

В. К. Шинкаренко, А. М. Новіков*Інститут проблем безпеки АЕС НАН України, вул. Лисогірська, 12, Київ, 03028, Україна*

Викиди ^{137}Cs в повітря при спалюванні забрудненої біомаси. Огляд лабораторних досліджень

Ключові слова:

лісові пожежі,
лабораторне спалювання
забрудненої біомаси,
емісія ^{137}Cs з димом

Зроблено огляд літератури щодо емісії цезію під час лабораторного спалювання забрудненої біомаси та представлено результати порівняння емісії ^{137}Cs при горінні та тління, отримані авторами. Зразок лісової підстилки, зібраної в Чорнобильській зоні відчуження, спалювали в спеціально сконструйованій печі в режимах полум'я і тління. Під час полум'яного спалювання на аерозольному фільтрі було зареєстровано 8,4 % активності ^{137}Cs , тоді як під час тління з іншої частини того ж зразка в повітря було вивільнено менше 1 %. Результат добре узгоджується з відомими літературними даними і демонструє сильну залежність викидів ^{137}Cs від режиму горіння. Виявлені розбіжності в літературних даних щодо коефіцієнтів емісії можуть бути обумовлені різницею в дисперсному складі досліджуваних фракцій диму, а також використанням дещо некоректної методики визначення активності емісії по залишковій активності золи, при якій всі втрати активності в ході експерименту автоматично відносяться до емісії з димом. Зроблено висновки, що за різних початкових умов лісової пожежі коефіцієнти емісії ^{137}Cs навіть для однієї і тієї ж ділянки лісу можуть суттєво відрізнятися.

Вступ

Лісові пожежі та спалювання біомаси супроводжуються викидами в атмосферу аерозольних частинок, вуглекислого та чадного газів, а також парів широкого спектру органічних сполук [1, 2]. На радіоактивно забруднених територіях пожежі можуть спричинити викиди акумульованих радіонуклідів, що становить потенційну небезпеку. Оцінка таких викидів в атмосферу [3–8] та їхніх радіоекологічних наслідків як на місцевому, так і на глобальному рівнях є предметом активних досліджень [9–16].

Спалювання біомаси є одним з найпотужніших джерел генерації аерозольних часток у світі, яке ретельно вивчається з точки зору його радіаційного, геохімічного та екологічного впливу. Ці дослідження проводились у різних формах, включаючи лаборатор-

ні спалювання, натурні експерименти, дистанційне зондування й моделювання. Однак різноманітність методів дослідження ускладнює порівняння та аналіз результатів [17].

Аналогічна ситуація спостерігається і в галузі дослідження викидів радіонуклідів під час лісових пожеж на забруднених територіях. Зокрема, для ^{137}Cs , одного з головних компонентів радіоактивного забруднення біосфери, літературні дані про його частку, що потрапляє в атмосферу під час лісових пожеж, розходяться більш ніж на порядок. У роботі [3] проводили лабораторне спалювання різних видів палива рослинного походження з домішкою стабільного ^{133}Cs . У результаті викид цезію в атмосферу під час лісової пожежі було оцінено в 40–70 % від його вмісту в паливі. В іншій роботі, де теж у лабораторних умовах спалювали лісовий опад, збагачений ^{133}Cs ,

© В. К. Шинкаренко, А. М. Новіков, 2024. Ліцензія CC BY 4.0

у зібраних аерозольних частках було зафіксовано рівень викиду ^{137}Cs від 1 до 2,5 % [4].

Необхідно відзначити, що значний розкид даних про викид в атмосферу під час лісових пожеж та спалювання біомаси спостерігається також і для більш поширеного і більш дослідженого хімічного аналога цезію — калію. Так, середні значення викиду калію для позатропічних лісів згідно з літературними даними, наведеним в огляді [18], коливаються від 0,08 до 0,41 г на 1 кг палива.

Метою цієї роботи є огляд літературних даних щодо викидів цезію при спалюванні забрудненої біомаси та експериментальна перевірка впливу режиму горіння на ефективність цього процесу.

Матеріали та методика експерименту

Для дослідження була використана проба лісової підстилки із зони відчуження ЧАЕС, відібрана поблизу с. Копачі. Проба після витримання в сухому приміщенні й досягнення повітряно-сухої вологості була старанно перемішана і розділена на кілька частин масою 50–60 г. Після визначення активності ^{137}Cs за допомогою напівпровідникових спектрометрів *SBS* та *Canberra* частини проби були спалені в умовах полум'яного та тліючого режимів горіння в спеціально виготовленій пічці, що забезпечувала повне уловлювання димових часток на пористому скляному фільтрі [19]. Для створення полум'яного режиму горіння пробу розпушували й запалювали знизу крізь колосникову сітку. Для забезпечення ж переважно тліючого горіння пробу злегка обтискували, під пробу на колосникову сітку вкладали аркуш цигаркового паперу, а саму пробу підпалювали зверху.

Результати та обговорення

Виявлені в літературі дані щодо лабораторних визначень атмосферних викидів цезію при спалюванні забруднених матеріалів рослинного походження наведено в табл. 1. Спробуємо пояснити наявні розбіжності визначень відсотків викиду цезію. Здавалося б, що завдяки контрольованим умовам лабораторного спалювання, результати, одержані різними дослідниками, повинні були б бути більш близькими. На наш погляд, існує кілька причин таких розбіжностей.

Насамперед це невизначеність терміну «викид з димом». Справа в тому, що аерозольні частки в димі від спалювання органічних решток являють собою складну суміш часток різного розміру. Вони включа-

ють субмікронні частки конденсаційного походження, більш крупні агрегати таких часток (зазвичай діаметром до 2,5–15 мкм), грубі (2–20 мкм) та гігантські частки попелу діаметром до міліметра і більше [1, 17]. Субмікронні частки можуть транспортуватися потоками повітря на великі відстані, тоді як гігантські частки попелу випадають, як правило, поблизу місця пожежі. Залежно від мети дослідження і конструкції обладнання термін «викид з димом» може стосуватись різних фракцій аерозольних часток від часток певного розміру і до всього, що не залишилося в золі і вважається викинутим з димом.

Уловлювання аерозольних часток поблизу зони горіння, залежно від конструктивних особливостей лабораторної установки, може супроводжуватись захопленням на фільтр певного відсотка часток золи. Зважаючи на більш високу питому активність ^{137}Cs в золі та відносно велику масу таких часток, це явище може призвести до суттєвого завищення відсотка викинутого ^{137}Cs .

При визначенні відсотка викиду за залишком у золі до викиду з димом, разом із власне димовими аерозольними частинками, зараховуються також усі частинки попелу, що покинули зону горіння. Існує також ризик завищення результатів через втрати частини золи на етапі від завершення спалювання до вимірювання її активності. Деяка кількість золи неминуче залишається в контейнері для спалювання, частина може бути втрачена під час пересипання, а в умовах відкритого спалювання частина золи може бути рознесена вітром. Як видно з таблиці, незважаючи на ці недоліки, цей метод набув широкого поширення завдяки простоті технічної реалізації.

З таблиці видно, що автори деяких робіт замість дослідження поведінки ^{137}Cs досліджували поведінку стабільного ізотопу ^{133}Cs . Як відомо, єдиний стабільний ізотоп ^{133}Cs у природі є досить рідкісним розсіяним елементом. Його концентрація в ґрунтах і рослинності зазвичай дуже низька, коливаючись у межах $<1\div30$ мг/кг для ґрунтів і $<0,1\div3$ мг/кг для рослинності [18]. Серед великої кількості техногенних радіоактивних ізотопів цезію – в основному продуктів поділу важких ядер – лише три мають періоди піврозпаду більше 2 років. Це ^{135}Cs з періодом напіврозпаду 1,33 млн років, ^{137}Cs з періодом напіврозпаду 30,1671 року і ^{134}Cs з періодом напіврозпаду 2,0652 року. З них найбільш важливим у радіологічному відношенні є ^{137}Cs , оскільки внаслідок повільного розпаду активності ^{135}Cs занадто малі, а ^{134}Cs , навіть після Фукусімської аварії, на цей час у навколишньому середовищі практично відсутній [21].

Порівнюємо співвідношення мас ^{137}Cs та ^{133}Cs у зразку сухої рослинної маси, що містить 50 мкг/кг стабільного ^{133}Cs із забрудненням ^{137}Cs до рівня 100 кБк/кг. Оскільки активність 1 г ^{137}Cs становить $3,215 \cdot 10^{12}$ Бк [22], маса ^{137}Cs з активністю 100 кБк $\approx 31,3$ нг, а співвідношення мас $^{133}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ відповідно ≈ 1600 . Звідси випливає, що загальний вміст атомів цезію у зразках ґрунтів чи рослинності від рівня забруднення радіоактивним цезієм не залежить. Хімічні властивості атомів стабільного та радіоактивного цезію однакові. Але оскільки під час аварійного викиду радіоактивного цезію склад його сполук кардинальним чином відрізнявся від сполук стабільного цезію в навколишньому середовищі, то поведінка цих ізотопів у початковий період теж буде різною. З плином часу процеси міграції та ізотопного обміну наблизяться до рівноважного розподілу. Для ізотопів цезію цей процес виявився досить-таки повільним — з часу Чорнобильської аварії вирівнювання співвідношень $^{137}\text{Cs}/^{133}\text{Cs}$ в ґрунті і рослинності ще не відбулося.

Якщо вважати, що практично весь цезій потрапив до складу біопалива через кореневе надходження, то з цієї точки зору цезій у складі біопалива вже термалізований — хімічні властивості сполук його ізотопів тотожні. Але на сьогодні ще зберігається ймовірність знаходження в складі палива гарячих часток із зовсім іншим складом і, відповідно, властивостями.

Установлено, що відсоток викинутого в атмосферу цезію значно зростає з підвищенням температури спалювання чи нагрівання золи [3, 5, 17, 24, 25]. Очевидно, це пов'язано з процесами утворення та випаровування летких сполук цезію з подальшою

конденсацією їхніх парів на аерозольних частках по мірі охолодження диму. Такими леткими і стійкими за характерних для полум'я умов сполуками цезію насамперед є його галогеніди. На рис. 1 представлено залежності тиску насичених парів галогенідів деяких лужних металів від температури. Бачимо, що галогеніди цезію більш леткі порівняно з елементами аналогами — калієм і рубідієм і що найбільш летким серед них є йодид цезію. Щоправда, ймовірність утворення такої сполуки досить мала, враховуючи низьку концентрацію атомів йоду в навколишньому середовищі. З огляду на більшу поширеність атомів хлору порівняно з бромом і йодом при згорянні палива найбільш імовірним є утворення CsCl з подальшим потраплянням в атмосферу у вигляді парів та їхньою конденсацією на аерозольних частках. Схожим чином ведуть себе також сполуки калію й рубідію. Так, серед неорганічних видів викидів, як правило, домінують лужні землі та галогеніди. Згідно з даними лабораторних спалювань калій знаходиться у формі переважно KCl з незначним внеском K_2SO_4 . На калій та хлорид припадає по 2–5 % маси тонкодисперсних частинок. Висловлено припущення, що хлорид калію присутній в ядрі частинок диму з чорним вуглецем. Сірка у формі сульфату також присутня на рівні ~ 1 % від маси дрібнодисперсних частинок [27, 28].

Серед інших летких сполук цезію в процесі переробки опроміненого ядерного палива виявлено його пертехнетат CsTcO_4 з температурою плавлення 590°C [24]. Але на відміну від ядерного палива в забрудненій радіонуклідами лісовій рослинності ізомери технецію якщо й присутні, то в незрівнянно малих кількостях, порівнюючи навіть зі стабільним йодом.

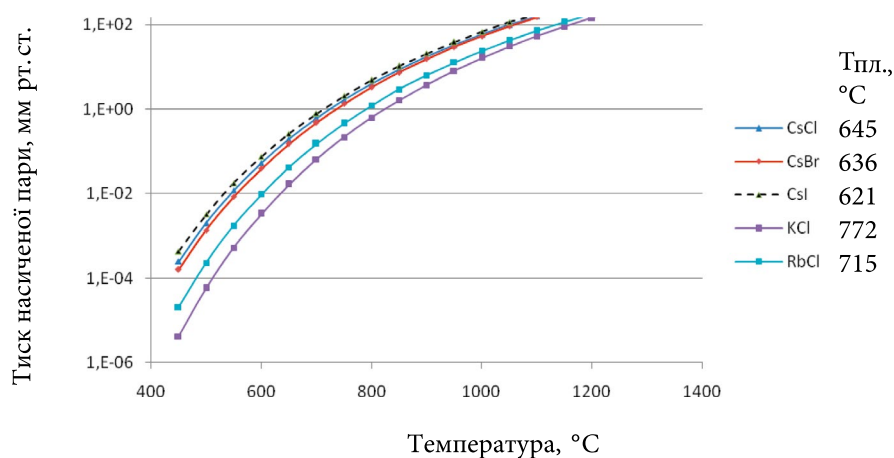


Рис. 1. Залежність тиску насиченої пари галогенідів деяких лужних металів від температури [26]. Поряд з формулою сполуки наведена її температура плавлення

Результати визначення частки викинутих в атмосферу радіонуклідів при спалюванні біомаси

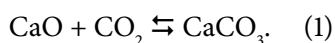
Об'єкт дослідження	Методика дослідження	Спосіб визначення	Цезій у повітрі, %	Літ.
Дерево, сосна, дошки з корою, окроплені розчином солі ^{133}Cs перед спалюванням	Додавання стабільного ^{133}Cs до палива. Відкрите спалювання. Дрова — вогнище у великому контейнері, солома — валок з контейнерами для збору золи під валком	Вміст ^{133}Cs у паливі мінус вміст у золі	89	3
Дерево, осика, дошки з корою, окроплені розчином солі ^{133}Cs та витримані протягом доби перед спалюванням			44	
Солома (три спалювання)			7; 60; 35	
Сумарна оцінка викиду при спалюванні рослинності під час польової пожежі (деревина, солома, торф та зелені рослини)	Додавання стабільного ^{133}Cs до палива. Лабораторне спалювання в муфельній пічці при контрольованій температурі		40–70	
Забруднені лісові горючі матеріали	Спалювання в пічці, відбір частини димового потоку	Об'ємна активність ^{137}Cs у димі	3–5*	8
Поверхнева підстилка та гілки	Спалювання малих наважок (≈ 50 мг) забруднених матеріалів у трубчатій печі при 800°C	Активність ^{137}Cs в аерозольних частках	45 ± 7	5
Гілки вільхи			77 ± 9	
Листя вільхи			92 ± 5	
Органічний ґрунт			$2,4 \pm 0,5$	
Хвоя сосни	Додавання стабільного ^{133}Cs до палива. Відкрите спалювання в спеціальному приміщенні, відбір аерозолію на висоті 15 м	^{133}Cs на фільтрі	1–2,5	4
Торф, тління			0	
Хвоя сосни		Вміст ^{133}Cs у паливі мінус вміст у золі	40–50	
Бореальний ліс. Суха лісова підстилка	Моделювання умов верхової пожежі, нагрівання зразка інфрачервоним випромінюванням	Активність ^{137}Cs в паливі мінус активність у золі	29	6
Органічний ґрунт (потенційно можливі значення)			< 37	
Органічний ґрунт (вміст кисню в повітрі 21 %)			$49,6 \pm 7,5$	7
Органічний ґрунт (вміст кисню в повітрі 5–13 %)			$14,3 \pm 13,2$	
Торф			< 39	6
Торф (вміст кисню в повітрі 21 %)			$31,4 \pm 2,1$	7
Торф (вміст кисню в повітрі 5–13 %)			$7,6 \pm 6,3$	
Лісова підстилка (соснові голки, тощо) зібрані в зоні відчуження ЧАЕС	Спалювання в пічці, полум'яне горіння	Повне уловлювання диму, активність на фільтрі	8,7	**
	Спалювання в пічці, тліюче горіння		< 1	

* Автори наводять цифри без пояснення способу їхнього одержання.

** Ця робота.

Концентрація атомів стабільного ^{133}Cs в рослинній масі мала в порівнянні з вмістом інших елементів, у процесі згоряння частина атомів цезію входить до складу зольних сполук у вигляді домішки з формуванням твердих розчинів. Навіть у разі штучного збільшення вмісту сполук цезію (CsNO_3 чи Cs_2CO_3) у золі до 10 % від її маси рентгенодифракційними методами не було зафіксовано утворення окремих цезійвмісних фаз [25].

Нагрівання золи супроводжується зсувом рівноваги реакцій у бік утворення летких сполук, здатних покинути зону реакції. Цей процес у твердому середовищі контролюється дифузією і, отже, пришвидшується з підвищенням температури та тривалості нагрівання золи. Наприклад, після нагрівання золи, збагаченої цезієм до ~10 %, протягом 7 год при температурі 600 °C у залишку залишилось близько 1 % цезію, тоді як при температурі 700 °C — лише 0,1 % [25]. Аналогічна поведінка спостерігається для інших елементів, здатних утворювати леткі сполуки за високих температур. Так, у роботі [29] досліджували залежність від температури виходу золи та її складу при спалюванні соснової тирси в електропечі. За підвищення температури від 538 до 1093 °C вихід золи зменшився на 45 %. Основною причиною зниження маси золи є утворення карбонатів за низьких температур спалювання та їхнє розкладання за високих:



З ростом температури спалювання відсоток вмісту більшості металів у золі збільшувався внаслідок вивільнення CO_2 і зменшення загальної маси золи, проте вміст калію (рис. 2), натрію та цинку зменшу-

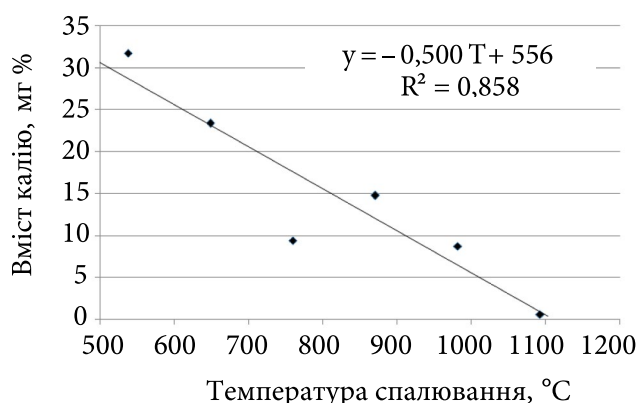


Рис. 2. Залежність відсотка вмісту калію в золі соснової тирси від температури спалювання. Графік побудований на основі даних, наведених у [29]

вався, імовірно, завдяки відносно низьким температурам кипіння їхніх сполук [29].

Ще більша різниця у відсотках викиду (іноді більш ніж на порядок) спостерігається при переході від полум'яного горіння до тліючого [3–5, 7, 14, 17]. Цьому можуть сприяти два фактори — зниження температури горіння; зона тління, як правило, вкрита шаром більш холодного попелу, який може слугувати субстратом для конденсації летких сполук цезію. У нашому експерименті при спалюванні лісової підстилки на аерозольному фільтрі осіло 8,4 % активності ^{137}Cs для полум'яного режиму горіння і менше 1 % для тліючого.

У процесі горіння під дією високих температур відбувається піроліз органічного палива з утворенням широкого спектра органічних сполук у газоподібному стані. Згоряння цих сполук і утворює полум'я. Під дією високих температур частина органіки в полум'ї може відщеплювати водень та воду з утворенням поліароматичних сполук із графітоподібною структурою. Ці сполуки виступають ядрами конденсації вуглецю з подальшим формуванням частинок сажі (так званий чорний вуглець). За умови надходження в зону горіння достатньої кількості кисню спостерігається повне згоряння вуглецю, з диму зникає кіптява. Такий дим містить мінеральні аерозольні частки переважно конденсаційного походження. По мірі охолодження диму на мінеральних частках та частках вуглецю відбувається конденсація парів води та незгорілих органічних сполук (так званий білий вуглець) з утворенням рідких та напіврідких аерозольних часток.

Коли з органічного палива вивітрюється більшість летючих речовин, починається тліюче горіння вугілля, що залишилось. Воно по своїй суті є поверхневим процесом. Кисень дифундує до поверхні й екзотермічно реагує з вуглецем при температурі вище 440 °C з утворенням чадного газу CO . В умовах підвищення температури до 640–710 °C і наявності кисню CO може окислюватись до CO_2 . Тліюче горіння може відбуватись і безпосередньо при горінні органічного палива за умови недостатнього надходження кисню або високого вмісту води [17].

Дрібні частинки палива з високим співвідношенням поверхні до об'єму, нещільно упаковане паливо і низький вміст води сприяють полум'яному горінню. Трава, листя, нещільно упакована підстилка і дрібні деревні уламки мають схильність переважно до полум'яного горіння за умови помірного або низького вмісту води. Тління є важливим процесом

при згорянні деревного палива великого діаметра, домінуючим при горінні дернини, органічного ґрунту і торфу. Відносна частка тліючого горіння збільшується зі збільшенням вологості палива [1].

Для тління характерні більш низькі температури горіння, неповне згорання органічних продуктів піролізу палива та значне зростання вмісту чадного газу в продуктах згорання, що свідчить про дефіцит кисню в зоні горіння. Тління супроводжується появою густого білого диму, аерозольні частки якого часто рідкі або напіврідкі, вони містять воду та широкий спектр органічних речовин. Як індикатор співвідношення «полум'яне горіння — тління» широко використовується модифікований коефіцієнт згорання МКЗ (MCE, modified combustion efficiency):

$$\text{МКЗ} = \frac{C_{\text{CO}_2}}{C_{\text{CO}_2} + C_{\text{CO}}}, \quad (2)$$

де C_{CO} і C_{CO_2} — концентрації чадного та вуглекислого газів у продуктах згорання відповідно [1, 30].

Під час лісових пожеж процеси горіння — займання/дистиляція, полум'я, тління і тління/окислення вугілля — відбуваються одночасно і часто в безпосередній близькості [1]. Лабораторне спалювання може бути застосоване для дослідження кожного з цих процесів, але воно не може оцінити вклад окремого процесу в їхній сукупності. Крім того, камери згорання не можуть адекватно відтворити розмір пожежі, температуру та вентиляцію [17].

Оскільки температура та тривалість нагрівання продуктів згорання, перш за все золи, визначається впливом низки факторів, насамперед складом палива, його вологістю та щільністю розташування, а також режимом надходження повітря, можна зробити висновок, що для тієї ж ділянки лісу, при тому ж рівні забруднення, викид ^{137}Cs з димом за різних умов (вологість, насамперед підстилки, напрямок та сила вітру) може бути суттєво різним. Потрібно також врахувати, що основна активність ^{137}Cs в лісах зони відчуження зосереджена саме в підстилці [31], для якої співвідношення горіння/тління, залежно від умов спалювання, здатне змінюватись в широких межах.

Висновки

Під час лісової пожежі одночасно і в безпосередній близькості протікають різноманітні процеси горіння. Лабораторні спалювання дають змогу аналізувати окремі процеси в контрольованих умовах, проте вони не можуть повністю відобразити внесок

цих процесів у масштабах реальної пожежі. Камери згорання не здатні адекватно відтворити масштаб пожежі, динаміку доступу повітря до зони горіння та відповідне поле температур.

Наявні в літературних джерелах відмінності в коефіцієнтах емісії цезію, найімовірніше, зумовлені різницею в дисперсному складі уловлених димових фракцій, застосуванням методики визначення викидів на основі залишку в золі, а також конструктивними особливостями камер згорання та варіаціями в паливних матеріалах.

Коефіцієнт емісії цезію під час лісової пожежі значною мірою залежить від характеристик органічного палива, зокрема виду і стану рослинності. Але навіть для однієї і тієї ж ділянки лісу цей коефіцієнт може вважатися константою лише умовно, оскільки він є функцією багатьох параметрів: вологості горючих матеріалів, типу пожежі, режиму горіння, температури та часу нагрівання золи. Ці фактори, у свою чергу, залежать від припливу кисню до зони горіння, пов'язаного із швидкістю і напрямком вітру. Таким чином, за різних погодних умов коефіцієнт емісії цезію для однієї і тієї ж ділянки лісу може змінюватись у кілька разів або навіть на порядок. Оцінка меж цієї варіації потребує подальших досліджень на реальних пожежах і в натурних експериментах.

Список використаної літератури

1. Peterson D. L. Wildland Fire Smoke in the United States: A Scientific Assessment / D. L. Peterson, S. M. McCaffrey, T. Patel-Weynand // Springer Nature, 2022. – 341 p. – doi.org/10.1007/978-3-030-87045-4.
2. Koppmann R. A review of biomass burning emissions, part I: gaseous emissions of carbon monoxide, methane, volatile organic compounds, and nitrogen containing compounds / R. Koppmann, K. Von Czapiewski, J. S. Reid // Atmospheric chemistry and physics discussions. – 2005. – Vol. 5. – P. 10455–10516. – Available at: <https://acp.copernicus.org/preprints/acpd-2005-0301/acpd-5-10455-2005.pdf>
3. Burning radionuclide question: What happens to iodine, cesium and chlorine in biomass fires? / B. D. Amiro, S. C. Sheppard, F. L. Johnston [et al.] // The Science of the Total Environment. – 1996. – Vol. 187. – P. 93–103. – Available at: doi.org/10.1016/0048-9697(96)05125-X
4. Cesium emissions from laboratory fires / W. M. Hao, S. Baker, E. Lincoln [et al.] // Journal of the Air & Waste Management Association. – 2018. – Vol. 68 (11). – P. 1211–1223. – Available at: <https://www.tandfonline.com/doi/pdf/10.1080/10962247.2018.1493001>.

5. Distribution of radionuclides between atmosphere and ash during combustion of contaminated vegetation / L. J. Zhou, R. Rao, E. Corcoran, D. Kelly // *Journal of environmental radioactivity*. – 2016. – Vol. 165. – P. 159–167. – Available at: https://inis.iaea.org/collection/NCLCollectionStore/_Public/49/103/49103588.pdf.
6. Experimental wildfire induced mobility of radiocesium in a boreal forest environment / J. Martinsson, G. Pédehontaa-Hiaa, V. Malmborg, D. Madsen, C. Rääf // *Science of the Total Environment*. – 2021. – Vol. 792. – Art. 148310. – Available at: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0048969721033817>.
7. Influence of variable oxygen concentration on the combustion derived release of radiocesium from boreal soil and peat / J. Martinsson, G. Pédehontaa-Hiaa, D. Madsen, C. Rääf // *Science of the Total Environment*. – 2022. – Vol. 815. – Art. 152725. – Available at: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0048969721078049>.
8. Дворник А. М. Радиоактивные продукты горения / А. М. Дворник, А. А. Дворник // *Проблемы лесоведения и лесоводства: Сборник научных трудов ИЛ НАН Беларуси*. – Вып. 74. – Гомель : Институт леса НАН Беларуси. – 2014. – С. 431–435.
9. Resuspension and redistribution of radionuclides during grassland and forest fires in the Chernobyl exclusion zone: part I. Fire experiments / V. I. Yoschenko, V. A. Kashparov, V. P. Protsak [et al.] // *Journal of Environmental Radioactivity*. – 2006. – Vol. 86. – No. 2. – P. 143–163. – Available at: https://inis.iaea.org/collection/NCLCollectionStore/_Public/52/067/52067297.pdf.
10. Resuspension and redistribution of radionuclides during grassland and forest fires in the Chernobyl exclusion zone: part II. Modeling the transport process / V. I. Yoschenko, V. A. Kashparov, S. E. Levchuk [et al.] // *Journal of Environmental Radioactivity*. – 2006. – Vol. 87(3). – P. 260–278. – Available at: https://inis.iaea.org/collection/NCLCollectionStore/_Public/52/067/52067292.pdf.
11. Distribution and influence of forest fires on the ecological and radiation situation in radioactively contaminated areas / V. Sydorenko, S. Yeremenko, V. Vambol [et al.] // *Procedia Structural Integrity*. – 2022. – Vol. 36. – P. 318–325. – doi.org/10.1016/j.prostr.2022.01.041.
12. Newman-Thacker F. Investigating the drivers of the unprecedented Chernobyl Power Plant Wildfire in April 2020 and its effects on ^{137}Cs dispersal / F. Newman-Thacker, L. Turnbull // *Natural hazards*. – 2021. – Vol. 109 (2). – P. 1877–1897. – Available at: <https://link.springer.com/article/10.1007/s11069-021-04902-7>.
13. Пазухин Э. М. Лесной пожар как фактор перераспределения радионуклидов чернобыльского генезиса в окружающей среде / Э. М. Пазухин, А. А. Боровой, Б. И. Огородников // *Радиохимия*. – 2004. – Т. 46 (1). – С. 93–96. – Режим доступа: http://www.physchembio.ru/mediafiles/journals/9_journal/issues/2004_46_1/R_2004_46_1_93-96.pdf.
14. Forest fires in the territory contaminated as a result of the Chernobyl accident: radioactive aerosol resuspension and exposure of fire-fighters / V. A. Kashparov, S. M. Lundin, A. M. Kadygrib [et al.] // *Journal of environmental radioactivity*. – 2000. – Vol. 51 (3). – P. 281–298. – doi.org/10.1016/S0265-931X(00)00082-5.
15. Evaluation of radioactive air contamination due to a forest fire within the Exclusion Zone on June 5–8, 2018 / M. M. Talerko, T. D. Lev, S. I. Kireev [et al.] // *Nuclear Power and the Environment*. – 2019. – Vol. 2. – P. 47–57. – doi.org/10.31717/2311-8253.19.1.7.
16. Resuspension of radionuclides into the atmosphere due to forest fires / J. Paatero, K. Vesterbacka, U. Makkonen [et al.] // *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*. – 2009. – Vol. 282(2). – P. 473–476. – doi.org/10.1007/s10967-009-0254-9.
17. A review of biomass burning emissions, part II: Intensive physical properties of biomass burning particles / J. S. Reid, R. Koppmann, T. F. Eck, D. P. Eleuterio // *Atmos. Chem. Phys. Discuss.* – 2004. – Vol. 4. – P. 5135–5200. – doi.org/10.5194/acp-5-799-2005.
18. Andreae M. O. Emission of trace gases and aerosols from biomass burning / M. O. Andreae, P. Merlet // *Global Biogeochem. Cycles*. – 2001. – Vol. 15 (4). – P. 955–966. – Available at: <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2000GB001382>.
19. Пат. 153772 Україна, МПК G01N 1/00, F23B 80/00. Пристрій для спалювання твердих матеріалів і відбору проб для аналізу речовин, що містяться в диму / В. К. Шинкаренко, А. М. Новіков; заявник і власник ІПБ АЕС НАН України. – № u202300905; заявл. 07.03.2023; опубл. 23.08.2023, бюл. № 34/2023. – Режим доступу: <https://sis.nipo.gov.ua/uk/search/detail/1755183>.
20. Kabata-Pendias A. Trace elements in abiotic and biotic environments / A. Kabata-Pendias, B. Szteke. – Taylor & Francis, 2015. – 468 p. – Available at: <https://library.oapen.org/bitstream/handle/20.500.12657/41690/9781482212815.pdf?sequence=1>.
21. Burger A. Stable and radioactive cesium: a review about distribution in the environment, uptake and translocation in plants, plant reactions and plants' potential for bioremediation / A. Burger, I. Lichtscheidl // *Science of the Total Environment*. – 2018. – Vol. 618. – P. 1459–1485. – doi.org/10.1016/j.scitotenv.2017.09.298.
22. Tuli J. K. *Nuclear Data Sheets for A=137* / J. K. Tuli // *Nucle-*

- ar Data Sheets*. – 1994. – Vol. 72 (3). – P. 355–408. – doi: [org/10.1006/ndsh.1994.1031](https://doi.org/10.1006/ndsh.1994.1031).
23. Isotopic Ratio of $^{137}\text{Cs}/^{133}\text{Cs}$ in Soils and Vegetation Cover of Forest Ecosystems / D. N. Lipatov, A. I. Shcheglov, D. V. Manakhov, O. B. Tsvetnova // *Moscow University Soil Science Bulletin*. – 2022. – Vol. 77 (4). – P. 218–226. – Available at: <https://link.springer.com/article/10.3103/s014768742204010x>.
24. Cains P. Volatilization of ruthenium, caesium and technetium from nitrate systems in nuclear fuel processing and waste solidification. / P. Cains, K. Yewer, S. Waring // *Radiochim. Acta*. – 1992. – Vol. 56. – P. 99–104. – Available at: <https://www.degruyter.com/document/doi/10.1524/ract.1992.56.2.99/html>.
25. Цезій содержащие фазы в древесных золах чернобыльского района / Ф. В. Белкин, С. В. Габелков, Р. В. Тарасов [и др.] // *Проблеми безпеки атомних електростанцій і Чорнобиля*. – Вип. 11. – 2009. – С. 136–141. – Режим доступу: <http://dspace.nbuv.gov.ua/bitstream/handle/123456789/7417/18-Belkin.pdf?sequence=1%>.
26. Vapour Pressure Chart. – Friday Harbor, Washington: Luxel Corporation. – Available at: <http://luxel.com/wp-content/uploads/2013/04/Luxel-Vapor-Pressure-Chart.pdf>
27. Emissions of trace gases and aerosols during the open combustion of biomass in the laboratory / G. R. McMeeking, S. M. Kreidenweis, S. Baker [et al.] // *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*. – 2009. – Vol. 114. – D 19. – doi: [org/10.1029/2009JD011836](https://doi.org/10.1029/2009JD011836).
28. Individual aerosol particles from biomass burning in southern Africa: 1. Composition and size distributions of carbonaceous particles. / M. Posfai, R. Simonics, J. Li [et al.] // *J. Geophys. Res.* – 2003. – Vol. 108. – D 13. – P. 8483. – Available at: <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/pdf/10.1029/2002JD002291>.
29. Etiegni L. Physical and chemical characteristics of wood ash. / L. Etiegni, A. G. Campbell // *Bioresource technology*. – 1991. – Vol. 37 (2). – P. 173–178. – Available at: <https://www.sciencedirect.com/science/article/abs/pii/096085249190207Z>.
30. Emissions of formaldehyde, acetic acid, methanol, and other trace gases from biomass fires in North Carolina measured by airborne Fourier transform infrared spectroscopy / R. J. Yokelson, J. G. Goode, D. E. Ward [et al.] // *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*. – 1999. – Vol. 104. – D 23. – P. 30109–30125. – Available at: <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/pdfdirect/10.1029/1999JD900817>.
31. Kudzin M. Distribution of ^{137}Cs between the components of pine forest of Chernobyl NPP exclusion zone / M. Kudzin, V. Zabrotski, D. Harbaruk // *Impact of Cesium on Plants and*

the Environment. – 2017. – P. 149–169. – Available at: https://link.springer.com/chapter/10.1007/978-3-319-41525-3_9.

V. K. Shynkarenko, A. M. Novikov

Institute for Safety Problems of Nuclear Power Plants, NAS of Ukraine, 12, Lysohirska st., Kyiv, 03028, Ukraine

Air Releases of ^{137}Cs from the Burning of Contaminated Biomass: a Review of Laboratory Research

Forest fires and biomass burning in radioactively contaminated areas present a potential risk of releasing accumulated radionuclides into the atmosphere. This article reviews the literature on caesium (Cs) emissions from laboratory simulations of burning contaminated biomass and presents results from a comparative analysis of ^{137}Cs emissions during flaming and smouldering combustion. A sample of forest litter, collected in the Chernobyl Exclusion Zone, was burned in a specially designed furnace under both combustion modes. During flaming, 8.4% of ^{137}Cs activity was recorded on an aerosol filter, whereas smouldering combustion of another portion of the same sample released less than 1% into the atmosphere. These results align with existing literature and demonstrate a significant dependence of ^{137}Cs emissions on combustion mode.

The authors hypothesise that the decrease in ^{137}Cs emissions during smouldering is due not only to lower temperatures but also to the condensation of volatile compounds in the layer of cooled ash that usually covers the smouldering zone. The discrepancies in emission factors found in the literature can be explained by the difference in the dispersed composition of the smoke fractions studied, the design features of the combustion chambers, and the use of the method of determining emission activity by residual ash activity. This method can cause overestimation of the results, since all activity losses in the experiment are automatically attributed to the emission with smoke.

Discrepancies in emission coefficients across literature may be due to differences in the dispersed composition of smoke fractions as well as methodological variations, the design features of the combustion chambers, such as calculating emission activity based on ash residue. This latter method may lead to overestimation, as it assumes that all activity losses during the experiment are due to smoke emission.

Consequently, the ^{137}Cs emission factor for any given forest area should not be regarded as a fixed value, as it depends on initial fire conditions, including litter moisture,

wind strength, and direction, which influence the balance between flaming and smouldering. Considering that most ^{137}Cs activity in the Exclusion Zone's forests is concentrated in the litter layer, where combustion regimes can vary significantly, these factors are essential to accurately assess radiation risks.

Keywords: forest fires, contaminated biomass burning, ^{137}Cs smoke emissions.

References

- Peterson D. L., McCaffrey S. M., Patel-Weynand T. (2022). *Wildland fire smoke in the United States: A scientific assessment*. Springer Nature, 341 p. doi.org/10.1007/978-3-030-87045-4.
- Koppmann R., Von Czapiewski K., Reid J.S. (2005). A review of biomass burning emissions, part I: gaseous emissions of carbon monoxide, methane, volatile organic compounds, and nitrogen containing compounds. *Atmospheric chemistry and physics discussions*, vol. 5, pp. 10455–10516. Available at: <https://acp.copernicus.org/preprints/acpd-2005-0301/acpd-5-10455-2005.pdf>.
- Amiro B. D., Sheppard S. C., Johnston F. L., Evenden W. G., Harris D. R. (1996). Burning radionuclide question: What happens to iodine, cesium and chlorine in biomass fires? *Science of the Total Environment*, vol. 187 (2), pp. 93–103. doi.org/10.1016/0048-9697(96)05125-X.
- Hao W. M., Baker S., Lincoln E., Hudson S., Lee S. D., Lemieux P. (2018). Cesium emissions from laboratory fires. *Journal of the Air & Waste Management Association*, vol. 68 (11), pp. 1211–1223. Available at: <https://www.tandfonline.com/doi/pdf/10.1080/10962247.2018.1493001>.
- Zhou L. J., Rao R., Corcoran E., Kelly D. (2016). Distribution of radionuclides between atmosphere and ash during combustion of contaminated vegetation. *Journal of environmental radioactivity*, vol. 165, pp. 159–167. Available at: https://inis.iaea.org/collection/NCLCollectionStore/_Public/49/103/49103588.pdf.
- Martinsson J., Pédehontaa-Hiaa G., Malmborg V., Madsen D., Rääf C. (2021). Experimental wildfire induced mobility of radiocesium in a boreal forest environment. *Science of the Total Environment*, vol. 792, art. 148310. Available at: doi.org/10.1016/j.scitotenv.2021.148310.
- Martinsson J., Pédehontaa-Hiaa G., Madsen D., Rääf C. (2022). Influence of variable oxygen concentration on the combustion derived release of radiocesium from boreal soil and peat. *Science of the Total Environment*, vol. 815, art. 152725. Available at: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0048969721078049>.
- Dvornik A. M., Dvornik A. A. (2014). Radioactive products of combustion [*Problems of forestry and silviculture: Collection of scientific papers of IL NAS of Belarus*], vol. 74, pp. 431–435. Available at: <https://www.twirpx.com/file/1561141.pdf>. (in Rus.)
- Yoschenko V. I., Kashparov V. A., Protsak V. P., Lundin S. M., Levchuk S. E., Kadygrib A. M., Zvarich S. I., Khomutinin Yu. V., Maloshtan I. M., Lanshin V. P., Kovtun M. V., Tschiersch J. (2006). Resuspension and redistribution of radionuclides during grassland and forest fires in the Chernobyl exclusion zone: part I. Fire experiments. *Journal of Environmental Radioactivity*, vol. 86 (2), pp. 143–163. Available at: https://inis.iaea.org/collection/NCLCollectionStore/_Public/52/067/52067297.pdf.
- Yoschenko V. I., Kashparov V. A., Levchuk S. E., Glukhovskiy A. S., Khomutinin Y. V., Protsak V. P., Tschiersch J. (2006). Resuspension and redistribution of radionuclides during grassland and forest fires in the Chernobyl exclusion zone: part II. Modeling the transport process. *Journal of Environmental Radioactivity*, vol. 87 (3), 260–278. Available at: https://inis.iaea.org/collection/NCLCollectionStore/_Public/52/067/52067292.pdf.
- Sydorenko V., Yermenko S., Vambol V., Vambol S., Poberezhna L. (2022). Distribution and influence of forest fires on the ecological and radiation situation in radioactively contaminated areas. *Procedia Structural Integrity*, vol. 36, pp. 318–325. doi.org/10.1016/j.prostr.2022.01.041.
- Newman-Thacker, F., Turnbull, L. (2021). Investigating the drivers of the unprecedented Chernobyl Power Plant Wildfire in April 2020 and its effects on ^{137}Cs dispersal. *Natural hazards*, vol. 109 (2), 1877–1897. Available at: <https://link.springer.com/article/10.1007/s11069-021-04902-7>.
- Pazukhin E. M., Borovoy A. A., Ogorodnikov B. I. (2004). Forest fire as a factor of redistribution of radionuclides of Chernobyl genesis in the environment. *Radiochemistry*, vol. 46 (1), 93–96. Available at: http://www.physchembio.ru/mediafiles/journals/9_journal/issues/2004_46_1/R_2004_46_1_93-96.pdf.
- Kashparov V. A., Lundin S. M., Kadygrib A. M., Protsak V. P., Levchuk S. E., Yoschenko V. I., Kashpur V. A., Talerko, N. M. (2000). Forest fires in the territory contaminated as a result of the Chernobyl accident: radioactive aerosol resuspension and exposure of fire-fighters. *Journal of environmental radioactivity*, vol. 51 (3), pp. 281–298. doi.org/10.1016/S0265-931X(00)00082-5.
- Talerko M. M., Lev T. D., Kireev S. I., Kashpur V. O., Kuzmenko G. G. (2019). Evaluation of radioactive air contamination due to a forest fire within the Exclusion Zone on June 5–8, 2018. *Nuclear Power and the Environment*, vol. 14 (2), pp. 47–57. doi.org/10.31717/2311-8253.19.1.7.

16. Paatero J., Vesterbacka K., Makkonen U., Kyllönen K., Hellen H., Hatakka J., Anttila P. (2009). Resuspension of radionuclides into the atmosphere due to forest fires. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, vol. 282 (2), pp. 473–476. doi.org/10.1007/s10967-009-0254-9.
17. Reid J. S., Koppmann R., Eck T. F., Eleuterio D. P. (2005). A review of biomass burning emissions part II: intensive physical properties of biomass burning particles. *Atmospheric chemistry and physics*, vol. 5 (3), pp. 799–825. Available at: doi.org/10.5194/acp-5-799-2005.
18. Andreae M. O., Merlet P. (2001). Emission of trace gases and aerosols from biomass burning. *Global biogeochemical cycles*, vol. 15(4), pp. 955–966. Available at: https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2000GB001382.
19. Shynkarenko V. K., Novikov A. M. *Prystrii dlia spalivannia tverdykh materialiv i vidboru prob dlia analizu rehovyn, shcho mistiatsia v dymu* [Device for combustion of solid materials and sampling for analysis of substances contained in smoke]. Patent for utility model UA, no. 153772. https://sis.nipo.gov.ua/uk/search/detail/1755183. (in Ukr.)
20. Kabata-Pendias A., Szteke B. (2015). *Trace elements in abiotic and biotic environments*. Taylor & Francis, 468 p. Available at: https://library.oapen.org/bitstream/handle/20.500.12657/41690/9781482212815.pdf?sequence=1.
21. Burger A., Lichtscheidl I. (2018). Stable and radioactive cesium: a review about distribution in the environment, uptake and translocation in plants, plant reactions and plants' potential for bioremediation. *Science of the Total Environment*, 618, 1459–1485. https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2017.09.298.
22. Tuli J. K. (1994). Nuclear data sheets update for A=137. *Nuclear Data Sheets*, vol. 72 (3), pp. 355–408. doi.org/10.1006/ndsh.1994.1031.
23. Lipatov D. N., Shcheglov A. I., Manakhov D. V., Tsvetnova O. B. (2022). Isotopic Ratio of $^{137}\text{Cs}/^{133}\text{Cs}$ in Soils and Vegetation Cover of Forest Ecosystems. *Moscow University Soil Science Bulletin*, vol. 77 (4), pp. 218–226. Available at: https://link.springer.com/article/10.3103/s014768742204010x.
24. Cains P. W., Yewer K. C., Waring S. (1992). Volatilization of ruthenium, caesium and technetium from nitrate systems in nuclear fuel processing and waste solidification. *Radiochimica Acta*, vol. 56 (2), pp. 99–104. Available at: https://www.degruyter.com/document/doi/10.1524/ract.1992.56.2.99/html.
25. Belkin F. V., Gabelkov S. V., Tarasov R. V., Poltavtsev N. S., Litvinenko L. M., Ryzhova T. P. (2009). Cesium-containing phases in wood ashes from the Chernobyl region. *Problems of Safety of Nuclear Power Plants and Chernobyl*, vol. 11, 136–141. Available at: http://dspace.nbuv.gov.ua/bitstream/handle/123456789/7417/18-Belkin.pdf?sequence=1.
26. *Vapour Pressure Chart*. Friday Harbor, Washington: Luxel Corporation. Available at: http://luxel.com/wp-content/uploads/2013/04/Luxel-Vapor-Pressure-Chart.pdf.
27. McMeeking G. R., Kreidenweis S. M., Baker S., Carri-co C. M., Chow J. C., Collett Jr, J. L., Hao W. M., Holden A. S., Kirchstetter T. W., Malm W. C., Moosmüller H., Sullivan A. P., Wold, C. E. (2009). Emissions of trace gases and aerosols during the open combustion of biomass in the laboratory. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, vol. 114, D 19. doi.org/10.1029/2009JD011836.
28. Pósfai M., Simonics R., Li J., Hobbs P. V., Buseck, P. R. (2003). Individual aerosol particles from biomass burning in southern Africa: 1. Compositions and size distributions of carbonaceous particles. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, vol. 108, D 13, art. 8483. Available at: https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/pdf/10.1029/2002JD002291.
29. Etiegni L., Campbell A. G. (1991). Physical and chemical characteristics of wood ash. *Bioresource technology*, vol. 37 (2), pp. 173–178. Available at: https://www.sciencedirect.com/science/article/abs/pii/096085249190207Z.
30. Yokelson R. J., Goode J. G., Ward D. E., Susott R. A., Babbitt R. E., Wade D. D., Bertschi I., Griffith D. W. T., Hao W. M. (1999). Emissions of formaldehyde, acetic acid, methanol, and other trace gases from biomass fires in North Carolina measured by airborne Fourier transform infrared spectroscopy. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, vol. 104, D 23, pp. 30109–30125. Available at: https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/pdfdirect/10.1029/1999JD900817.
31. Kudzin M., Zabrotski V., Harbaruk D. (2017). Distribution of ^{137}Cs between the components of pine forest of Chernobyl NPP exclusion zone. *Impact of Cesium on Plants and the Environment*, pp. 149–169. Available at: https://link.springer.com/chapter/10.1007/978-3-319-41525-3_9.

Надійшла / Received 11.11.2024

Рекомендована до друку / Accepted 28.11.2024