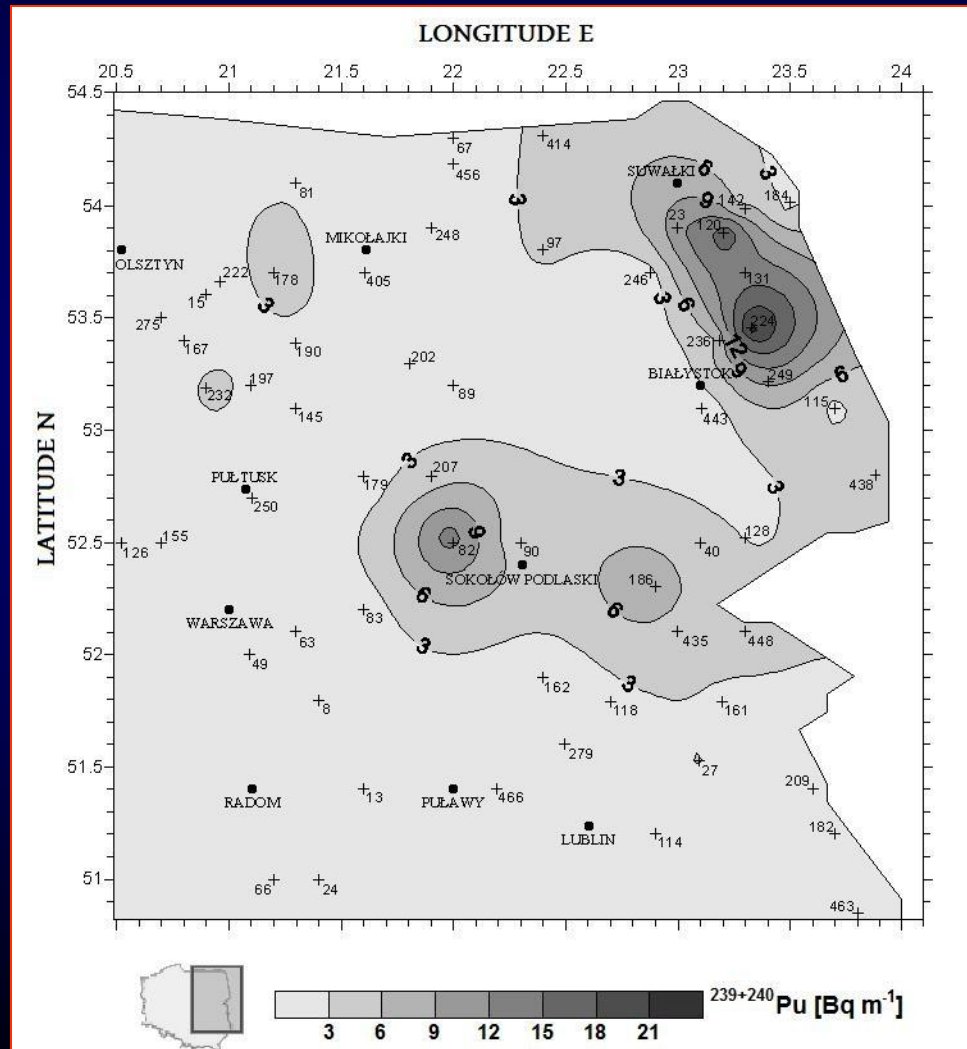
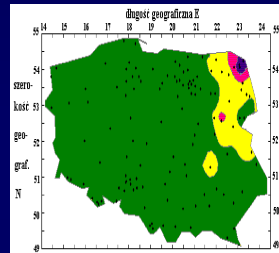


Aktywność na 1.09.1991

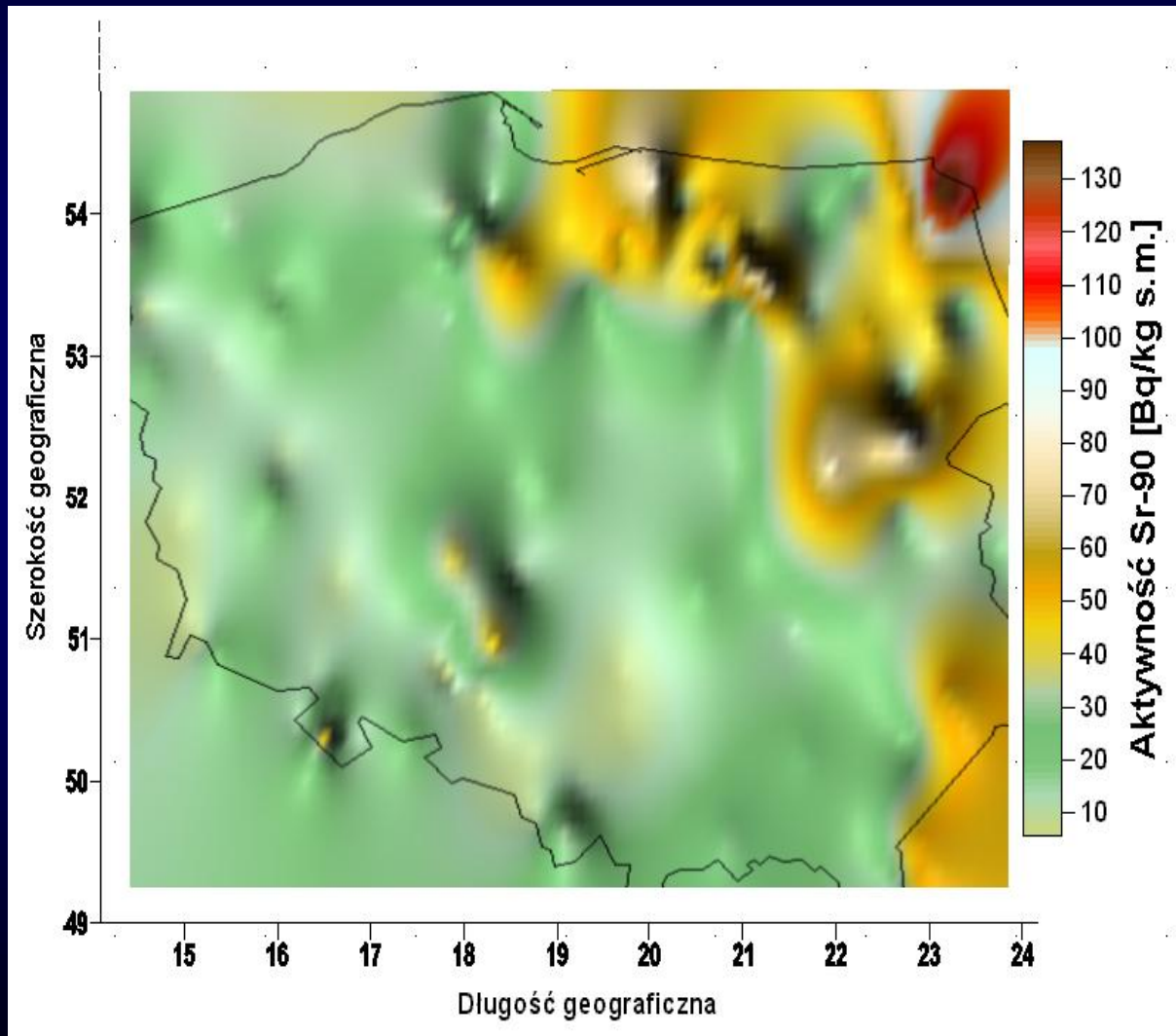
(x 110 dla 1986)

# Mapa depozycji $^{239+240}\text{Pu}$ w Polsce po Czarnobylu (skorygowana, Brudecki, Suwaj, Mietelaki, 2010)

$^{144}\text{Ce}$   
Forest  
Litter



# $^{90}\text{Sr}$ w borówkach (doktorat P.Gacy, IFJ-UG , 2004)



# Pomiar Pu w środowisku

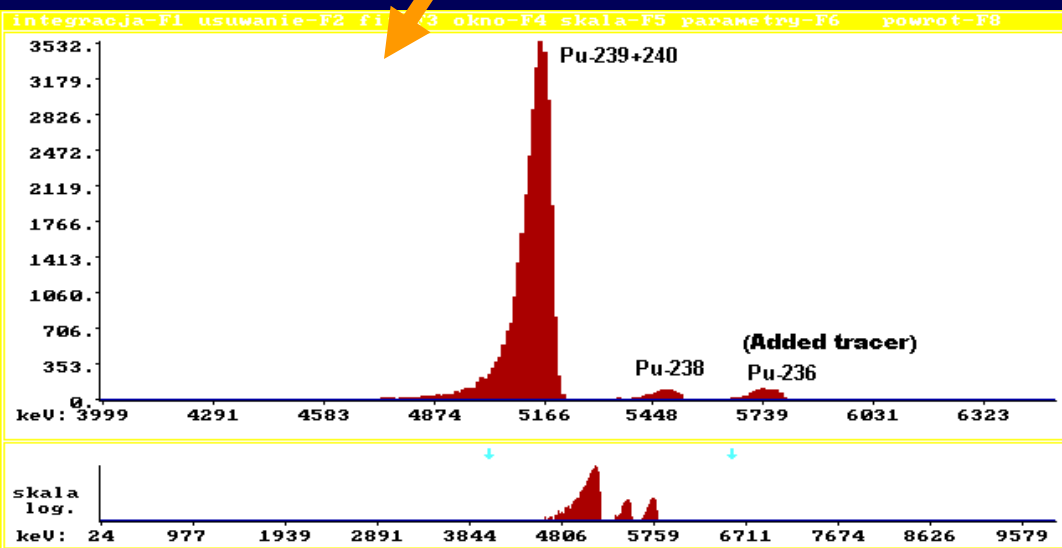
1. Spektrometria alfa:  $^{239+240}\text{Pu}$ ,  $^{238}\text{Pu}$  – znacznik  $^{236}\text{Pu}$  lub  $^{242}\text{Pu}$
2. Spektrometria masowa:  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$ ,  $^{242}\text{Pu}$  (?),  $^{244}\text{Pu}$  (?)
3. Spektrometria gamma - niskie prawdopodobieństwa emisji promieniowania gamma (X),
4. Spektrometria beta: tylko  $^{241}\text{Pu}$  (podobieństwo widma do  $^3\text{H}$ )

|            |     |                       |                                   |
|------------|-----|-----------------------|-----------------------------------|
| Powtórzmy: | 238 | 87.7 lat              | $\alpha$ (5.50)                   |
|            | 239 | 24100 lat             | <u><math>\alpha</math> (5.15)</u> |
|            | 240 | 6540 lat              | <u><math>\alpha</math> (5.15)</u> |
|            | 241 | 14.4 lat              | $\beta^-$ (0.021)                 |
|            | 242 | 376 000 lat           | $\alpha$ (4.90)                   |
|            | 244 | $82.6 \cdot 10^6$ lat | $\alpha$ (4.60)                   |

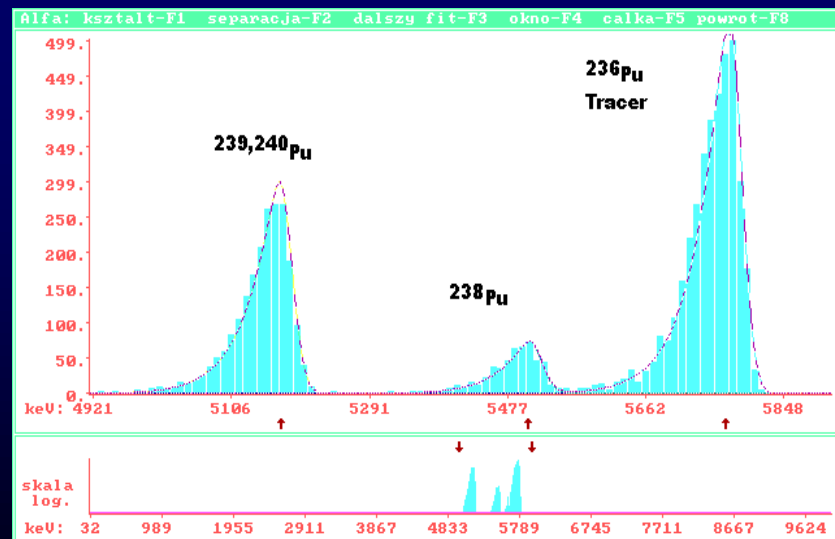
# Limity detekcji

- Alfa spektrometria ~ 0.1 mBq/próbce  
(3 mBq/kg)
- Gamma (X) spektrometria (+radiochemia)  
~30 mBq/próbce [Arnold & Kolb, ARI 46 1995,1151]
- ICP MS (+radiochemia) – 2 mBq/kg [Jerome et al.  
ARI 46 1995,1151]
- AMS (+radiochemia) 10 $\mu$ Bq/próbce (4fg)  
[Oughton et al., Plutonium in the environment, Elsevier 2001]

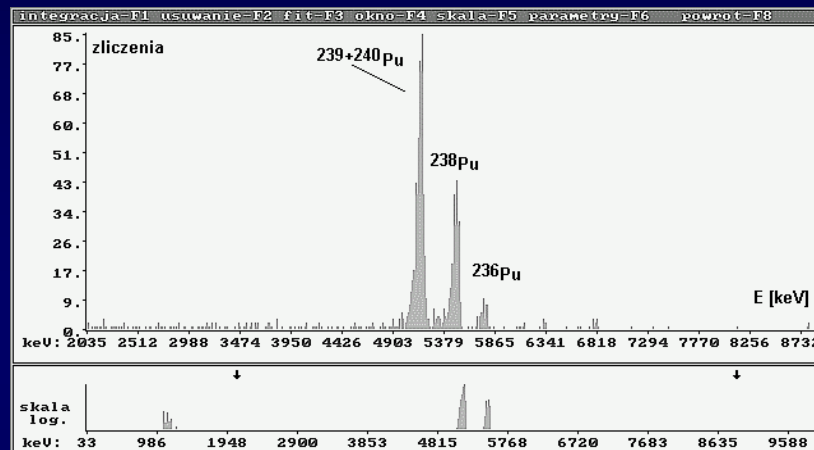
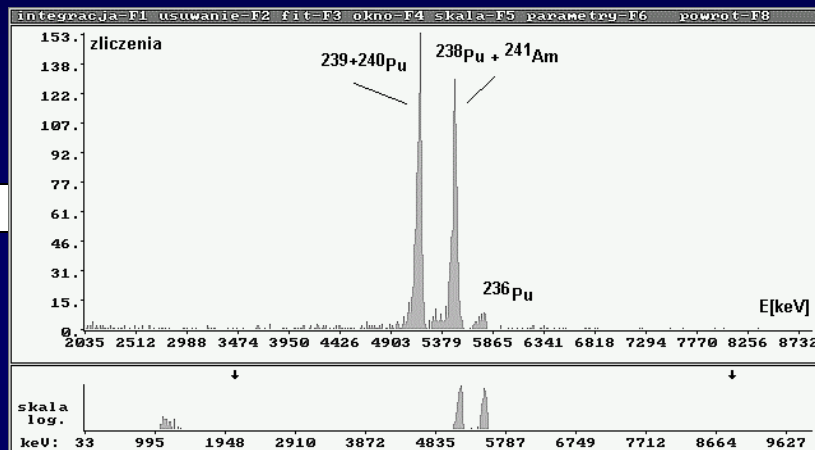
# Przykłady widm cząstek alfa Pu (opad globalny) W Polsce



## Na Antarktydzie

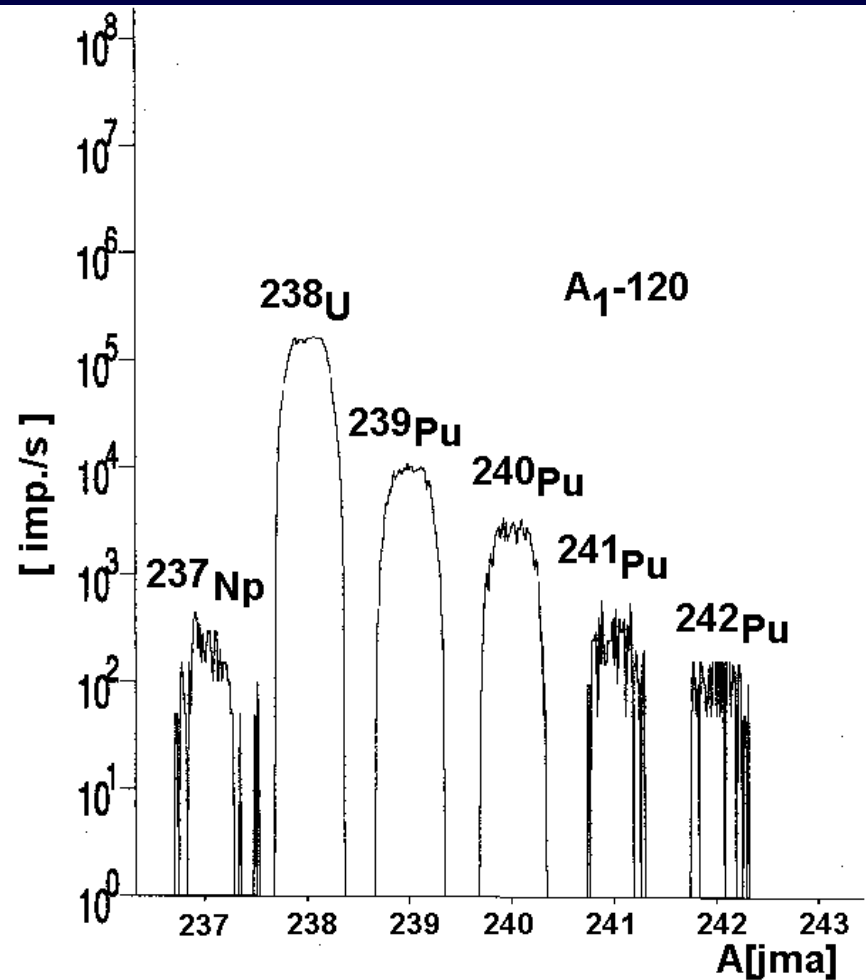
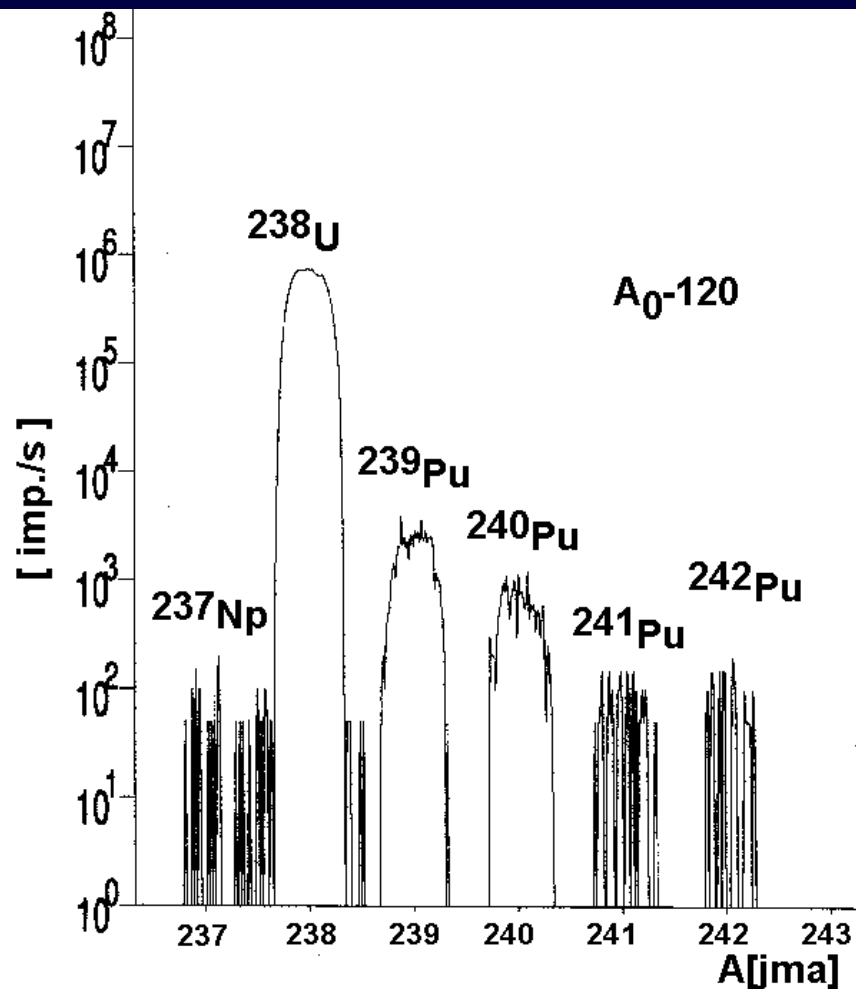


# Pu w opadzie czarnobylskim w Krakowie



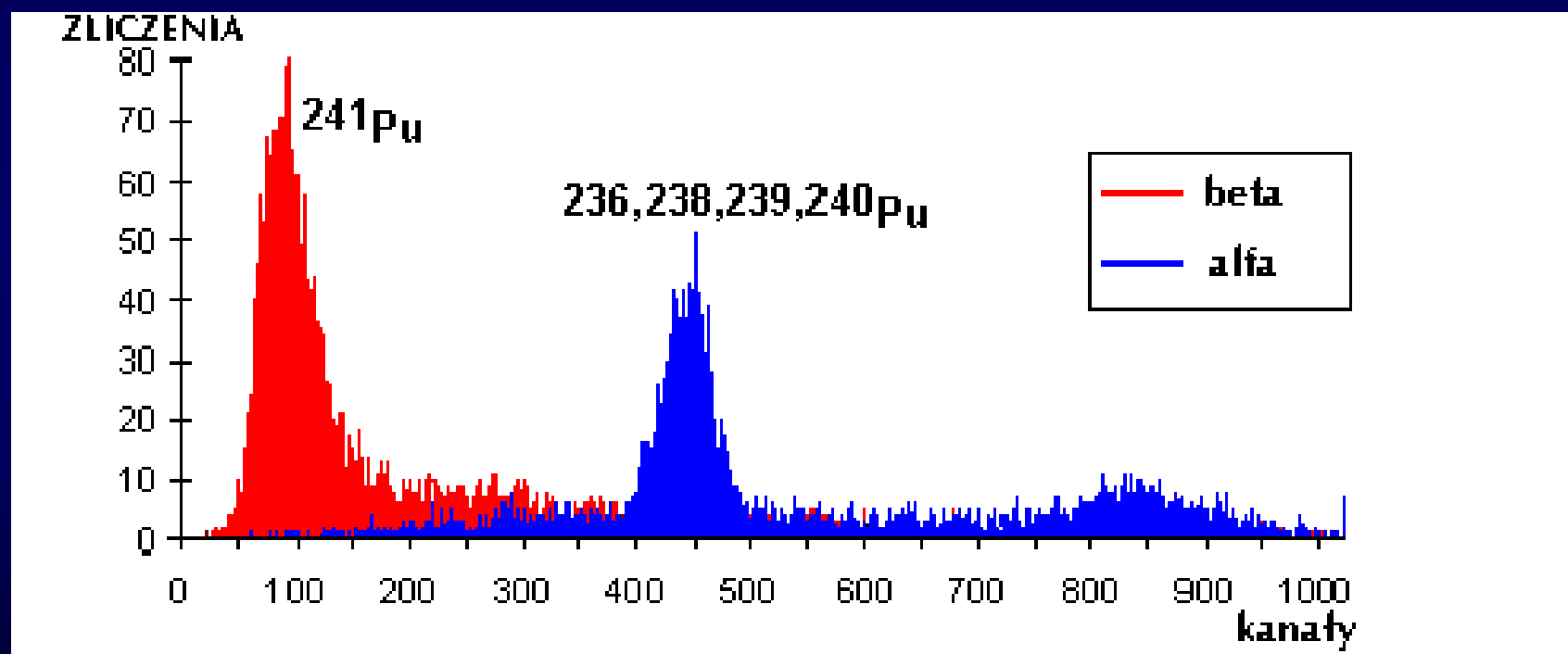
Widma promieniowania alfa plutonu wydzielonego (w 1993) z próbki opadu czarnobylskiego pobranej 1.05.1986 na terenie IFJ. (A) widmo zmierzone w roku 2000, zawierające narośnięty  $^{241}\text{Am}$  z rozpadu  $^{241}\text{Pu}$ , (B) widmo tego samego preparatu zaraz po oczyszczeniu z produktów rozpadów Pu.

# Widma masowe (ICP MS) Pu



# Widmo cząstek beta i alfa (LSC)

## Pu



# Stosunki izotopowe – kluczem do identyfikacji źródła

*Stosunki mas lub aktywności:*

## Przykłady

|                                                |                            |
|------------------------------------------------|----------------------------|
| $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ (aktyw.) | ok. 0.01 (broń jądrowa)    |
|                                                | 0.03 (opad glob. w Polsce) |
|                                                | 0.175 Sellafield           |
|                                                | 0.50 Czarnobyl             |
| $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ (masy)       | ok. 0.05 (broń jądrowa)    |
|                                                | 0.18 (opad globalny)       |
|                                                | 0.40 Czarnobyl             |

# Dla 2 źródeł (GF, Cz) Pu:

Procentowy udział frakcji  
czarnobylskiej

$$F = 100\% \frac{\frac{A_{238}}{A_{239}} - 0.03}{0.47}$$

# Oznaczenia Pu w Polsce

Okres przed Czarnobylem

- IO PAN (R.Bojanowski)  $\alpha$

Współcześnie

- CLOR ( Z. Pietrzak Flis i M.Suplińska)  $\alpha$
- UG (B.Skwarzec, ...)  $\alpha$  (AMS)
- UMCS (A. Komosa)  $\alpha$ , LSC
- IFJ PAN (JWM,...)  $\alpha$ , LSC, ICP MS (ING)

# Badania w IFJ PAN nad plutonem – od 1993 r. (1991 – w MAEA Seibersdorf)

- Ściółki leśne i torf
- Rośliny i zwierzęta
- Filtry powietrza i opad
- Kości ludzi

# Specyfika pomiaru alfa-spektrometrycznego

- Mała przenikliwość – konieczność wydzielenia radiochemicznego - źródło o gęstości powierzchniowej  $<0.1 \text{ mg/cm}^2$  (elektrodepozycja, współstrącanie, elektrokapilarne napyłanie....)
- Łatwa redukcja tła poprzez dobór materiałów
- Pomiar w próżni

# Metoda radiochemiczna

(dla kości inaczej)

1. Spopielenie w 600 °C
2. Mineralizacja HF, HNO<sub>3</sub>, HCl+H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub>
3. Strącenie szczawianów pH~3 (nie zawsze)
4. Ustalenie Pu<sup>4+</sup> (hydrazyna, azotyn sodu) [La Rosa *et al.*, 1992]
5. Separacja na anionicie (Dowex 1) 8M HNO<sub>3</sub>
6. Wymycie Th (10 M HCl)
7. Wymycie Pu 0.1M HF-0.1M HCl
8. Źródło – mikrowspółstrącenie NdF<sub>3</sub>
9. Pomiar na spektrometrze promieniowania alfa.

# Współpraca z AGH –

## 1. pomiary Pu w Tatrach

(grant KBN pod kier. prof. J.Gołasia, dr hab.B.Kubicy)

### OKOLICE:

D. Chochołowska (6 po 3 warstwy)

D. Kościeliska (6 po 3 + 1 po 2)

D. Sucheje Wody (1 po 5 + 1 po 13) *ET*

D. Roztoki + Tatry Wysokie (1 po 4, 1 po 2, 4 po 3)

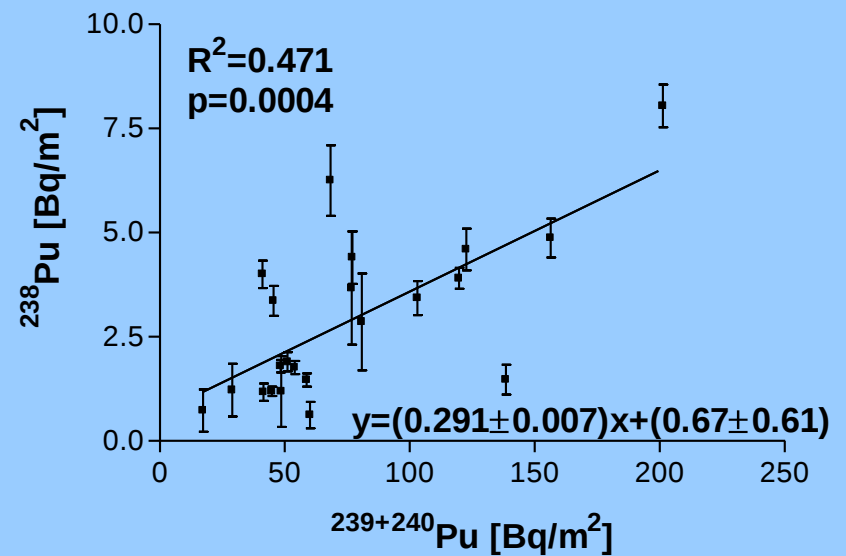
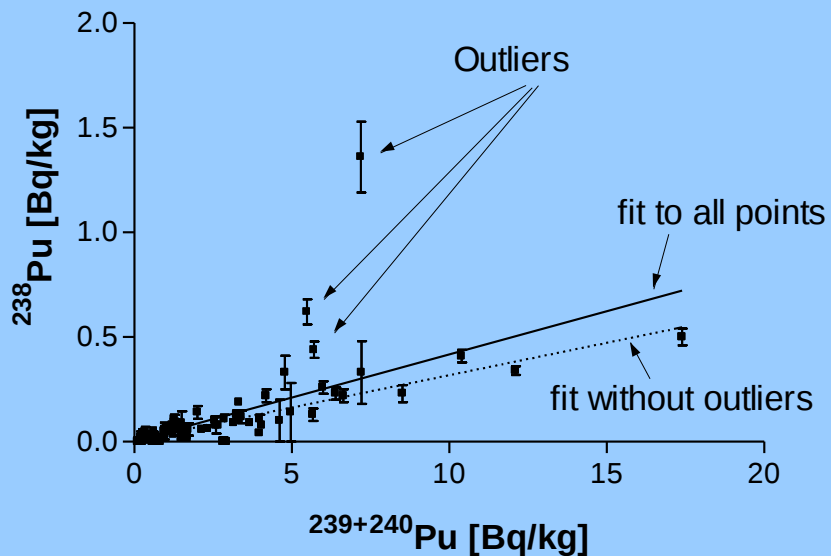
Razem 76 próbek (warstw) z 21 miejsc

Od 913 m npm do 1900 m npm

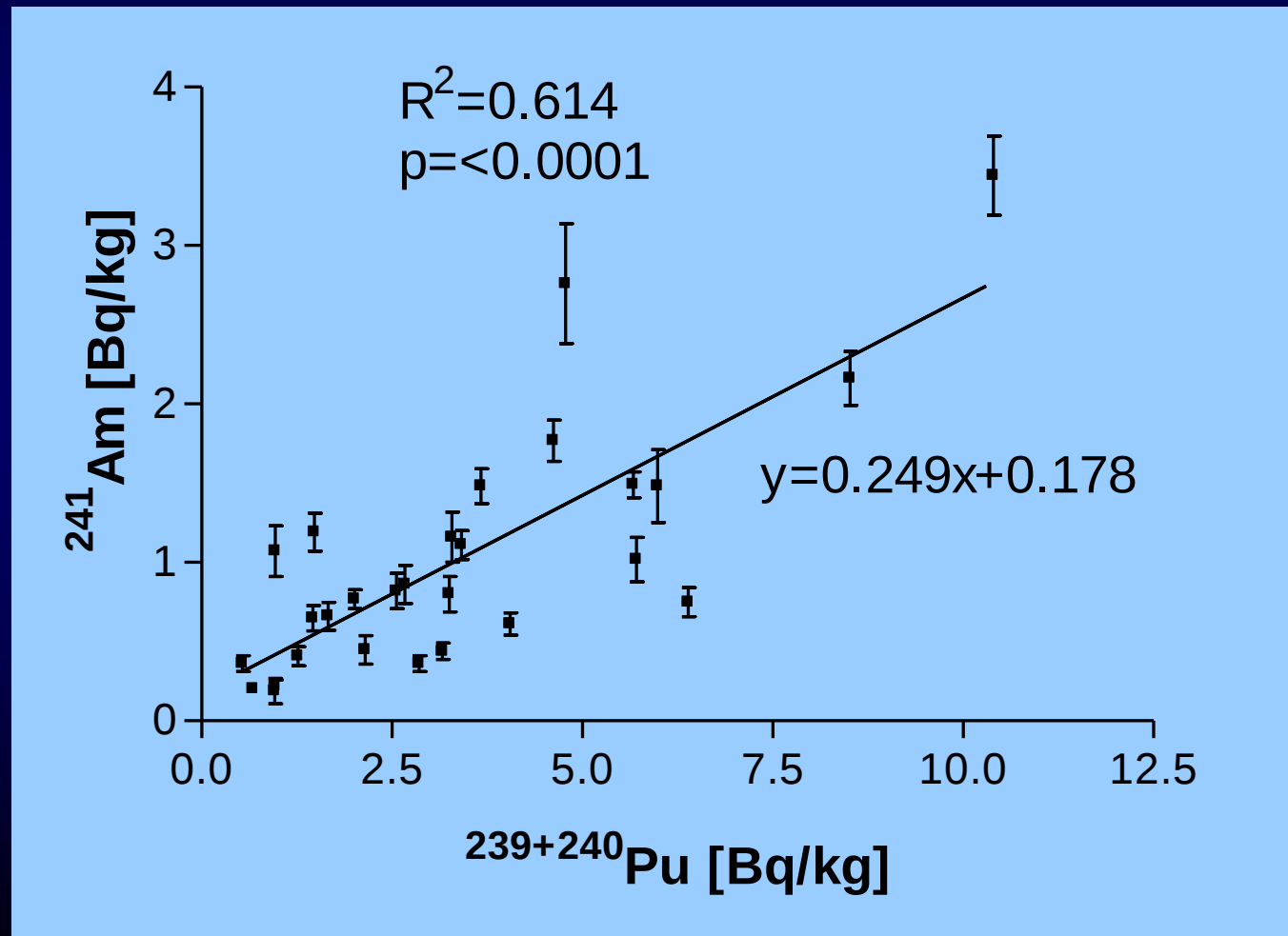
## 2. Kilkanaście prac magisterskich

# $^{238}\text{Pu} : ^{239} + ^{240}\text{Pu}$

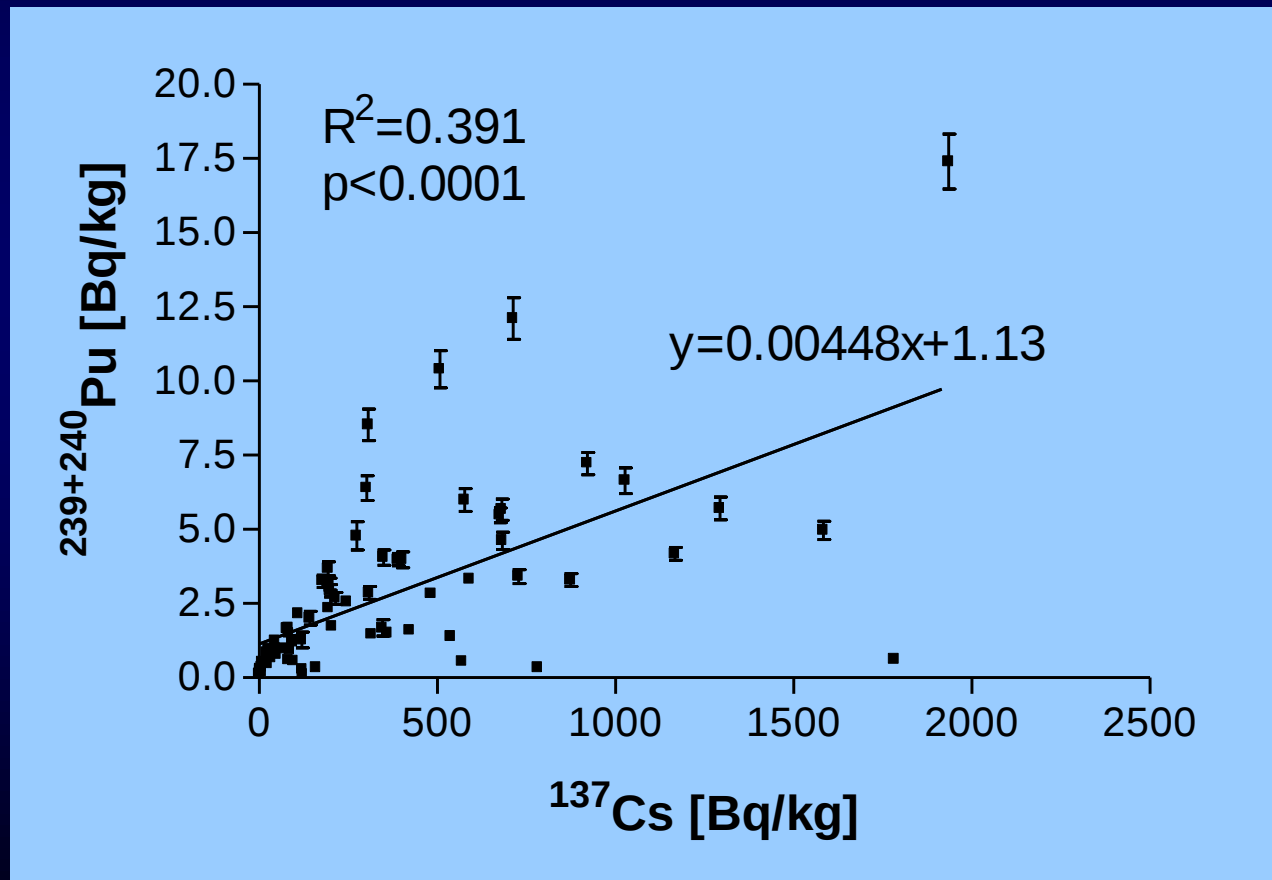
|           | all samples       | excluded samples  | $\Sigma$ cumulated deposition |
|-----------|-------------------|-------------------|-------------------------------|
| $R^2$     | 0.428             | 0.834             | 0.471                         |
| p         | <0.0001           | <0.0001           | 0.0004                        |
| slope     | $0.041 \pm 0.006$ | $0.031 \pm 0.002$ | $0.029 \pm 0.007$             |
| intercept | $0.004 \pm 0.023$ | $0.008 \pm 0.007$ | $0.67 \pm 0.61$               |
| mean      | 0.0419            | 0.0384            | 0.0407                        |



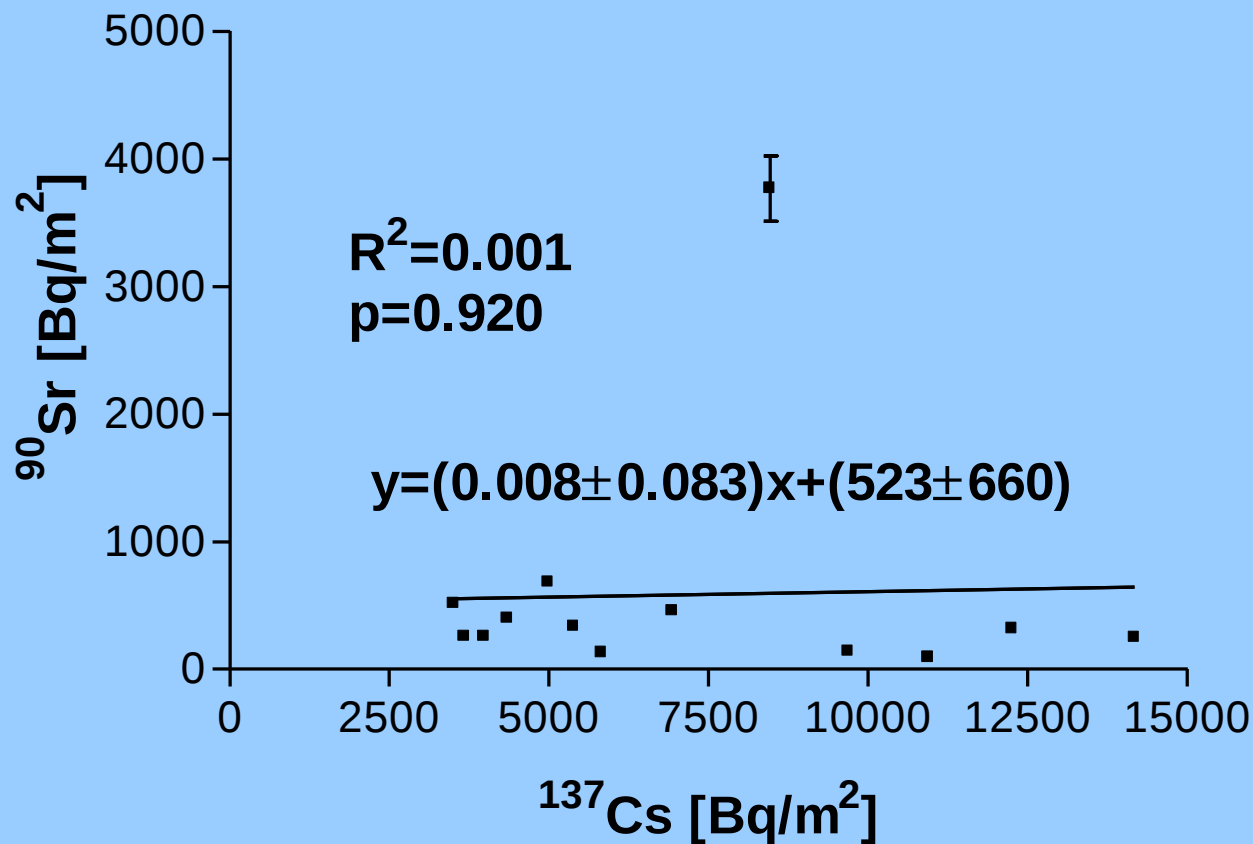
# Korelacje aktywności Pu-Am



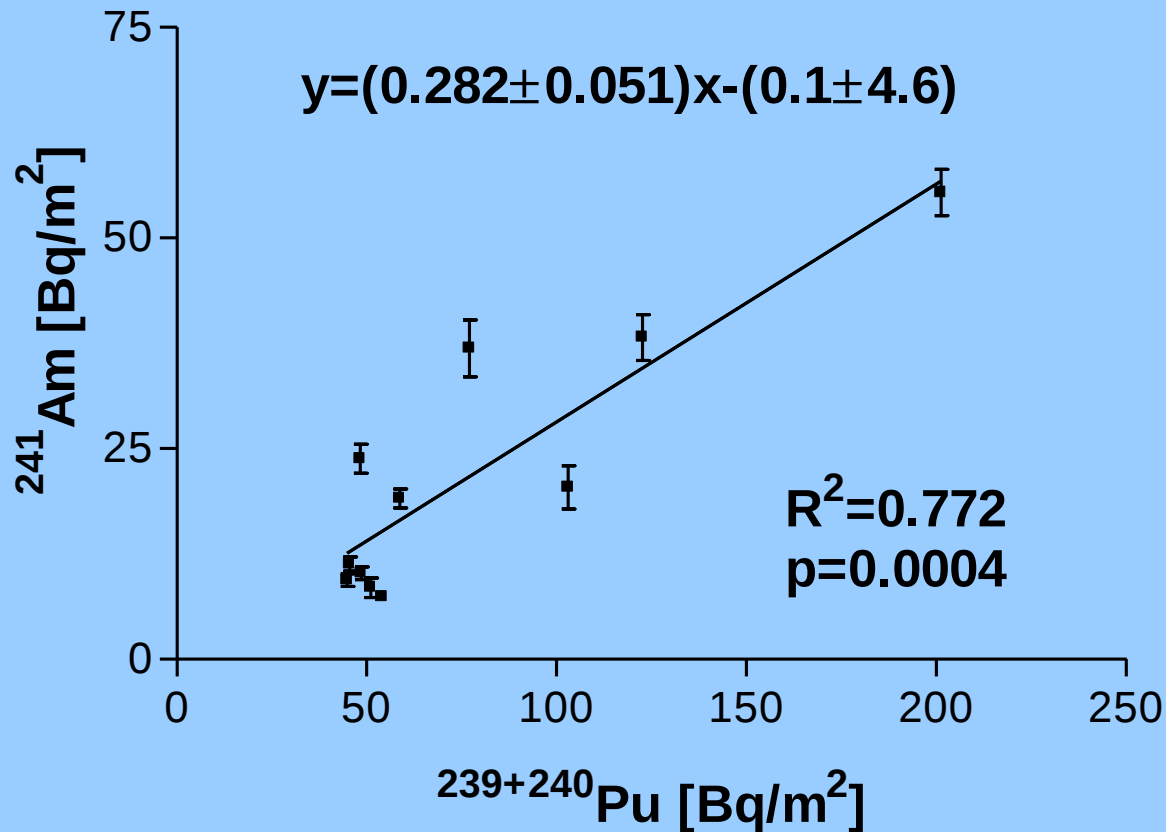
# Korelacje aktywności Cs-Pu



# Korelacje depozycji Sr-Cs



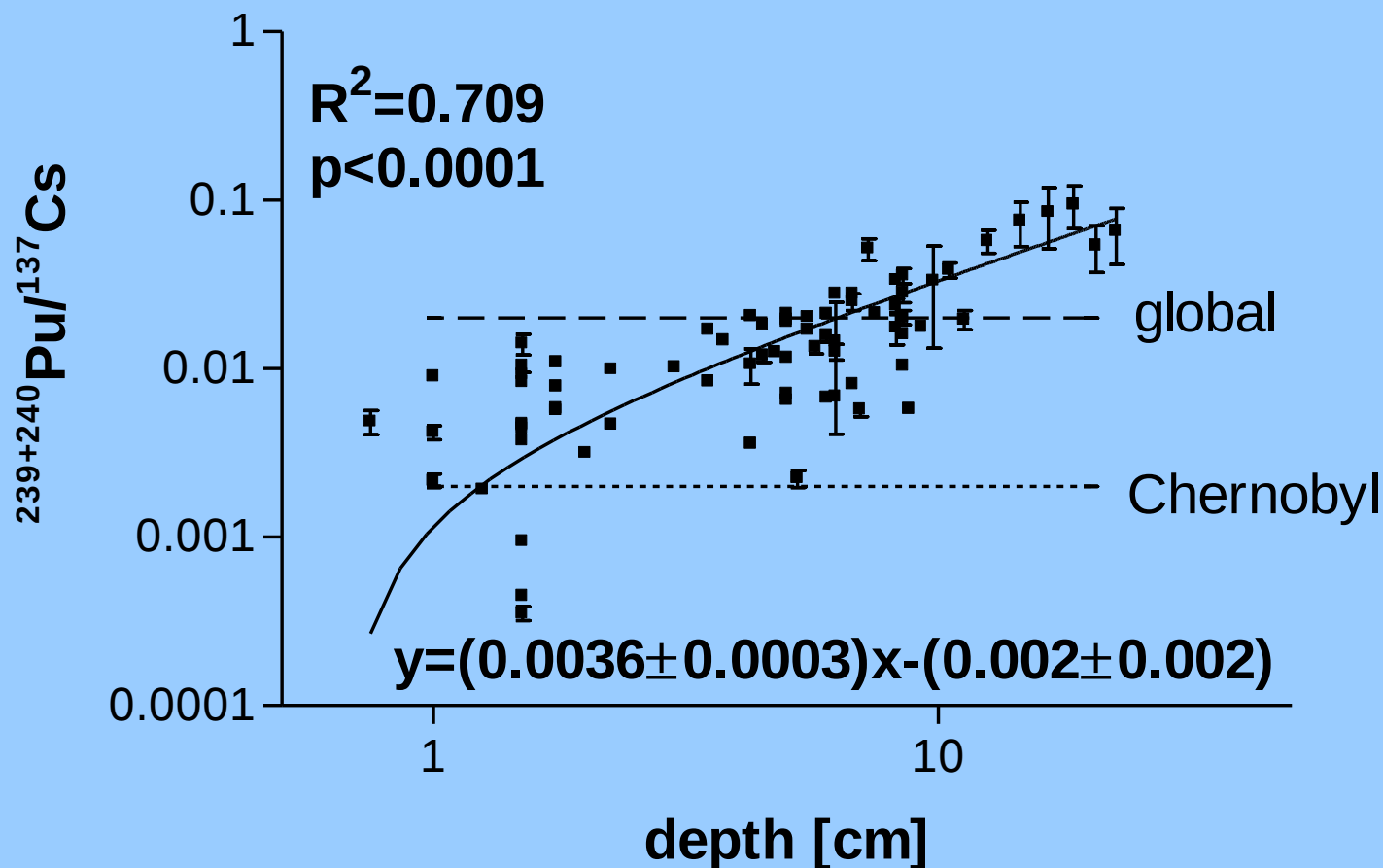
# Korelacje depozycji Am-Pu



# Wnioski odnośnie depozycji Pu w Tatrach

- Maksymalna depozycje Pu w Tatrach ponad 3 x wartości szacowanej dla Polski w raportach UNSCEAR (58 Bq/m<sup>2</sup>.)
- Słaby wzrost skażeń Cs, Pu, Am z wysokością
- Większość skażeń widoczna w próbkach
- Sr odmiennie – wymyty głębiej w profil?

# Stosunki aktywności a głębokość Pu/Cs



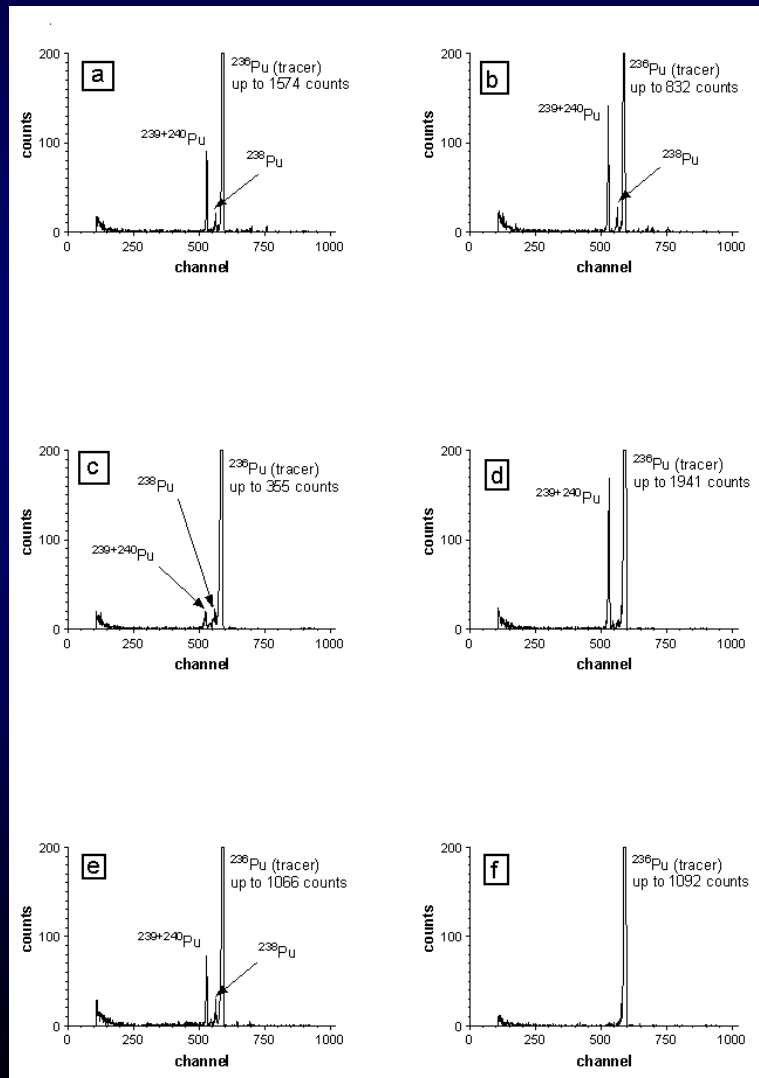
# Badania skażeń radioaktywnych powietrza



# Pomiary pilotażowe Pu w powietrzu (1995-7)

- 2 zestawy po 12 filtrów (3 mies.) Petryanov (ASS-500) – 0.5 Mm<sup>3</sup> ('95-6)
- Woda deszczowa (2x 170 L) – ('96-7)
- Autorzy: JWM, M.Jasińska, K.Kozak, B.Wąs, J.O. Krupa
- Inspiracja z PTB, Brunszwik (H.Wershofen)
- Opublikowane 1998 (Proceeding of Radiochemical Conference, Mariánské Lázně, 1998 – Czechoslovak J. of Phys.)

# Wyniki (1995-7) - widma



# Wyniki (1995) - Powietrze

Table 1. Results of the Pu measurements in the air (1995).

|                        | chemical yield<br>[%] | $^{238}\text{Pu}$<br>[nBq·m <sup>-3</sup> ] | $^{239+240}\text{Pu}$<br>[nBq·m <sup>-3</sup> ] | $^{238}\text{Pu}$ to<br>$^{239+240}\text{Pu}$ |
|------------------------|-----------------------|---------------------------------------------|-------------------------------------------------|-----------------------------------------------|
| filter set 1 (III-V)   | 55±3                  | 0.5±0.1                                     | 3.1±0.2                                         | 0.16±0.02                                     |
| filter set 2 (VI-VIII) | 25±2                  | 0.7±0.1                                     | 8.3±0.6                                         | 0.08±0.01                                     |

# Wyniki (1996-7) – Opad

Table 2. Results of plutonium measurements in the rain sample (containing also dust).

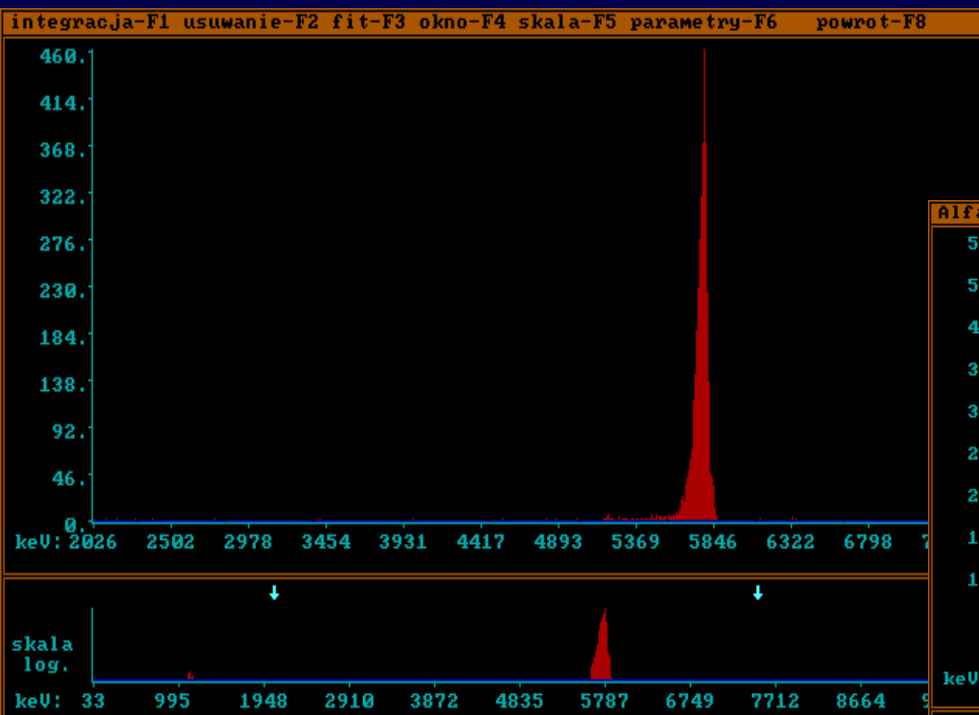
|                                                       | chemical yield | $^{238}\text{Pu}$      | $^{239+240}\text{Pu}$  | $^{238}\text{Pu}$ to<br>$^{239+240}\text{Pu}$ |
|-------------------------------------------------------|----------------|------------------------|------------------------|-----------------------------------------------|
|                                                       | [%]            | [mBq·m <sup>-3</sup> ] | [mBq·m <sup>-3</sup> ] |                                               |
| 1996 V-IX<br>(rain)                                   | 26 ± 2         | <5 <sup>a</sup>        | 7.5 ± 0.7              | <0.7 <sup>a</sup>                             |
| 1996 V-IX<br>(sediment washed out<br>from the barrel) | 38 ± 2         | 2.1 ± 0.2              | 11.4 ± 0.7             | 0.18 ± 0.01                                   |
| 1997 IV-VII<br>(rain)                                 | 93 ± 5         | 0.4 ± 0.1              | 14.3 ± 0.8             | 0.03 ± 0.01                                   |

<sup>a</sup> -  $^{238}\text{Pu}$  peak strongly interfered with the tail of  $^{236}\text{Pu}$  peak due to relatively poor energy resolution (see Fig. 1 c).

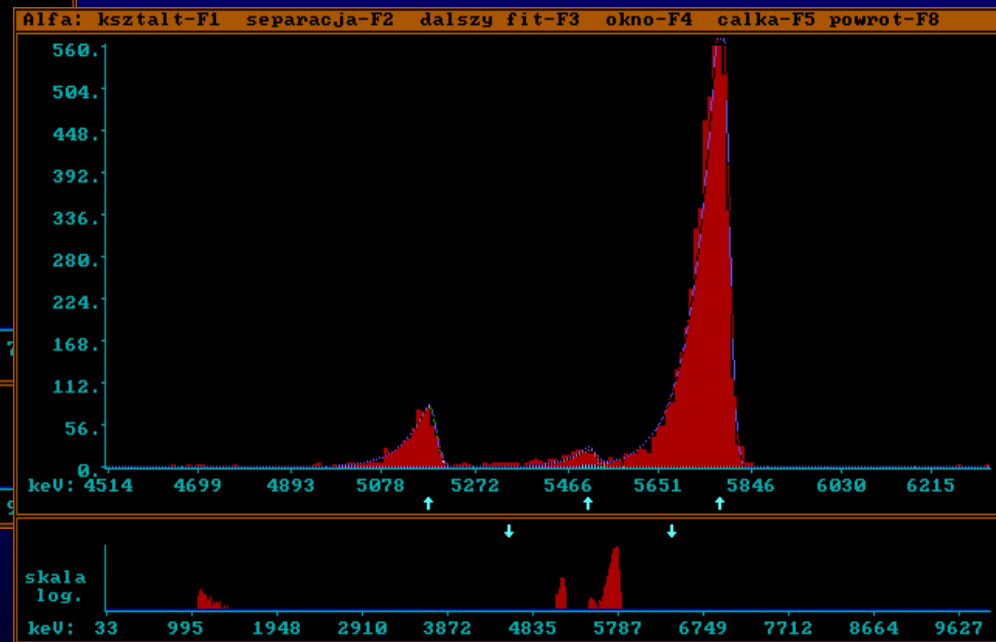
# Powietrze z dużego pułapu

- Dwa filtry kabinowe Boeing 767 (LOT)
- Trasa północnoatlantycka, 2 lata (1999-2001)
- Publikacja: JWM, P.Gaca, S. Grabowska (Błażej), Monaco Aquatic Forum 2004 (Konferencja).

# Filtry kabinowe – widma



blank



60 g pyłu

# Filtry kabinowe - wyniki

- Aktywność  $^{239,240}\text{Pu}$ :

$19.4 \pm 1.3 \text{ mBq/kg}$  i  $14.1 \pm 1.8 \text{ mBq/kg}$

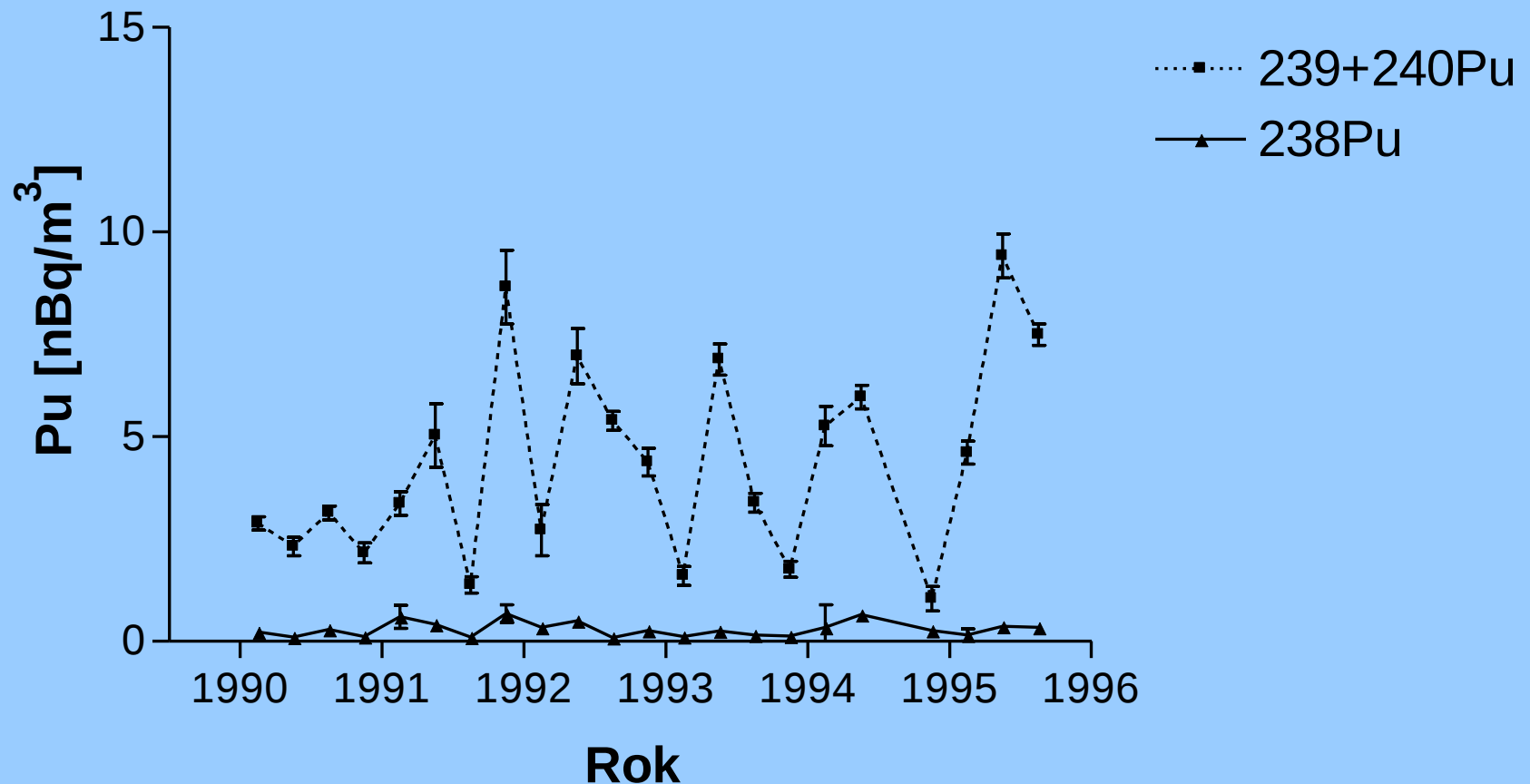
- $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$

22% , 26%. ( $\sim 10\%$ )

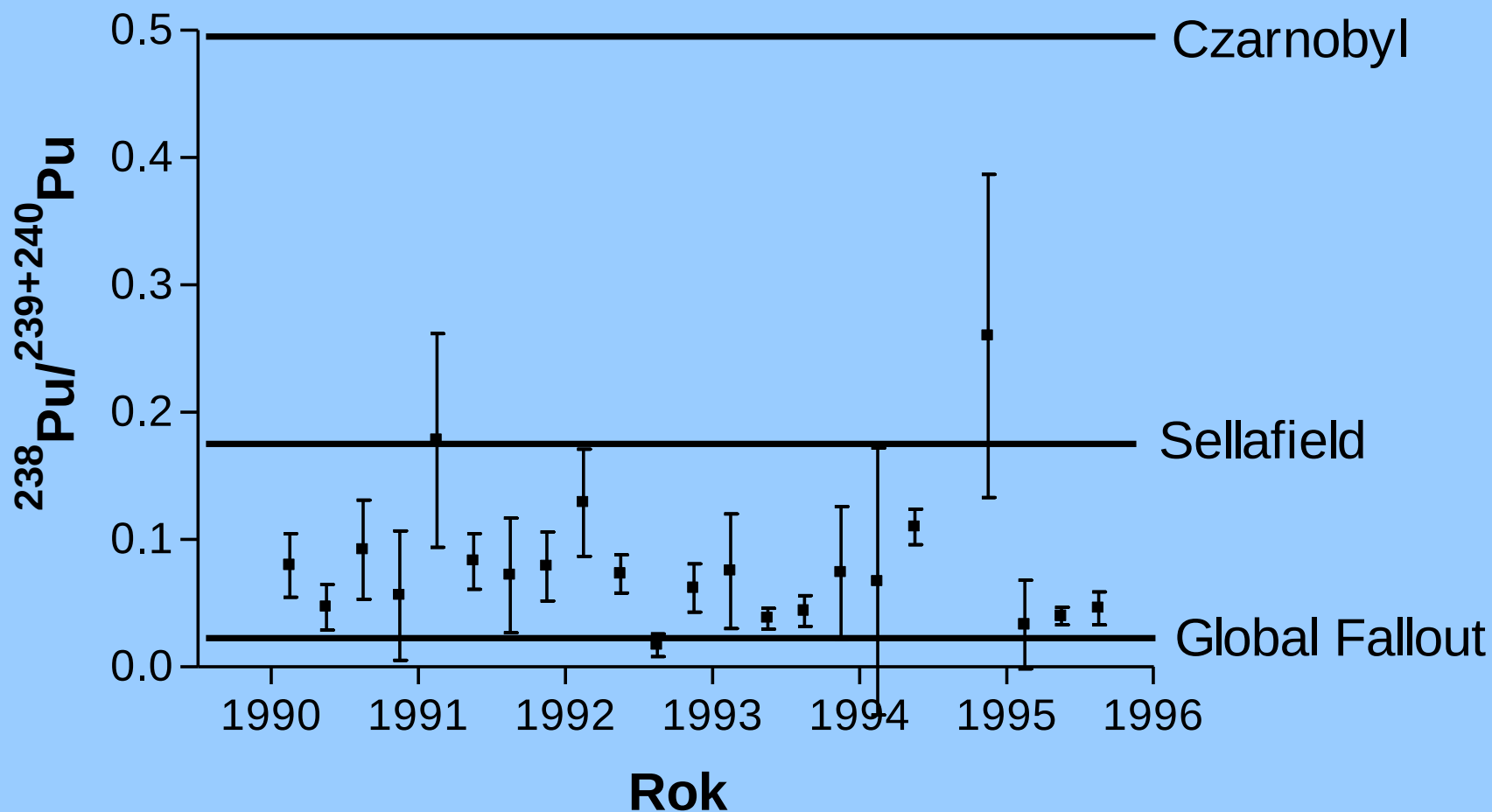
(SNAP 9, Sellafield???)

# Wstępne badania w powietrzu 90-96...

(JWM, P.Gaca, S. Błażej)



# Wstępne badania w powietrzu 90-96



# Badania Pu w powietrzu –1990-2007 (doktorat R.Kierepko)

*- Filtry kwartalne z Krakowa (pozostałe) i  
pełen zestaw z Białegostoku*

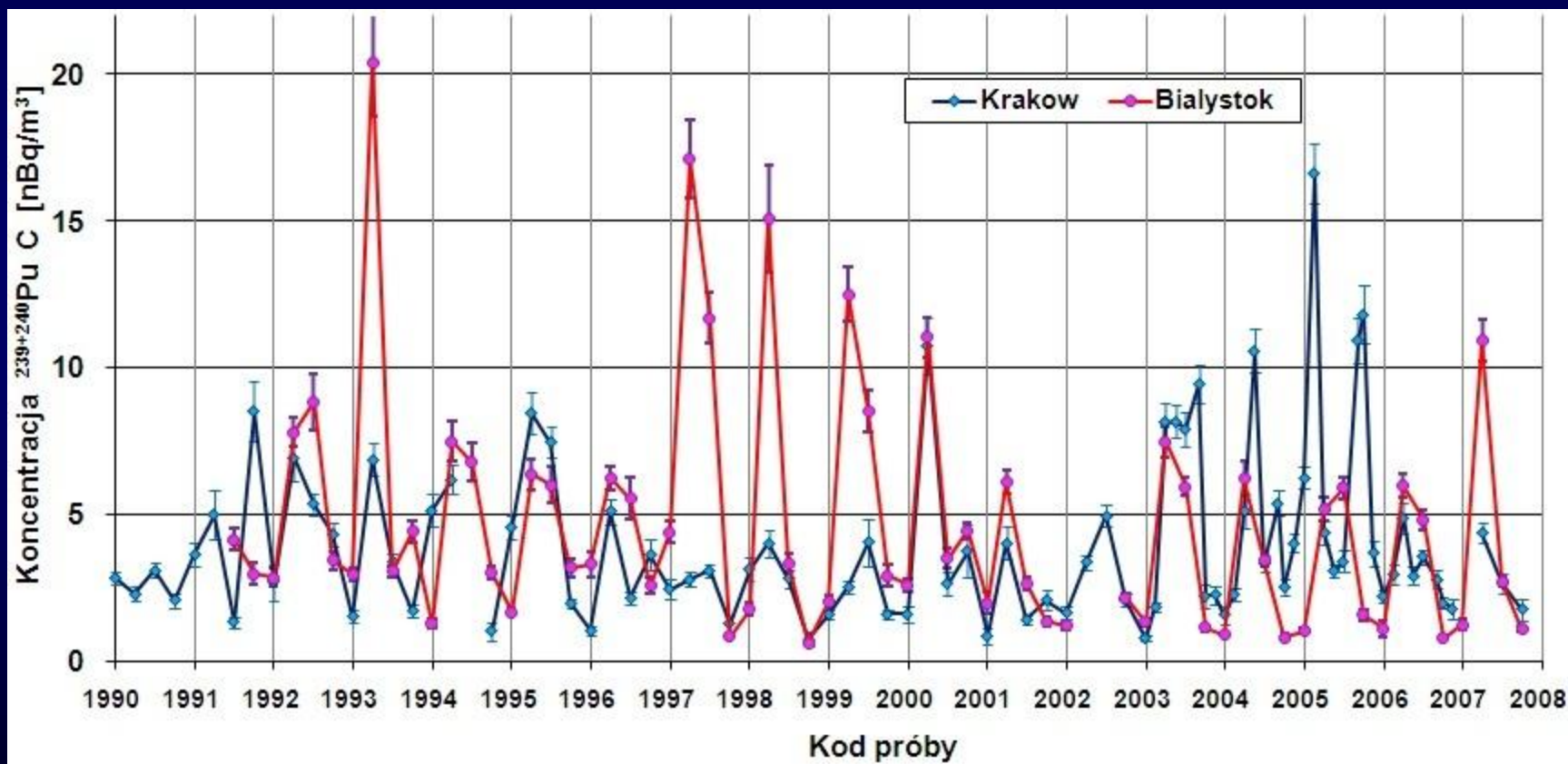
*ponad 100 nowych analiz alfa i prawie  
200 analiz ICP MS*

*Obrona 9 lipiec 2010*

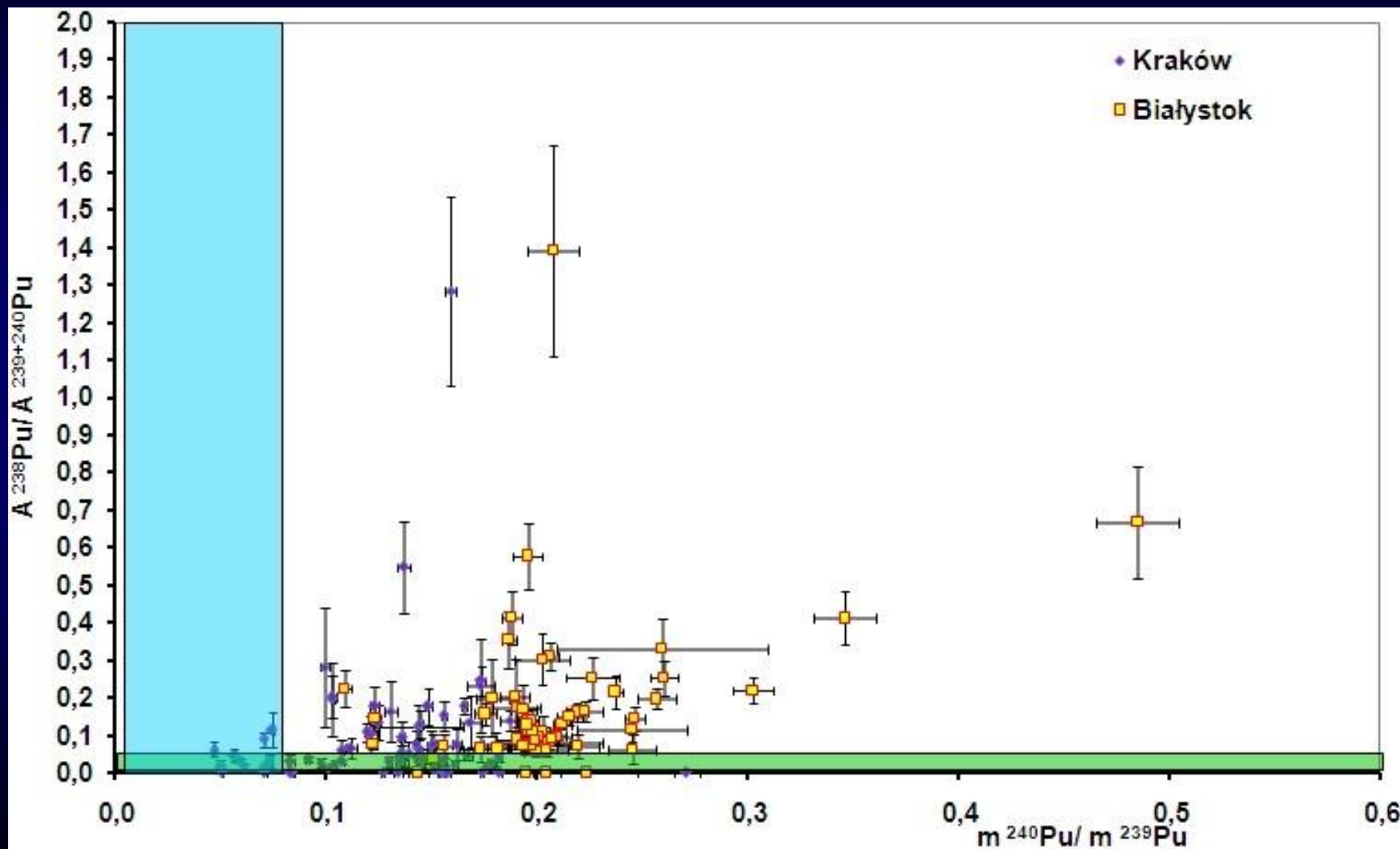
*Wyniki jeszcze nie opublikowane w  
czasopiśmie*

# Badania Pu w powietrzu –1990-2007

## (doktorat R.Kierepko)



# Stos. Pu w powietrzu '90-'07 (dr R.K. )

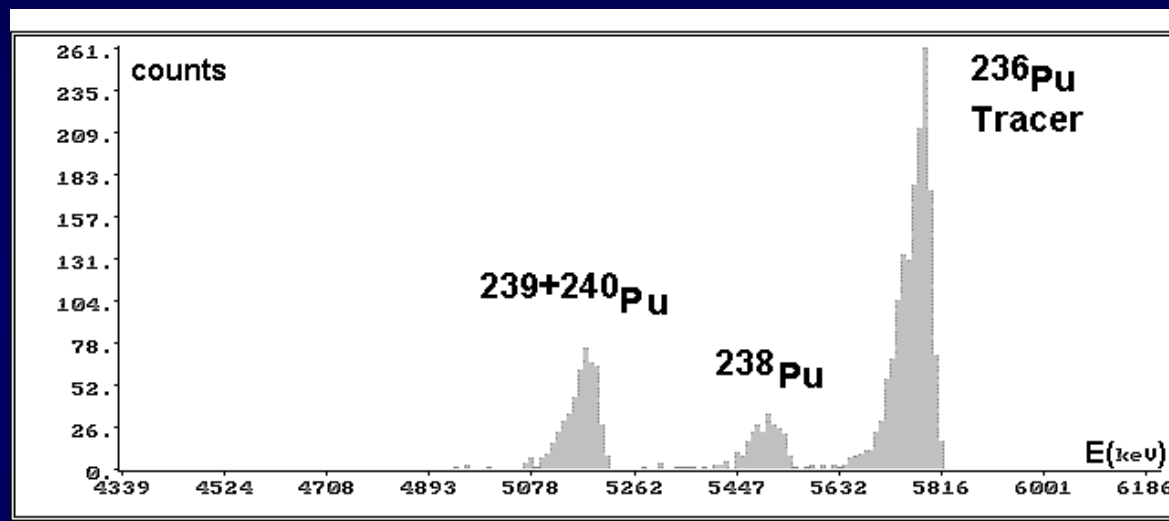


# Emitery alfa w grzybach

Grant KBN 6P04G 07520, 2001-3

(JWM et al., ARI 2002)

- Pu, U, Th (Ra)
- 5 gatunków ,
- 24 próbek z Polski
- +Hiszpanii
- +Ukrainy



Widmo promieniowania alfa Pu z próbki podgrzybka brunatnego z Puszczy Augustowskiej (1991),

m=190 g dw., tp= 5 dni,

$^{239+240}\text{Pu}$ :  $17 \pm 1$  mBq/kg,  $^{238}\text{Pu}$ :  $8 \pm 1$  mBq/kg

# Zakresy zmienności Pu

| Grzyb/ N            | <sup>239+240</sup> Pu [mBq/kg] |               | <sup>238</sup> Pu [mBq/kg] |               |
|---------------------|--------------------------------|---------------|----------------------------|---------------|
|                     | Min                            | Max           | Min                        | Max           |
| Prawdziwek 10       | 2.0 $\pm$ 0.4                  | 28 $\pm$ 4*   | <0.2                       | 1.0 $\pm$ 0.3 |
| Podgrzybek 8        | 1.3 $\pm$ 0.3                  | 81 $\pm$ 5    | <0.1                       | 31 $\pm$ 2    |
| Kania 2             | 5.4 $\pm$ 1.7                  | 9.0 $\pm$ 1.1 | 3.3 $\pm$ 2.5              | 3.6 $\pm$ 0.8 |
| Mleczaj chrząstka 3 | 4.9 $\pm$ 0.7                  | 6.3 $\pm$ 1.1 | <0.3                       | 2.6 $\pm$ 0.7 |
| Opieńka 1           | 3.5 $\pm$ 0.8                  |               | <0.7                       |               |

# Pu w roślinach naczyniowych

Grant KBN 6P04G 07520, 2001-03

- Próbki: borówek, szpilek świerka i sosny, kory świerka, wietlic, wrzosu i olchy (~40 g)
- 3 lokalizacje: Tułowice (Opolszczyzna), Węgierska Górka (Beskid Żywiecki), Płaska (Puszcza Augustowska)
- Ponadto: ściółki  $O_L$ ,  $O_F$ ,  $O_H$ , A i owady

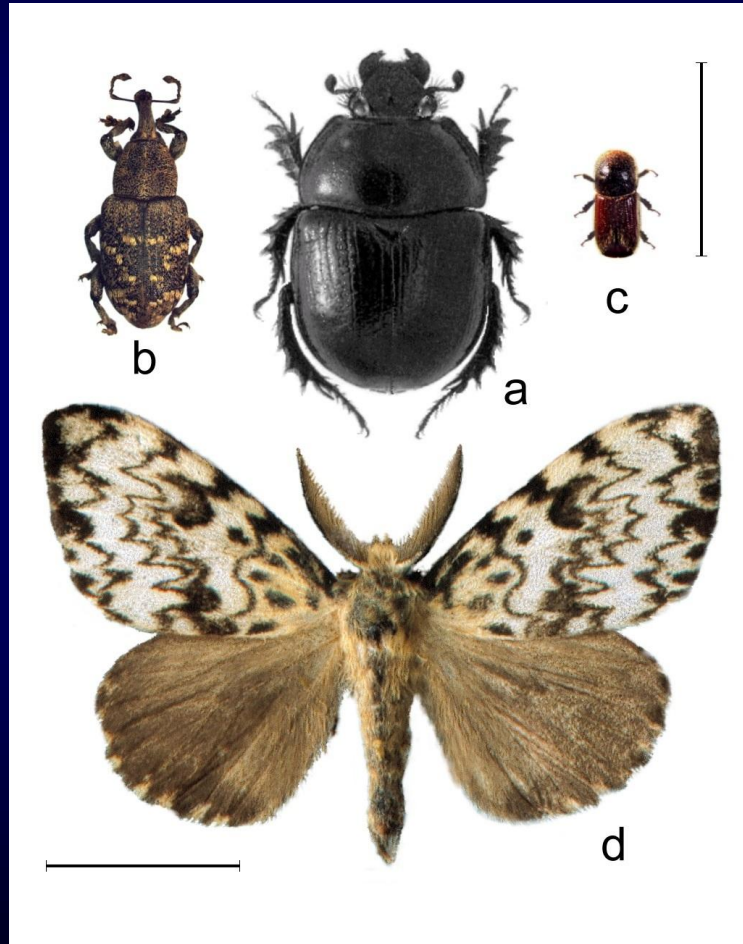
Rok 2001 i 2002

## $^{239+240}\text{Pu}$ [mBq/kg]:

Przykładowo:

- Borówka: od  $11_{\pm 1}$  (Płaska) do  $42_{\pm 4}$  (Beskid!).
- Szpilki (Płaska): od  $2.5_{\pm 0.6}$  do  $308_{\pm 23}$  (najwięcej w C, potem C+1, C+2 : translokacja?)
- Wietlice:  $138_{\pm 11}$  (Beskid),  $244_{\pm 22}$  (Płaska).

# Owady



(Współpraca z AR Kraków)

- Reprezentatywność
- Łańcuchy pokarmowe
- 2001 – badane gatunki:

a-żuk leśny

b-szeliniak sosnowiec

c-kornik drukarz

d-brudnica mniszka

Beskid, Tułowice, Augustów

- Starsze (1989-1999) żuk leśny i żuk gnojarsz z Tułowic, Puszczy Augustowskiej, Białowieskiej, Niepołomickiej

# Aktywności w owadach z Puszczy Augustowskiej 2001 (aw)

|                  | <sup>137</sup> Cs | <sup>40</sup> K<br>[kBq/kg] | <sup>90</sup> Sr | <sup>239+240</sup> Pu | <sup>238</sup> Pu<br>[Bq/kg] | <sup>241</sup> Am | <sup>243+244</sup> Cm |
|------------------|-------------------|-----------------------------|------------------|-----------------------|------------------------------|-------------------|-----------------------|
| <i>Żuk leśny</i> | 6.71±0.06         | 8.5±0.4                     | 0.16±0.02        | 5.7±0.4               | 1.20±0.13                    | 2.00±0.22         | 0.10±0.04             |
| <i>Żuk leśny</i> | 6.72±0.08         | 6.9±0.5                     | 0.14±0.02        | 5.5±0.4               | 1.49±0.17                    | 3.01±0.50         | 0.19±0.06             |
| <i>Brudnica</i>  | <0.073            | 5.2±1.4                     | 0.10±0.02        | 0.65±0.13             | <0.11                        | <0.7              |                       |
| <i>Kornik</i>    | 0.06±0.01         | 1.0±0.1                     | 1.27±0.32        | 0.02±0.01             | <0.01                        | <0.07             |                       |
| <i>Kornik</i>    | 0.29±0.02         | 2.10±0.24                   | 1.43±0.19        | <0.10                 | <0.02                        | <0.09             |                       |
| <i>Szeliniak</i> | 0.42±0.05         | 2.13±0.42                   | 0.18±0.02        | 2.07±0.17             | 0.10±0.04                    | 0.72±0.22         |                       |

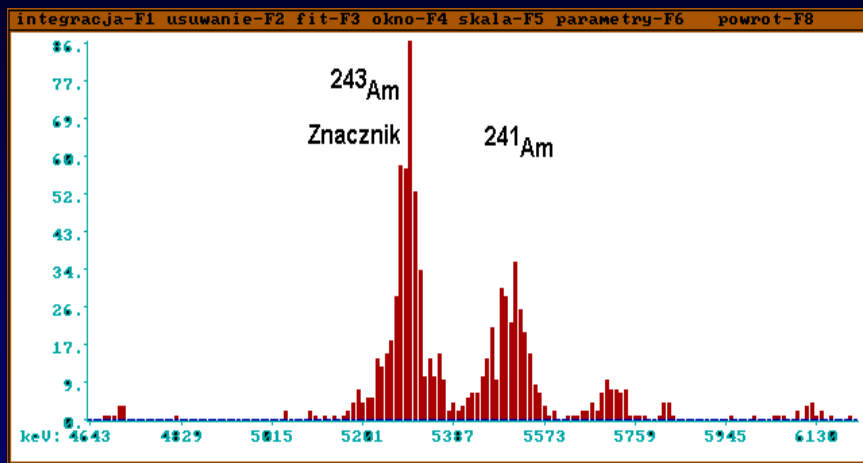
# Gdzie gromadzą się radionuklidy w żuku?

(jwm et al., JEM 2003)

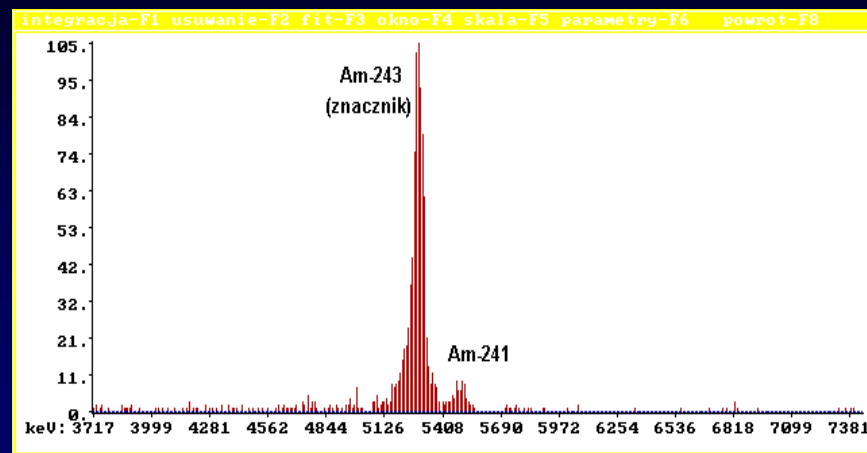
Normowany na procent masy ciała rozkład radionuklidów w organach 180 żuków z Puszczy Augustowskiej, 2001

| część ciała       | m [%] | $^{137}\text{Cs}$                 | $^{40}\text{K}$                   | $^{239+240}\text{Pu}$             | $^{90}\text{Sr}$                  | $^{241}\text{Am}$                 |
|-------------------|-------|-----------------------------------|-----------------------------------|-----------------------------------|-----------------------------------|-----------------------------------|
| Głowa             | 10.3  | $0.87 \pm 0.06$                   | $0.77 \pm 0.08$                   | $0.32 \pm 0.09$                   | $0.11 \pm 0.04$                   | $0.18 \pm 0.28$                   |
| Pok. skrzydeł     | 8.7   | $1.11 \pm 0.10$                   | $1.07 \pm 0.11$                   | $0.36 \pm 0.10$                   | $0.41 \pm 0.62$                   | $0.79 \pm 0.54$                   |
| Odnóża            | 21.9  | $0.81 \pm 0.06$                   | $0.77 \pm 0.08$                   | $0.07 \pm 0.03$                   | <b><math>1.62 \pm 0.43</math></b> | $0.04 \pm 0.01$                   |
| Org. tuł. i odwł. | 12.7  | <b><math>1.56 \pm 0.10</math></b> | <b><math>1.31 \pm 0.14</math></b> | <b><math>3.45 \pm 0.41</math></b> | <b><math>1.53 \pm 0.36</math></b> | <b><math>3.58 \pm 0.55</math></b> |
| Pozostałe         | 32.5  | $1.34 \pm 0.05$                   | <b><math>1.51 \pm 0.10</math></b> | $1.48 \pm 0.18$                   | <b><math>1.24 \pm 0.15</math></b> | $1.37 \pm 0.35$                   |

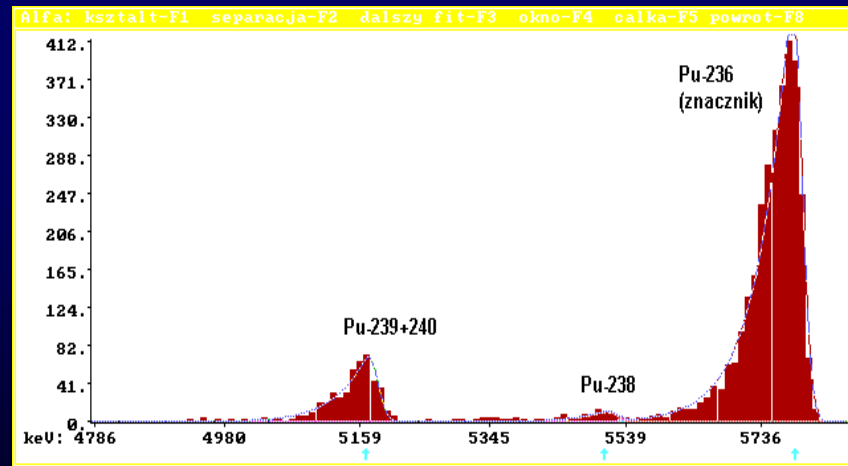
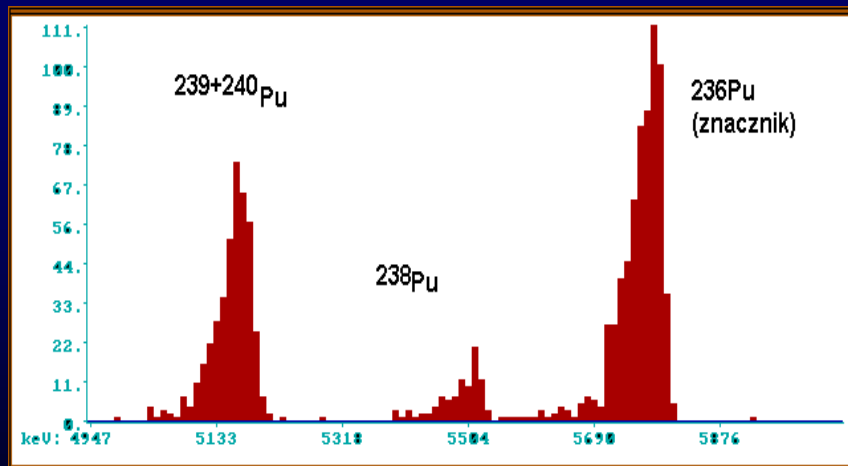
# Widma $\alpha$ Am i Pu żuka leśnego

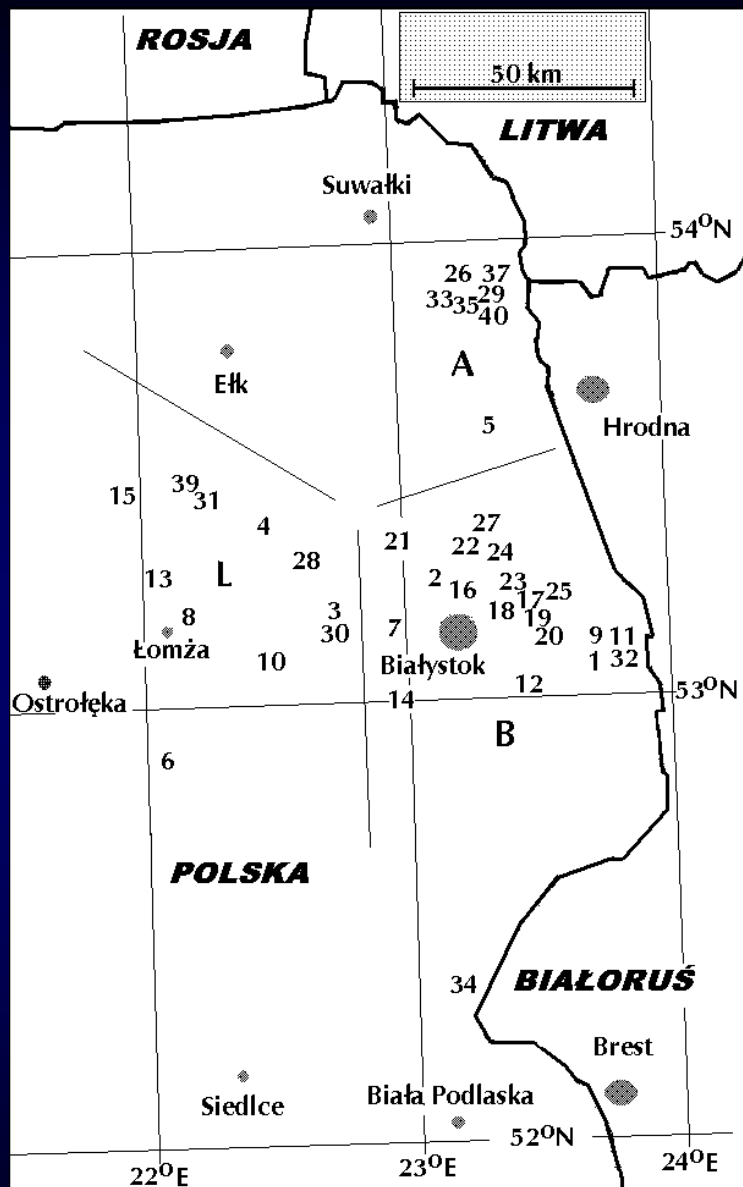


Augustów



Opolszczyzna





# Kości roślinożerców

Sarny, jelenie, łosie, dziki  
42 próbki kości z przedniej  
łapy

(39, NE: Augustów, Łomża i  
Białystok)

(3, S - Niepołomice)

# Aktywności w kościach roślinożerców(Bq/kg)

mediana /odchylenie standardowe

|                                    | Jeleń N=14          | Sarna N=15          | Łoś N=3             | Dzik N=5            |
|------------------------------------|---------------------|---------------------|---------------------|---------------------|
| $^{226}\text{Ra}$                  | 5.8 / 1.9           | 6.2 / 3.8           | 5.0 / 3.4           | 2.3 /3.0            |
| $^{228}\text{Ra}$                  | 6.9 / 3.4           | 5.3 / 2.6           | 7.0 / 5.1           | 1.2 /0.54           |
| $^{40}\text{K}$                    | 20.7/ 8.8           | 22.5 / 10           | 26.2/ 15.2          | 25.2/8.6            |
| $^{137}\text{Cs}$                  | 1.8/ 0.9            | 3.4 / 3.8           | 2.8/2.0             | 7.1/3.4             |
| $^{22}\text{Na}$                   | 0.35 / 0.20         | 0.36 /0.34          | 0/0.33              | 0.58 /0.52          |
| <b><math>^{90}\text{Sr}</math></b> | <b>318 /176</b>     | <b>167 /128</b>     | <b>139 / 127</b>    | <b>74 / 53</b>      |
| $^{239}\text{Pu}^*$                | $< 3 \cdot 10^{-3}$ | $< 3 \cdot 10^{-3}$ | $< 3 \cdot 10^{-3}$ | $< 3 \cdot 10^{-3}$ |
| $^{241}\text{Am}$                  | $< 3 \cdot 10^{-3}$ | $< 3 \cdot 10^{-3}$ | $< 3 \cdot 10^{-3}$ | $< 3 \cdot 10^{-3}$ |

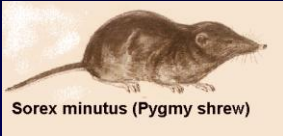
\* - jeden wynik  $> \text{MDA}$ ;  $6 \pm 2 \text{ mBq/kg}$

# Kości małych ssaków

(Pu i Am: JWM et al., JRNCh, 2003)



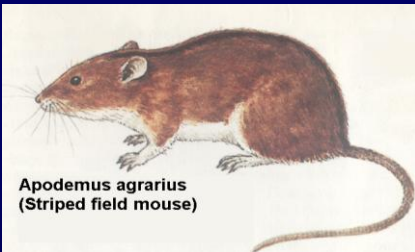
*Sorex araneus* (Common shrew)



*Sorex minutus* (Pygmy shrew)



*Crocidura leucodon* (White-toothed shrew)



*Apodemus agrarius*  
(Striped field mouse)



*Microtus arvalis* (Common vole)

Owadożerne: ryjówki: aksamitna i malutka,  
zębielek białawy

(Współpraca z UMCS)

- Czaszki z wypluwek płomyków
- Okolice Zamościa, 1998-2001
- N=13, m~50 g (setki osobników)

(Pilotażowo w ramach Grant KBN 6P04G 07520)



*Tyto alba* (Barn owl)

Gryzonie: mysz polna i nornik

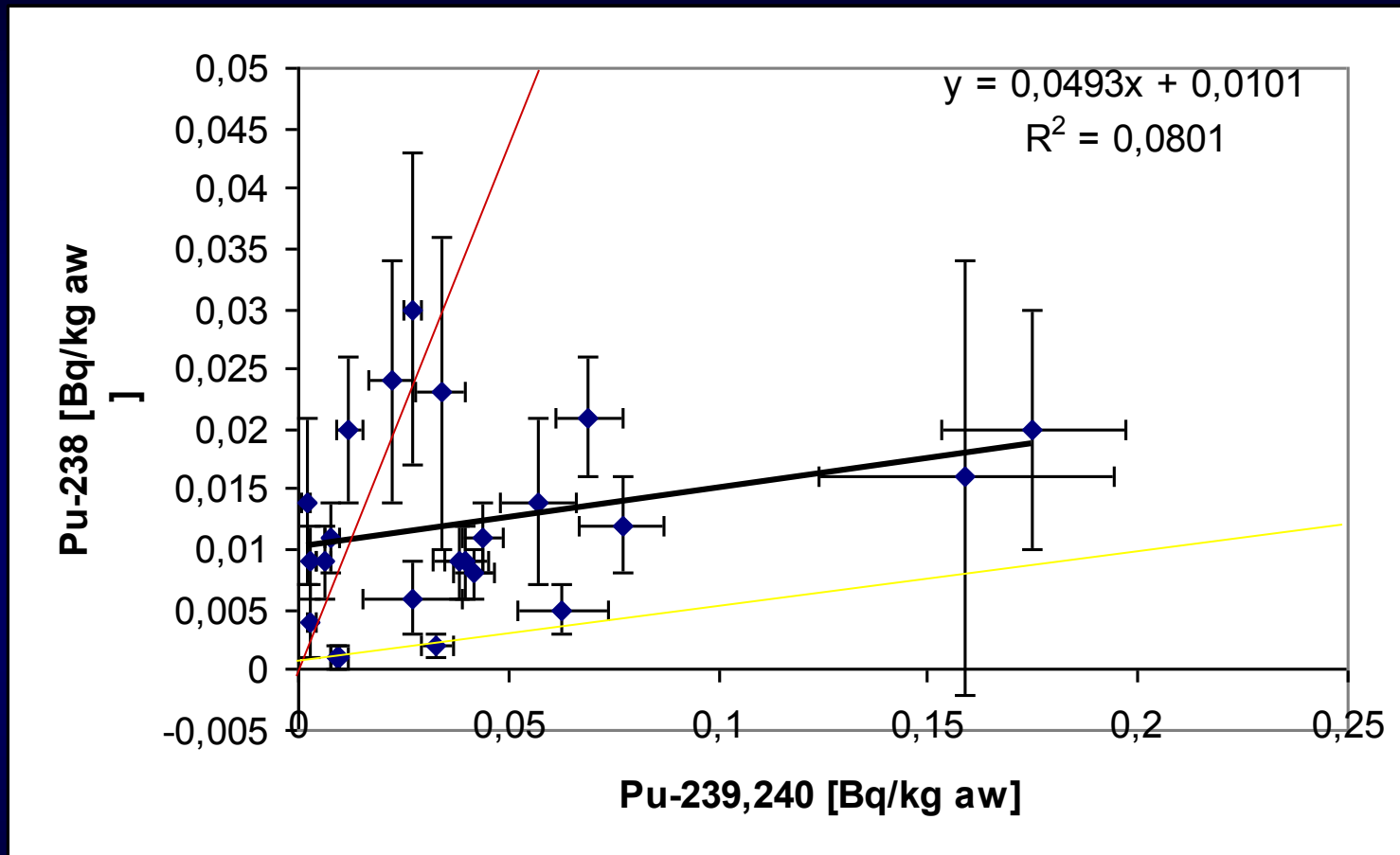
# Wyniki Pu, Am

| Rząd              | Parametr              | $^{239+240}\text{Pu}$ | $^{238}\text{Pu}$<br>[mBq/kg ] | $^{241}\text{Am}$ |
|-------------------|-----------------------|-----------------------|--------------------------------|-------------------|
| Gryzonie (8)      | mediana               | 5.1                   | 0.0                            | 5.9               |
|                   | średnia arytmetyczna  | 17.7                  | 2.9                            | 8.0               |
|                   | odchylenie std.       | 35.4                  | 7.4                            | 9.2               |
|                   | średni błąd poj. pom. | 2.0                   | 2.1                            | 4.1               |
| Owadożerne<br>(5) | mediana               | 12.9                  | 0.0                            | 11.5              |
|                   | średnia arytmetyczna  | 9.6                   | 1.3                            | 9.7               |
|                   | odchylenie std.       | 7.5                   | 2.1                            | 7.5               |
|                   | średni błąd poj. pom. | 1.3                   | 2.8                            | 3.2               |

# Ptaki

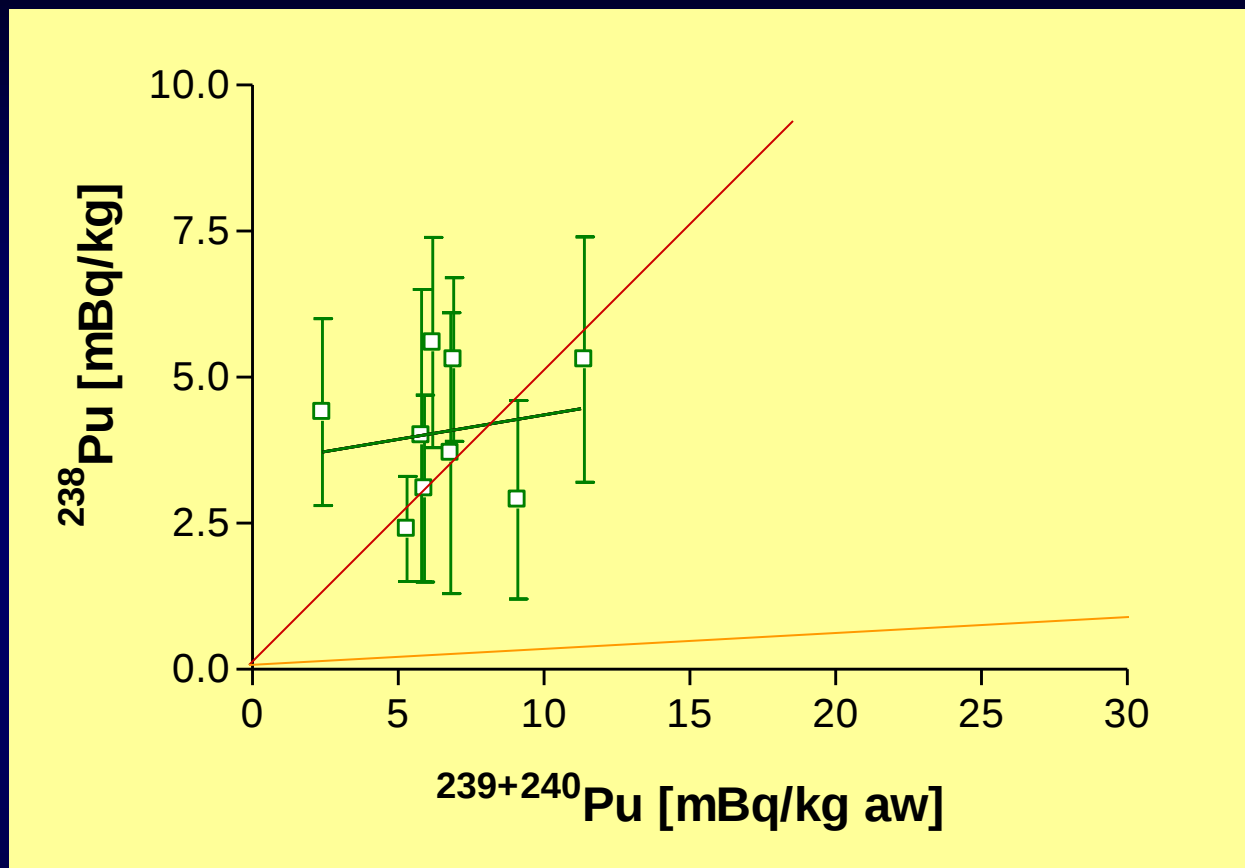
| Gatunek        |            | $^{90}\text{Sr}$<br>[Bq/kg <sub>ash</sub> ] | $^{239+240}\text{Pu}$<br>[mBq/kg <sub>ash</sub> ] | $^{238}\text{Pu}$<br>[mBq/kg <sub>ash</sub> ] |
|----------------|------------|---------------------------------------------|---------------------------------------------------|-----------------------------------------------|
| Ptaki          |            |                                             |                                                   |                                               |
| Pójdźka(3)     | Min        | <5                                          | 0.7±0.3                                           | <1.3                                          |
|                | Max        | 19.6±1.6                                    | 3.2±1.1                                           | <24                                           |
|                | Śred. błąd | 2.7                                         | 3                                                 | 12                                            |
| Płomykówka(6 ) | Min        | 9.7±0.9                                     | <4                                                | <2                                            |
|                | Max        | 46.8±3.6                                    | 51±7                                              | <11                                           |
|                | Sred.Aryt. | 26.8                                        | 14.7                                              |                                               |
|                | S.D.       | 15.5                                        | 20.9                                              |                                               |
|                | Śred. Błąd | 2.7                                         | 5.8                                               | 8                                             |
| Bielik (7)     | Min        | 4.6±1.2                                     | <1.7                                              | <3                                            |
|                | Max        | 31±2.5                                      | 21±4                                              | 6.1±1.4                                       |
|                | Sred.Aryt. | 13.9                                        | 3.8                                               | 1.5                                           |
|                | S.D.       | 10.3                                        | 7.9                                               | 2.3                                           |
|                | Śred. Błąd | 1.8                                         | 4.0                                               | 1.1                                           |
| Orlik (2)      | Min        | 8.5±1.1                                     | <4.6                                              | <2.9                                          |
|                | Max        | 4.2±2.1                                     | 4.2±2.1                                           | <3.3                                          |

# Ptaki – pochodzenie Pu



**Czarnobyl (0.5)** lub **GF (0.03)?** – mieszane!

# Lisy – pochodzenie Pu



*(Jeden usunięty - czysty GF)*

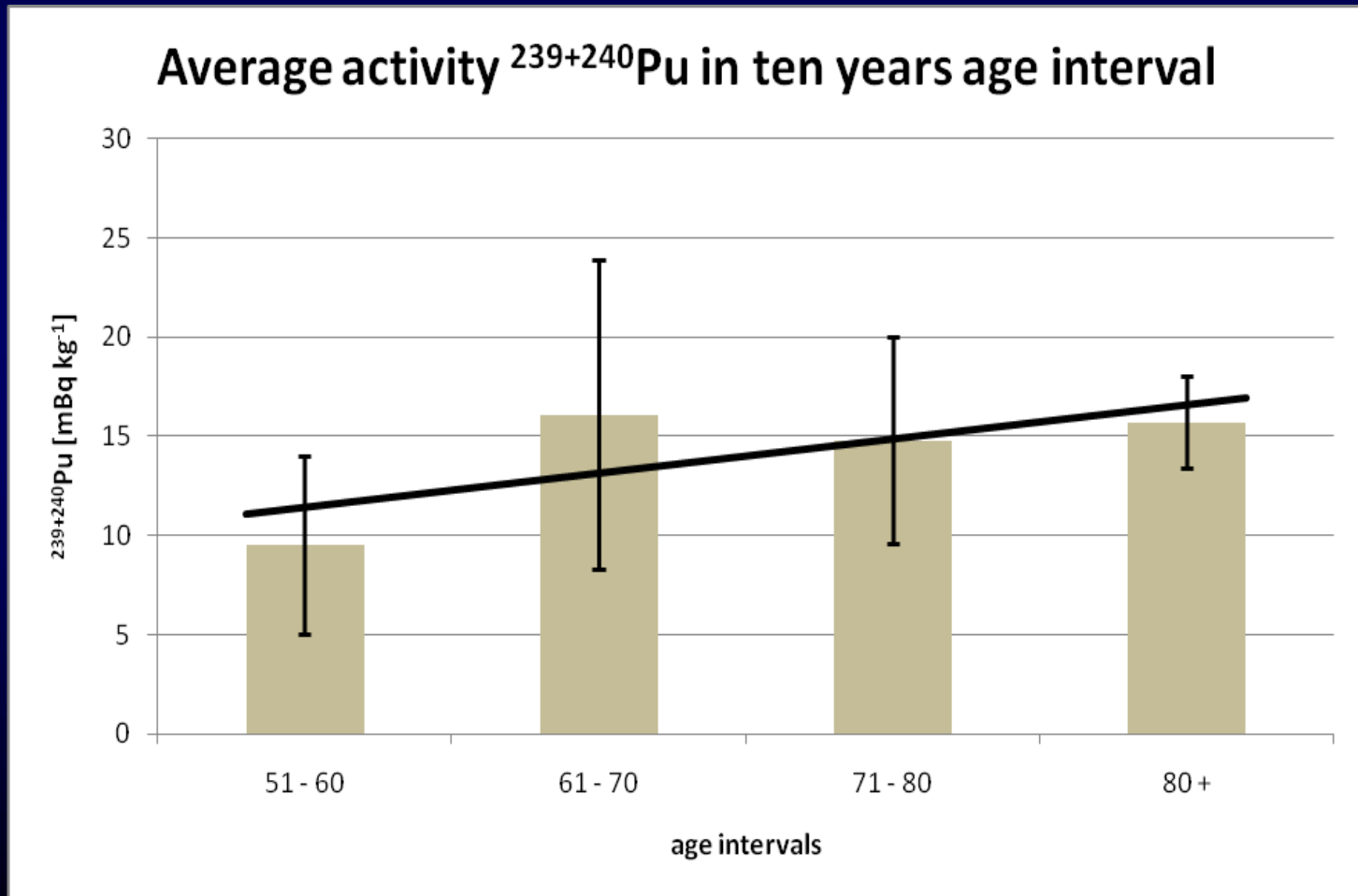
**Czarnobyl (0.5) raczej niż GF (0.03), ale...???**

# Porównanie wyników w kościach

- $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{40}\text{K}$ , – dla lisów i drobnych ssaków podobnie jak dla dużych roślinożerców. Dla ptaków na ogół znacznie więcej  $^{40}\text{K}$  (?) przy małych ilościach  $^{137}\text{Cs}$
- $^{90}\text{Sr}$  znacznie mniej dla wszystkich grup niż dla dużych roślinożerców
- Brak wyraźnych różnic gryzonie/ owadożerne/lisy/ptaki
- Brak widocznej kumulacji na wyższych piętrach troficznych
- Tam , gdzie to wyraźnie - mały udział frakcji czarnobylskiej Pu (~15 %). Niewykluczony większy udział ale duże błędy.
- Względnie duże aktywności Pu, Am dla małych ssaków i dla lisów → **inhalacja Pu, Am?** (ale podobnie też dla ptaków! )
- Słabo widoczne zróżnicowanie geograficzne

# Kości ludzi

(współpraca z V Kliniką Wojskową w Krakowie, dr hab.. N med.. E.Golec;  
grant MNII E.Tomankiewicz, w druku w JER)



# Zamiast podsumowania – o czym nie powiedziałem?

- Badaniach poza Polską (Antarktyda, Arktyka, Zona Czarnobylska, konkrecje pacyficzne, USA...)
- Kilku innych projektach zrealizowanych dla próbek z Polski
- Kontroli jakości analiz
- Innych niż analizy Pu pomiarach robionych w PBSRŚ
- Planach na przyszłość
- .....