

504.5:628,4.047
М 34

В.Є. ГОНЧАРУК, Г.Т. ЛЯНЦЕ,
Є.Я. ЧАПЛЯ, О.Ю. ЧЕРНУХА

**МАТЕМАТИЧНІ МОДЕЛІ
ТА ЕКСПЕРИМЕНТАЛЬНІ ДАНІ
ПРО ПОШИРЕННЯ РАДІОНУКЛІДІВ
У ГРУНТАХ**

НАЦІОНАЛЬНА АКАДЕМІЯ НАУК УКРАЇНИ
Центр математичного моделювання
Інституту прикладних проблем механіки і математики
ім. Я.С.Підстригача

В.Є.ГОНЧАРУК, Г.Т.ЛЯНЦЕ,
Є.Я.ЧАПЛЯ, О.Ю.ЧЕРНУХА

**МАТЕМАТИЧНІ МОДЕЛІ ТА
ЕКСПЕРИМЕНТАЛЬНІ ДАНІ
ПРО ПОШИРЕННЯ РАДІОНУКЛІДІВ
У ҐРУНТАХ**

Львів
Растр-7
2014

694256

504.5:628.4.047

УДК 517.87:631.438

ББК 40.157

М34

Гончарук В.С., Лянце Г.Т., Чапля Є.Я., Чернуха О.Ю. Математичні моделі та експериментальні дані про поширення радіонуклідів у ґрунтах: [монографія] – Львів: Видавництво «Растр-7», 2014. – 244 с.

ISBN 978-617-7045-56-3

У монографії проведено огляд експериментальних даних та систематизацію результатів викиду радіоактивних продуктів з ЧАЕС. Основна увага звернена на аналіз міграційних чинників і фізико-хімічних форм радіонуклідів, на процеси адсорбції, вилуговування, деструкції. Систематизовано параметри цих процесів для різних типів ґрунтів і радіонуклідів з метою забезпечення вхідними даними математичні моделі, які описують поширення радіонуклідів у ґрунтах. Крім цього автори запропонували і дослідили власні оригінальні моделі поширення радіонуклідів у ґрунтах.

Для наукових та інженерно-технічних працівників, аспірантів, магістрів та студентів старших курсів, які спеціалізуються в галузі математичного моделювання та екології.

Гончарук В.Е., Лянце А.Т., Чапля Е.Я., Чернуха О.Ю. Математические модели и экспериментальные данные о распространении радионуклидов в почвах. – Львов

В монографии дан обзор экспериментальных данных и систематизация результатов выброса радиоактивных продуктов ЧАЭС. Главное внимание обращено на анализ миграционных факторов и физико-химических форм радионуклидов, на процессы адсорбции, выщелачивания, деструкции. Систематизированы параметры этих процессов для различных типов почв и радионуклидов с целью обеспечения исходными данными математических модели, описывающие распространение радионуклидов в почвах. Кроме этого авторы предложили и исследовали собственные оригинальные модели распространения радионуклидов в почвах.

Для научных и инженерно-технических специалистов, аспирантов, магистров и студентов старших курсов, специализирующихся в области математического моделирования и экологии.

Goncharuk V.Y., Lyantse A.T., Chapiya Y.Y., Chernukha O.Y. Mathematical models and experimental data on spread of radionuclides in soils. - Lviv

Reviews of experimental data and systematization of results of environmental injection: of radioactive fragments from Chornobyl nuclear power station are carried out in the monograph. The major attention is drawn to the analysis of migration factors and physical-chemical forms of radionuclides as well as adsorption, leaching, destruction processes. The process parameters are systematized for different types of soils and radionuclides to provide mathematical models describing radionuclide spread in soils, by input data. Besides, the authors propose and study their own original models of radionuclide spread in ground.

For scientists and technicians-and-engineers, post-graduates, masters and undergraduates making a speciality of mathematical modelling and ecology.

Затверджено до друку вченою радою Центру математичного моделювання Інституту прикладних проблем механіки і математики ім. Я. С. Підстригача НАН України від 09.09.2013

Відповідальний редактор – член-кореспондент НАН України, д.ф.-м.н., проф. Я.Й.Бурак

Рецензенти: д.ф.-м.н., проф. Токарчук М., д.ф.-м.н., проф.Назірний Т.

© В.С. Гончарук, Г.Т. Лянце,

Є.Я. Чапля, О.Ю. Чернуха, 2014

© Видавництво «Растр-7», 2014

ISBN 978-617-7045-56-3

ПЕРЕДМОВА

Після аварії на Чорнобильській атомній станції проблема забруднення довкілля радіонуклідами стала темою досліджень в багатьох наукових школах України, Росії, Білорусії та інших держав.

Вважається, що забруднення відбулося в основному аерозольно-конденсаційними та паливними частинками. При цьому аерозольно-конденсаційні частинки після вибуху були рознесені потоками повітря на значні відстані, тоді як паливні частинки переважно зосереджені у ближній 30-кілометровій зоні станції. Крім цього утворилися нові радіоактивні техногенні продукти -- скломаси, які зосереджені в приміщеннях аварійного блоку.

Радіонукліди, що випали на поверхню ґрунту, під впливом природних чинників мігрують у горизонтальному і вертикальному напрямках. Горизонтальна міграція радіонуклідів відбувається внаслідок вітрової ерозії підстилаючої поверхні ґрунту, змиву радіоактивних речовин з рослинності атмосферними опадами та їхнього стоку в низинні безстічні ділянки і є порівняно швидким процесом. Одночасно відбувається їх вертикальне переміщення углиб ґрунту фільтраційними потоками і дифузією. Ці процеси у більшості випадків повільні проте навіть мала кількість радіонуклідів приводять до забруднення ґрунтових вод на небезпечному рівні.

Інтенсивність міграції залежить від багатьох факторів, зокрема характеристик приповерхневих шарів землі та фізико-хімічних властивостей самих радіонуклідів і їх сполук. Приповерхневі шари характеризуються конкретним мінералогічним,

хімічним та гранулометричним складом, вмістом органічної речовини, станом зволоженості і кислотності ґрунтового розчину. Радіонукліди можуть перебувати у водорозчинній, обмінно-сорбованій, необмінно-сорбованій, фіксованій формах тощо. Ряд їх властивостей залежить від знаку і величини валентності відповідного іона та форми хімічних сполук, в яких він виступає.

Зазначимо, що на сьогодні найбільш небезпечними для довкілля вважаються радіоізотопи цезію і стронцію, плутонію, а також америцію-241.

Прогнозування поширення радіонуклідів у геологічних структурах, особливо їх вертикального перерозподілу, базується на конкретних математичних моделях процесів переносу, які з достатньою повнотою враховують особливості їхньої трансформації та вплив локальної структури середовища.

У більшості випадків необхідно сформулювати і дослідити адекватну фізико-математичну модель, що відповідає вибраній ситуації, отримати ключову систему рівнянь, проаналізувати можливість її лінеаризації, поставити відповідні задачі математичної фізики, запропонувати аналітичні або числові методи їх розв'язання.

На останньому етапі фактичних розрахунків профілів концентрації радіонуклідів, їхніх потоків та оцінки ступеня захищеності ґрунтових вод зустрічається проблема вибору коефіцієнтів рівнянь моделі. Зважаючи на складність об'єкту дослідження цей вибір доцільно робити на основі конкретних експериментальних досліджень, які багато представлені у науковій літературі.

Проте згадані експериментальні дослідження проводилися у різний час за різних умов, з використанням різних одиниць фізичних величин і методик. При цьому, часто не описано необхідні для інтерпретації додаткові параметри. Тому однією з цілей даної роботи була спроба певної систематизації різнотипних експериментальних досліджень з метою їх використання в математичних моделях міграції радіонуклідів.

РОЗДІЛ 1

**ХАРАКТЕРИСТИКА ОСНОВНИХ
РАДІОАКТИВНИХ ПРОДУКТІВ,
УТВОРЕНИХ ВНАСЛІДОК АВАРІЇ
НА ЧАЕС**

**1.1. Систематизація радіоактивних забруднень
Чорнобильської катастрофи**

Як показали експериментальні дослідження [8, 13-16, 30-33, 37] радіоактивні забруднення, пов'язані з аварією реактора 4-го блоку Чорнобильської атомної електростанції, стабілізувались в основному у трьох формах: аерозольно-конденсаційні мікрочастинки; частинки випадань; паливовмісні скломаси.

Аерозольно-конденсаційні мікрочастинки утворилися внаслідок конденсації випаруваної речовини (радіонуклідів) підчас аварії.

Протягом активної стадії аварії викид радіонуклідів відбувався також і у складі дрібнодиспергованого палива (частинки випадань) [13]. Їх дослідження у 30-кілометровій зоні ЧАЕС є актуальним у зв'язку з руйнуванням частинок у зоні вивітрювання та появою дрібнодисперсних „гарячих” частинок, які забруднюють ґрунтові води вилуженими довгоживучими α -випромінюючими радіонуклідами.

Крім цього на початковій стадії до атмосфери потрапили летючі речовини: інертні гази, йод, цезій та інші [13].

РОЗДІЛ 1

Забруднення території поза промисловим майданчиком є суперпозицією слідів паливних частинок і аерозольно-конденсаційних мікрочастинок, причому їх співвідношення залежить від напрямку і відстані від ЧАЕС [33].

Паливовмісні скломаси є новими радіоактивними техногенними утвореннями, які зосереджені в підреакторних приміщеннях на території ЧАЕС. Ці матеріали утворились внаслідок високотемпературних процесів під час активної стадії аварії [9]. Опис характеристик цих мас подано, зокрема, у працях [13-16, 30, 33, 79, 80].

Всі види випадань зв'язані між собою однією спільною рисою – наявністю опроміненого оксиду урану. При дослідженні радіоактивних випадань показано, що радіоактивний склад паливних частинок і аерозолей визначаються історією їхнього утворення на різних стадіях аварії [31].

Зазначимо, що для проведення досліджень радіоактивного забруднення в якості базового елементу був вибраний церій-144 (^{144}Ce), оскільки він характеризується міцним зв'язком з урановою матрицею, високою температурою випаровування, великим періодом піврозпаду (біля $2,45376 \cdot 10^7 \text{ c}$), достатньою інтенсивністю γ -ліній з вигідною для спектрометрії енергією [13]. Але у зв'язку з тим, що станом на 1990 рік кількість ^{144}Ce унаслідок розпаду зменшилась майже в 30 разів, то виникла необхідність знайти інший опорний радіонуклід, за яким можна було б оцінювати в першу чергу активність плутонію-239,240 ($^{239,240}\text{Pu}$). Ряд авторів пропонують використовувати також у якості такого елементу європей-154 (^{154}Eu). Розрахункове відношення активностей $^{239,240}\text{Pu}$ до ^{154}Eu станом на 26.04.1986 в середньому складало $0,54 \pm 0,10$ [31].

Для класифікації різних продуктів випадань за їх радіоактивністю використовують коефіцієнт фракціювання i -ого радіо-

РОЗДІЛ 1

нукліду f_i по відношенню до тугоплавкого (нелетючого) ^{144}Ce . Коефіцієнт фракціювання визначається співвідношенням:

$$f_i = \left[A^0_i / A^0_{\text{Ce}} \right]_{\text{eks}} \cdot \left[A^0_i / A^0_{\text{Ce}} \right]_{\text{eor}}^{-1}, \quad (1.1)$$

де $\left[A^0_i / A^0_{\text{Ce}} \right]_{\text{eks}}$, $\left[A^0_i / A^0_{\text{Ce}} \right]_{\text{eor}}$ – експериментальні та розраховані відношення активності i -ого радіонукліду A^0_i до активності церію-144 A^0_{Ce} відповідно. В наведеному виразі символом „0” зверху зазначено активності елементів до відпаду (початку термохімічних реакцій унаслідок аварії), квадратні дужки означають, що маси відповідних речовин вимірюються в молях.

При визначенні коефіцієнту фракціювання для рутенію-106 (^{106}Ru), цезію-137 (^{137}Cs) відносно ^{144}Ce приймають, що на момент аварії розрахункові відношення активностей в паливі були: для ^{106}Ru – 0,32, а для ^{137}Cs – 0,07 [30].

Підкреслимо, що коефіцієнти фракціювання, особливо для ^{106}Ru , ^{137}Cs , ^{95}Zr (цирконій-95), містять інформацію про походження продуктів аварії та режими їхнього формування.

Ступень вигорання палива характеризують відношенням активностей двох ізотопів цезію ^{134}Cs та ^{137}Cs , тобто $A_{134\text{Cs}} / A_{137\text{Cs}}$.

Визначення у пробі ґрунту вмісту α -випромінюючих, в основному ізотопів плутонію (Pu), або β -випромінюючих, ізотопів стронцію (Sr), радіонуклідів вимагає складних радіохімічних аналізів [13]. В Інституті атомної енергії ім.І.В.Курчатова в результаті експериментальних досліджень отримана кореляційна залежність між сумарною α -активністю ізотопів плутонію A_{Pu} і γ -активністю церію-144 A_{Ce} у вигляді

$$A_{\text{Pu}} = K_{\text{Pu}} A_{\text{Ce}}, \quad (1.2)$$

РОЗДІЛ 1

де K_{Pu} – коефіцієнт кореляції, який станом на 26.04.1986 склав $K_{Pu} \approx 9 \cdot 10^{-4}$.

Аналогічно до (1.2) має місце залежність і для ^{90}Sr з іншим коефіцієнтом кореляції.

1.2. Характеристика аерозольно-конденсаційних і паливних частинок

Під час аварії внаслідок високих температур у складі викиду в атмосферу радіоактивних речовин були пари летючих радіонуклідів, з яких в подальшому утворилися аерозольно-конденсаційні частинки. Розміри цих частинок, як правило, не перевищують 10^{-5} м. Ознакою конденсаційної частинки є її сферичність, тоді як аерозольні частинки можуть мати найрізноманітнішу форму.

За даними роботи [33] компонентний склад аерозольних частинок дуже різноманітний. В ґрунтах 30-кілометрової зони присутні багатокутні мікроблоки опроміненого палива розмірами $(3-7) \cdot 10^{-6}$ м, в яких прослідковуються $^{238,239}Pu$, америцій-240 (^{240}Am) та ізотопи урану (U). Одночасно, знайдено частинки аерозольних випадань, як збагачених ^{106}Ru і ^{137}Cs , так і збіднених цими ізотопами. Це свідчить, що утворення аерозольних частинок відбувалося протягом різних стадій аварії.

Дрібнодисперсний характер частинок та інтенсивне перемішування радіоактивних продуктів, що виходили з різних зон реактора, визначили сталість відношення активностей ізотопів цезію, що є характерною ознакою чорнобильських випадань. За даними багаторічних спостережень на полігонах „Радієвого інституту” ім. В.Г.Хлопіна на момент аварії значення $A_{134}Cs / A_{137}Cs$ становлять $0,5 \pm 0,09$. Для Білорусії і Брянської об-

РОЗДІЛ І

ласті Російської Федерації значення $A_{134_{Cs}} / A_{137_{Cs}} = 0,51 \pm 0,08$, для країн Східної Європи – $A_{134_{Cs}} / A_{137_{Cs}} = 0,59-0,61$. При цьому середня щільність випадань для різних регіонів в $кБк/м^2$ така: Білорусь – 39, Україна – 15, Росія – 10 (хоча для окремих районів Брянщини визначено 840-1700), Європа – 0,39-7,2.

За даними праці [37] конденсаційна компонента радіоактивних випадань представлена в основному ізотопами цезію. При цьому фізико-хімічні властивості цих випадань, і в першу чергу розчинність, у значній мірі співпадають з фізико-хімічними властивостями глобальних випадань [37, 41]. Біологічна доступність радіоізоотопів цезію в ґрунтах на території, яка забруднена конденсаційною компонентою викиду ЧАЕС, не значно відрізняється від біологічної доступності радіоізоотопів цезію, внесених у ґрунт у розчинній формі, і визначається фізико-хімічними властивостями ґрунтів. Тому оцінку поведінки цих радіонуклідів можна проводити на основі даних про поведінку глобальних забруднень в конкретних типах ґрунтів. Дослідження поведінки аерозольно-конденсаційних частинок проводиться і надалі з метою забезпечення екологічної безпеки і попередження забруднення навколишнього середовища [6, 7, 23, 24].

Мобільність конденсаційних компонент визначається фізико-хімічними і водно-фізичними характеристиками ґрунтів.

Паливовмісні частинки утворилися під час аварії в результаті руйнування ядерного палива при високій температурі. Це привело до викиду з локальної зони реактора достатньо великих частинок розміром десятки і сотні мікрон. Викид таких частинок проходив протягом кількох днів у різних температурних умовах, що позначилося на їхніх фізико-хімічних властивостях. Вивчення хімічного складу і властивостей паливовмісних частинок, так званих „гарячих” частинок, присвячені роботи, зокрема, [24, 30-33, 35, 44-48, 57, 58, 65, 67].

Щільність паливовмісних випадань [67] міняється від 0,013 $кг/га$ (с.Товстий ліс) до 100 $кг/га$ (база „Гідроелектро-

РОЗДІЛ 1

монтаж"). Вздовж західного сліду (до 20 км) щільність випадань паливних частинок зменшується з відстанню за емпіричним законом

$$A = 400 \cdot 10^6 \cdot \exp(-0,415x),$$

де A – питома активність концентрату паливної частинки за ^{144}Ce (Бк/г); x – відстань від 4-го блоку (км).

В таблицях 1.1, 1.2 наведено значення вмісту ^{144}Ce і коефіцієнтів фракціонування ^{106}Ru і ^{137}Cs в пробах різних типів ґрунтів. Концентрація ^{144}Ce сильно міняється в залежності від місця відбору проби (від $5,8 \cdot 10^6$ до $1,1 \cdot 10^{12}$ Бк/кг) [33], також від місця відбору проби залежать і коефіцієнти фракціонування. Значення ж відношення $A_{^{134}\text{Cs}} / A_{^{137}\text{Cs}}$ для проб з різних місць відбору близьке до 0,5.

Таблиця 1.1

Радіонуклідні характеристики шліхових проб

Від- стань від 4- го блоку (км)	Рік від- бору проби	Місце відбору проби	^{144}Ce ; Бк/кг	$f_{^{106}\text{Ru}}$	$f_{^{137}\text{Cs}}$	$\frac{A_{^{134}\text{Cs}}}{A_{^{137}\text{Cs}}}$
1	2	3	4	5	6	7
<i>Контрольовані полігони</i>						
15	1987	„Корогород”	$5,1 \cdot 10^7$	0,3	0,11	0,5
15	1991	„Корогород”	$5,8 \cdot 10^6$	1,9	1,8	0,46
5,0	1987	„Садівництво”	$7,8 \cdot 10^9$	0,97	0,54	0,57
5,0	1991	„Садівництво”	$3,4 \cdot 10^9$	1,0	0,54	0,55
3,0	1990	„Заплава”	$4,1 \cdot 10^9$	1,1	0,84	0,46

РОЗДІЛ 1

Продовження таблиці 1.1

1	2	3	4	5	6	7
3,0	1991	„Заплава”	$2,6 \cdot 10^9$	0,8	0,8	0,51
<i>Західний слід випадань</i>						
0,5	1987	База „Електромонтаж”	$1,0 \cdot 10^{12}$	1,0	0,45	0,44
0,5	1988	База „Електромонтаж”	$4,0 \cdot 10^{11}$	0,83	0,49	0,45
4,0	1987	„Рудий ліс”	$7,6 \cdot 10^{10}$	1,1	0,63	0,54
4,0	1991	„Рудий ліс”	$1,3 \cdot 10^6$	0,93	0,48	0,51
3,0	1987	„Рудий ліс”	$1,4 \cdot 10^{11}$	1,0	0,55	0,52
3,0	1988	„Рудий ліс”	$9,3 \cdot 10^{10}$	0,97	0,6	0,56
2,0	1986	„Рудий ліс”	$1,2 \cdot 10^{11}$	1,1	0,53	0,54
2,0	1987	„Рудий ліс”	$1,8 \cdot 10^{11}$	1,1	0,75	0,56
20	1988	с. Товстий ліс	$2,3 \cdot 10^8$	0,93	0,52	0,55
<i>Північний слід випадань</i>						
1,6	1988	Берег ставка охол.	$1,8 \cdot 10^{10}$	1,0	0,78	0,54
1,6	1991	Берег ставка охол.	$1,6 \cdot 10^9$	0,83	0,66	0,55
2,8	1987	Берег р. Прип'ять	$9,5 \cdot 10^8$	0,77	0,47	0,53
5,0	1987	с. Ново-Шипеличі	$8,8 \cdot 10^7$	0,63	0,44	0,56
5,0	1987	с. Ново-Шипеличі	$2,8 \cdot 10^7$	0,9	0,23	0,61

В таблиці 1.2 наведено радіоактивні характеристики двох видів паливовмісних частинок: механічно диспергованого палива та уран-цирконієвих частинок [33].

Зазначимо, що типізація частинок випадань різними авторами проводиться за різними критеріями. Так, автори [33, 59] виділяють два види паливовмісних частинок: механічно дисперговане паливо, яке зберігає свою експлуатаційну структуру, та уран-цирконієві частинки (частинки змішаного складу), які є продуктом термохімічних перетворень.

Виділяють також „істинно паливні частинки”, зокрема, такі як графітові частинки і продукти горіння [14, 15]. Відомий розподіл частинок на 17 класів за глибиною вигорання.

РОЗДІЛ I

Таблиця 1.2

Радіонуклідні характеристики паливовмісних частинок з
випадань західного сліду (на 26.04.1986 р.)

Відстань від 4-го блоку (км)	^{144}Ce (Бк/кг· 10^{12})	$f_{^{106}\text{Ru}}$	$f_{^{137}\text{Cs}}$	$\frac{A_{^{134}\text{Cs}}}{A_{^{137}\text{Cs}}}$	$\frac{A_{^{239,240}\text{Pu}}}{A_{^{144}\text{Ce}}}$ · 10^{-4}
<i>Механічно дисперговане паливо</i>					
20,0	15,5	1,3	1,2	0,46	7,4
20,0	10,8	1,2	1,3	0,48	7,5
20,0	10,0	1,3	1,3	0,62	4,2
9,0	11,0	1,0	0,18	0,51	7,2
2,7	14,3	1,5	1,3	0,44	7,8
2,7	13,5	1,1	0,86	0,43	8,0
2,7	12,8	0,87	0,48	0,33	5,6
2,7	12,5	1,3	1,2	0,5	6,9
2,7	12,2	1,6	1,0	0,56	7,5
0,5	11,8	1,7	0,1	0,42	6,5
0,5	14,8	1,6	1,4	0,52	7,1
0,5	14,8	1,6	1,4	0,52	7,1
<i>Уран-цирконієві частинки</i>					
20,0	9,7	0,14	0,02	0,45	6,8
20,0	6,8	0,57	0,46	0,21	5,3
12,0	9,6	0,67	0,08	0,34	3,4
12,0	3,0	0,37	0,41	0,05	8,3
9,0	8,9	0,73	0,62	0,3	8,8
9,0	8,0	0,89	0,12	0,53	10,8
2,7	7,0	0,4	0,006	0,43	6,0
2,7	6,9	0,93	1,2	0,19	8,1
2,7	4,5	0,5	0,1	0,18	4,0
2,7	4,0	0,83	0,28	0,26	7,3
0,5	5,0	0,97	0,81	0,29	7,3

РОЗДІЛ I

Зупинимось на типізації частинок, яка ґрунтується на структурно-генетичних відмінностях паливовмісних частинок, що проявляються при вибуговуванні з них радіонуклідів, а саме механічно дисперговане паливо та уран-цирконієві частинки [33, 59].

Перший вид частинок (механічно дисперговане паливо) представлений фрагментами диспергованого опроміненого палива, що складається з UO_2 та UO_{2+x} . В макрочастинках $(0,8-7) \cdot 10^{-4}$ м виразно видно мікроструктуру опроміненого палива.

Макрочастинки легко руйнуються і переходять у суцільність дрібнодисперсних так званих „гарячих частинок”. При розмірах мікроблоків величиною $(2-7) \cdot 10^{-6}$ м, їх густина $(7-9) \cdot 10^3$ кг/м³, а відносна твердість $4,9 \cdot 10^6$ кг/м². При цьому частинки збагачені ^{106}Ru , ^{137}Cs по відношенню до ^{144}Ce .

Другий вид частинок (уран-цирконієві частинки) – це частинки змішаного складу, основними компонентами яких є уран і α -цирконій. Уран представлений в основному сполуками U_4O_9 і UO_2 . Розміри частинок складають $(1-1,2) \cdot 10^{-3}$ м. Ці частинки пористі, їх густина є $(3,5-4,0) \cdot 10^3$ кг/м³, а міцність в 2-3 рази вища, ніж у чистопаливних. Достатньо міцні скломаси, що покривають частинки зменшують ступінь вибуговування з них радіонуклідів. Ці частинки утворилися при високотемпературних реакціях, в процесі яких проходив швидкий викид в атмосферу летючих радіонуклідів ^{106}Ru та ізоотопів цезію, внаслідок чого вони збіднені на ^{106}Ru , ^{137}Cs по відношенню до ^{144}Ce . Середні значення коефіцієнтів фракціонування за ^{144}Ce цих ізоотопів складають $f_{^{106}Ru} = 0,6$, $f_{^{137}Cs} = 0,3$. Середнє відношення активностей $^{239,240}Pu$ до ^{144}Ce рівне $(5,6 \pm 2,3) \cdot 10^{-4}$.

Особливості структури, хімічний і радіоактивний склад уран-цирконієвих частинок дозволяють зробити висновки [32], що крім урану частинки містять цирконій та інші конструктивні

РОЗДІЛ I

компоненти активної зони, а також матеріали, які використувалися при засипанні шахти аварійного блоку.

В таблиці 1.3 подано дані про вміст радіонуклідів у типових пробах двох видів частинок у квітні 1992 року. Середні значення коефіцієнтів фракціонування радіонуклідів наведено в таблиці 1.4.

Таблиця 1.3
Вміст радіонуклідів у типових пробах двох видів частинок у квітні 1992 р. (Бк/кг)

Радіонуклід	1-й вид (U)	2-й вид ($U - Zr$)
^{106}Ru	$(5,6 \pm 0,3) \cdot 10^{10}$	$(8,4 \pm 0,4) \cdot 10^9$
^{125}Sb	$(1,0 \pm 0,1) \cdot 10^{10}$	$(7,4 \pm 4,4) \cdot 10^9$
^{134}Cs	$(3,4 \pm 0,2) \cdot 10^{10}$	$(1,4 \pm 0,08) \cdot 10^9$
^{137}Cs	$(4,0 \pm 0,2) \cdot 10^{11}$	$(3,6 \pm 0,2) \cdot 10^{10}$
^{144}Ce	$(4,4 \pm 0,4) \cdot 10^{10}$	$(1,45 \pm 0,08) \cdot 10^{10}$
^{154}Eu	$(8,4 \pm 0,8) \cdot 10^9$	$(4,7 \pm 4,7) \cdot 10^6$
^{155}Eu	$(3,7 \pm 0,5) \cdot 10^{10}$	$(4,9 \pm 0,5) \cdot 10^7$
$^{238}Pu + ^{239}Pu + ^{240}Pu$	$(8,6 \pm 0,9) \cdot 10^9$	$(2,8 \pm 0,4) \cdot 10^9$
^{241}Am	$(3,1 \pm 0,9) \cdot 10^9$	$(7 \pm 1) \cdot 10^8$
$U, \text{ кг/дм}^3$	$0,83 \pm 0,12$	$0,74 \pm 0,11$

Дослідження властивостей радіоактивних паливних частинок, відібраних з ґрунтів п'ятикілометрової зони [44-48] показали існування різних типів частинок.

Так, автори [44-48] виділяють частинки, які утворилися під час аварії при високих температурах. Вони характеризуються зокрема, меншим вигоранням палива порівняно із середнім для всього реактора; збагаченням за ^{95}Zr і ^{125}Sb (сурма) відносно ^{144}Ce в 1,5 рази в порівнянні з середнім складом

РОЗДІЛ I

палива і викидами поза п'ятикілометрова зоною; сильним збідненням ізотопами цезію та в меншій мірі стронцію. Збіднення за цезієм пояснюється міграцією радіонуклідів у паливі та втратою частини продуктів розпаду при високо-температурному відпалі палива в аварійному блоці під час аварії.

Таблиця 1.4

Середні значення коефіцієнтів фракціонування радіонуклідів у пробах двох видів частинок

Вид частинки	$f_{106\text{Ru}}$	$f_{137\text{Cs}}$	$f_{125\text{Sb}}$	$\frac{A_{134\text{Cs}}}{A_{137\text{Cs}}}$
1-й вид (U)	1,3	0,7	1,5	0,56
2-й вид ($U - Zr$)	0,6	0,2	3,4	0,25

Характеристика цих частинок подібна до характеристики уран-цирконієвих частинок $U - Zr$ за типізацією [33, 59]. Ці частинки локалізовані в основному на вузькому західному сліді.

Після руйнування реактора в період з 26.04.86 до 06.05.86 проходило диспергування ядерного палива за рахунок його окислення в повітрі, що привело до утворення іншого типу мікронних частинок, радіус яких становить коло $(2-3) \cdot 10^{-6}$ м. Вони осіли за границями п'ятикілометрової зони північного і південного слідів. В цих паливних частинках втрата цезію була меншою, оскільки утворення їх відбувалось при порівняно низьких температурах – 1000°K . Цей тип частинок аналогічний U -виду частинок за типізацією [33, 59].

Два види паливних частинок, що мають різну історію і час утворення, характеризуються різними фізико-хімічними властивостями [32, 44-48, 59]. Вони по різному трансформуються у природних умовах, що впливає на міграцію радіонуклідів у зовнішньому середовищі. Стабільність частинок у зоні ви-

РОЗДІЛ 1

вітрювання підтверджується низьким ступенем вилугування радіонуклідів (біля 1%), навіть для проб, які піддавалися атмосферним факторам протягом 4-5 років. При цьому менша ступінь вилугування спостерігалась для частинок змішаного уран-цирконієвого складу [59] (див. розділ 4). Додаткову стійкість цим частинкам надають аморфні скломаси, що покривають їх і цементують агрегати і новоутворення, наявність важкорозчинних сплавів і конгломератів паливних частинок зі сполуками цирконію і кремнію. Слід зазначити, що частинки першого виду (оксидів урану) легше руйнуються, ніж другого (змішаного уран-цирконієвого складу), утворюючи мікроблоки – „гарячі” частинки, які легко мігрують.

Поведінка різновидів паливовмісних частинок та їх складових компонент буде визначатися як властивостями їх окремих зерен, так і характером дії на них зовнішніх факторів.

Мобільність паливної компоненти радіоактивного забруднення залежить від швидкості деструкції паливних частинок; ступеня вилугування радіонуклідів з паливних частинок; інтенсивності та енергії сорбції вилугуваних радіонуклідів твердою фазою ґрунту.

Підкреслимо, що до аварії на ЧАЕС дані про поведінку радіонуклідів, які випали у складі паливних частинок, були повністю відсутні. При цьому радіонукліди, що локалізовані у початкових випаданнях у матриці паливних частинок, відрізняються малими міграційними властивостями порівняно з конденсаційною компонентою випадань і глобальними випаданнями.

1.3. Паливовмісні скломаси

Паливовмісні скломаси, які утворилися при взаємодії палива з конструкційними матеріалами, були предметом ряду досліджень [9, 13, 16, 33, 37 63, 88-92, 98-100, 118]. Значна

РОЗДІЛ 1

частина цих паливовмісних мас (біля $0,6 \cdot 10^5$ кг) знаходиться у підреакторних приміщеннях 4-го блоку [90, 91].

До аварії в 4-блоці містилось біля $2,12 \cdot 10^5$ кг палива у вигляді двоокису урану, який не взаємодіє з водою у нейтральних і лужних середовищах за відсутності кисню [63]. В процесі аварії було зруйновано цирконієві оболонки твелів. Значна частина палива була розігріта до температури вище 1300°K . В таких умовах при наявності кисню проходить перетворення двоокису урану в уран ступеня окислення IV, який характерний для добре розчинних сполук урану (сполуки уранілу).

Крім цього після вибуху реактора порушилася тепловіддача у шахті реактора, температура піднялася вище 1900°K , в результаті цього розплавилась цирконієві оболонки твелів і пройшла взаємодія розплавленого цирконію з діоксидом урану. Цей розплав при взаємодії з конструктивними матеріалами і матеріалами засипки утворив декілька модифікацій лавоподібних паливовмісних матеріалів, так звані чорну і коричневу кераміки, а також шлакоподібні паливовмісні матеріали з аномально високим вмістом ізотопів плутонію [9, 63].

Центральна частина паливних таблеток, збіднена на плутоній, після руйнування оболонки твелів при високій температурі і наявності кисню, перейшла з компактної форми діоксиду урану в дрібнодисперсний порошок закису-окису урану (U_3O_8). Ця форма палива (зі зниженим вмістом плутонію) у вигляді пилу була винесена повітряними потоками за межі області утворення паливовмісних скломас.

При високих температурах у приміщеннях „Укриття” проходило випаровування відносно летючих продуктів розпаду, зокрема, ^{137}Cs , ^{106}Ru та ^{125}Sb і ^{154}Eu . При конденсації цих парів утворювались „гарячі частинки”, які у значній мірі визначають поверхневе забруднення внутрішніх приміщень „Укриття”, причому найбільший внесок дає ^{137}Cs .

РОЗДІЛ 1

Таким чином, в об'єкті „Укриття” містяться три основні модифікації палива, які визначають забруднення вод 4-го блоку довгоживучими радіонуклідами, зокрема, дисперговане паливо у вигляді закису-окису урану (U_3O_8), „гарячі частинки” конденсаційного типу та лавоподібні паливовмісні матеріали [63].

Станом на 1990 рік у водах, що знаходяться в деяких нижніх приміщеннях об'єкту, виявлено розчинні форми урану, плутонію, америцію. Причиною появи розчинних сполук є руйнування палива під впливом різних факторів, особливо при взаємодії з водою, яка проникає у приміщення через тріщини у конструкціях [13].

Радіоактивні новоутворення 4-го блоку ЧАЕС вивчалися на пробах, відібраних із свердловин і приміщень підреакторного простору – паророзподільчого каналу (ПРК) і басейну барботера (ББ) [33]. Вивчення зразків частково розкристалізованих порід, різноматнітних за структурою скломас, металевих фрагментів, проб бетону і графіту дозволило розробити структурно-генетичну класифікацію техногенних новоутворень, яка наведена в таблиці 1.5.

В роботах [13, 14, 33, 79, 92] подано опис виділених видів паливовмісних продуктів аварії з підреакторних приміщень. Характеристики деяких видів матеріалу наведені далі.

Таблиця 1.5

Класифікація радіоактивних техногенних новоутворень аварійного блоку ЧАЕС

Тип	Шифр виду	Вид
1	2	3
Малозмінений матеріал	1.1	Бетон
будівельних,	1.2	Графіт
захисних споруд,	1.3	Метал
металева арматура	1.4	Матеріали засипки блоку (пісок, доломіт і т.д.)

РОЗДІЛ 1

1	2	3
Новоутворені суміші	2.1	<i>механічні</i> Брекчії
	2.2	Конгломерати <i>термічні</i>
	2.3	Склобрекчії
	2.4	Шлаки
Новоутворені породи і мінерали	3.1	<i>нерозкристалізовані</i> Скло
	3.1.А	Бурі скломаси
	3.1.Б	Темні скломаси
	3.2	Пемзи
	3.3	<i>розкристалізовані</i> Техноліти (назва визначається особливостями структури і складу)
Гранули	4.1	Склогранули
	4.2	Металеві гранули

Результати дослідження зразків з підреакторних приміщень на ступінь радіоактивного забруднення наведено в таблиці 1.6. Для порівняння ступеня і складу забруднення в різних видах викидів у таблиці 1.6 наведено також середні дані радіоактивних характеристик паливних частинок з ближньої зони (табл. 1.1, 1.2, 1.4).

Бетон (вид 1.1). За характером радіоактивного забруднення розрізняється „старий бетон” і „новий бетон”. Старий бетон – це бетон будівельних і захисних конструкцій. Його забруднення радіонуклідами є поверхневим або ін’єкційним у тріщинах. При цьому типі забруднення спостерігається збагачення радіонуклідного складу паливних частинок ^{106}Ru , ^{137}Cs і ^{134}Cs . Новий бетон, який був закачаний в приміщення 4-го блоку після аварії

РОЗДІЛ 1

при побудові об'єкту „Укриття”, містить мікровключення паливовмісних частинок у цементній матриці.

При дослідженні зразків бетону виявлено збагачення їх ізотопами ^{125}Sb в середньому у 4 рази, а ^{137}Cs і ^{134}Cs в 2 рази, тоді як для радіонукліду ^{154}Eu можна констатувати збіднення в 1,7 разів [15].

Конструкційно-будівельні матеріали, забруднені радіонуклідами, не представляють самостійної структурно-генетичної групи, однак наявність навіть невеликої кількості радіоактивних компонентів у бетоні та графіті визначають конкретне джерело і можливі шляхи розповсюдження і міграції опроміненого палива.

Графіт (вид 1.2) з приміщень підреакторного простору є збідненим по відношенню до ^{144}Ce як на ^{106}Ru , так і на ^{137}Cs (таблиця 1.6).

В зоні вивітрювання частинки графіту достатньо швидко подрібнюються, і легкі дрібнодисперсні частинки переносяться поверхневими водними потоками або проникають вглиб піскових ґрунтів. Великі частинки графіту (біля $2 \cdot 10^{-3}$ м) постійно присутні у верхніх ґрунтових шарах ближньої зони західного сліду.

Інших характеристик про графіт у літературі не знайдено.

Метал (вид 1.3) і *металеві гранули* (вид 4.2) пов'язані з радіоактивними скломасами з приміщень підреакторного простору. Це можуть бути великі окремі виділення з напливами або сферичні вклучення (гранули). Діаметр металевих гранул становить $0,5 \cdot 10^{-6} - (2-3) \cdot 10^{-3}$ м. Основним компонентом цих новоутворень є залізо з домішками хрому, нікелю, титану, міді, цинку тощо. Металеві гранули мають певні магнітні властивості і високу твердість. β -випромінюючі радіонукліди розподілені рівномірно по цілому зрізі гранул, тоді як α -випромінюючі радіонукліди зареєстровані тільки на поверхні. Що правдоподібно пов'язано з неусуненими фрагментами скла при підготовці препарату до експерименту.

РОЗДІЛ 1

Бурі скломаси (вид 3.1.А) широко представлені в приміщеннях паророзподільчого каналу і басейну барботера. Досліджувані зразки є сургучоподібною масою бурого кольору зі скляним або жирним блиском. Їхня густина залежить від кількості металевих включень і складає $(2,4-3,15) \cdot 10^3 \text{ кг/м}^3$. Текстура каверно-пориста. Бурий колір зразків визначається наявністю великої кількості червоно-бурих включень агрегатів мікролітів і кристалів. Зустрічаються включення розміром $(0,2-0,8) \cdot 10^{-6} \text{ м}$ малозмінених нерадіоактивних частинок кварцу, польового шпату, графіту. Присутні також багато металевих округлих включень, діаметр яких коливається від часток мікрометрів до кількох міліметрів. Найбільший інтерес представляють мікровключення двох новоутворених мінералів, генетично зв'язаних з ураном і цирконієм. Мікрокристали та агрегати оксидів урану мають розміри $(0,8-10) \cdot 10^{-6} \text{ м}$, їх колір – оранжевий, червоний і бурий. У зразках присутні сферичні включення діоксиду урану. Для визначення вмісту радіонуклідів відбирали зразки бурих скломас з мінімальною кількістю металевих включень, які вибірково концентрують у собі ^{106}Ru (таблиця 1.6).

Темні скломаси (вид 3.1.Б) нагадують вулканічне скло (обсидіан). У них сильний скляний блиск, однорідна або пориста структура. В макрозразках цей вид має насичений коричневий колір, а в тонких сколах і шліфах – зелений та плямистий. На колір скломаси впливають включення: червоно-бурий ураніт і чорний графіт. Густина темних скломас є $(2,8-2,9) \cdot 10^3 \text{ кг/м}^3$. Розміри пор газових включень: $(3-22) \cdot 10^{-6} \text{ м}$, але зустрічаються каверни діаметром приблизно $8 \cdot 10^{-3} \text{ м}$. Включення за складом в основному такі самі, як і в бурих скломасах.

Питома активність ^{144}Ce у темних скломасах в два рази нижча, ніж у бурих (таблиця 1.6), але бурі різновидності втратили, як правило, більше рутенію і цезію по відношенню до церію. Така відмінність при відносно близькому компонентному складі пояснюється неоднаковими окисно-відновними умовами

РОЗДІЛ 1

консолідації скломас. Різні умови стабілізації радіонуклідів у компонентах бурих і темних скломас призвели до різної швидкості вилуговування радіонуклідів. Так швидкість вилуговування ^{144}Ce , ^{106}Ru , ^{137}Cs з бурого скла вища, ніж з темного.

В дослідженнях міжгалузевого науково-технічного центру „Укриття” НАН України проведено радіохімічний та спектний аналізи зразків паливовмісних скломас, відібраних у приміщеннях 4-го блоку ЧАЕС [16]. Для аналізу взято зразки чорної кераміки (бура скломаса). Хімічний склад чорної кераміки дуже широкий. За результатами досліджень зразків чорної кераміки автори роблять висновки, що в чорній матовій лаві міститься приблизно 4% палива, яке збіднене по ^{137}Cs та ^{134}Cs в 2 рази.

Чорна кераміка сильно і нерівномірно збіднена за рутенієм. Так зменшення рутенію у зразках порівняльно з розрахунковими коливається від 11 до 90 разів. При цьому в усіх зразках спостерігається закономірне збіднення ^{154}Eu у 2,2 рази.

Цікавим також є факт збагачення палива у чорній кераміці на плутоній в 1,4-1,8 разів у порівнянні з теоретично очікуваним.

Пемзоскло (вид 3.2) знаходиться в основному в приміщенні басейну барботера. Це крихка, рихла скломаса сіро-коричневого, бежевого або бурого кольору з багаточисельними газовими включеннями (кавернами) діаметром до $7 \cdot 10^{-3}$ м і з дрібними порами діаметром $(1,5-9,0) \cdot 10^{-6}$ м. Мікровключення мають структуру аналогічну до мікровключень бурого скла, але розміри їх менші і розподіл у зразках пемзоскла нерівномірний. Густина невеликих зразків є меншою $1 \cdot 10^3$ кг/м³, а дрібних частинок скла до $2,5 \cdot 10^3$ кг/м³. Пемзоскло і буре скло утворилися зі спільного вихідного розплаву, що підтверджується близькістю їхнього хімічного складу, концентрацій і співвідношенням основних радіонуклідів (таблиця 1.6). Досліди з вилуговування підтверджують неоднорідність розподілу радіонуклідів за різними складовими пемзоскла [88].

РОЗДІЛ I

Таблиця 1.6.
Радіонуклідні характеристики техногенних новоутворень

Шифр виду	Характер проби	Номер проби, місце відбору	^{144}Ce Бк/кг $\cdot 10^{12}$	$f_{106\text{Kи}}$	$f_{137\text{Cs}}$	$\frac{A_{134\text{Cs}}}{A_{137\text{Cs}}}$
1	2	3	4	5	6	7
1.1	Бетон	19	0,0041	0,33	1,6	0,51
		20	0,000085	140,0	6,4	0,58
		22	0,000007	0,5	2,5	0,52
		8-Б-2	0,0041	0,1	0,11	0,51
1.2	Графіт з під-реакторних приміщень	16	0,72	0,13	0,28	0,54
		17	0,17	0,97	0,09	0,61
		18	0,053	0,67	0,87	0,46
1.3	Переплавлений метал	ПРК	0,01	190,0	0,57	0,27
3.1.А	Бурі скломаси	ББ	2,8	0,027	0,26	0,56
		ПРК	2,3	0,023	0,32	0,48
		ББ	2,2	0,017	0,32	0,48
		ПРК	2,2	0,027	0,33	0,44
			2,1	0,03	0,37	0,56
			2,1	0,02	0,34	0,46
			2,0	0,007	0,28	0,51
3.1.Б	Темні скломаси	ББ	1,3	0,2	0,61	0,53
		ПРК	1,2	0,1	0,54	0,5
		ББ	1,1	0,27	0,53	0,5
		ПРК	1,1	0,13	0,6	0,48
			0,97	0,01	0,28	0,44
3.2	Пемзовидні скломаси	ББ	0,94	0,03	0,34	0,48
			2,8	0,023	0,023	0,023
			2,6	0,027	0,027	0,027
			2,5	0,017	0,017	0,017
			2,2	0,013	0,013	0,013
			2,1	0,04	0,04	0,04

РОЗДІЛ I

Продовження таблиці 1.6

1	2	3	4	5	6	7
3.3	Частково розкристали- зовані скломаси	ББ	2,5	0,04	0,33	0,59
			2,5	0,061	0,35	0,54
4.2	Металеві гранули	ББ	0,0013	1200	0,11	-
			0,0033	500	0,43	-
		Сверд- ловина	0,00009	5	1,6	0,49
			ПРК	0,0086	210	0,43
		ББ	0,0043	430	-	-
		ПРК	0,0038	530	0,36	0,44
<i>Матеріали з ближньої зони</i>						
	Графіт ближньої зони	1	0,14	1,5	0,71	0,46
		5	0,7	1,1	1,0	0,49
		10	0,0043	1,7	1,0	0,44
	Частинки опроміненого урану Уран- цирконієві частинки		12,5	1,3	0,9	0,56
			4,5	0,55	0,33	0,25

ПРК – паророзподільчий канал; ББ – басейн барботера; 8-Б-2 – новий бетон

Техноліти (вид 3.3) – розкристалізований матеріал з приміщень басейну-барботера. Це матеріал сірого кольору, з матовим блиском, з численними кавернами, який зовнішньо нагадує дрібнопористу пемзу (густина технолітів складає $2,4 \cdot 10^3 \text{ кг/м}^3$). Його основна частина складається зі скла з включеннями подовгастих кристалів $(50-120) \cdot 10^{-6} \text{ м}$ мінералів групи поліавігту, які є метасилікатами магнію, заліза і кальцію. Температура

РОЗДІЛ 1

кристалізації мінералів цієї групи поліавгіту в базальтових лавах знаходиться в межах 1100-1500°K.

В частково розкристалізованій породі присутні кілька типів мікрровключень: ураніт у формі кубічних кристалів яскраво-червоного кольору $(2-4) \cdot 10^{-6}$ м, циркон у формі діпірамідальних, добре огранених кристалів $(5-7) \cdot 10^{-6}$ м; сферичні мсталеві вклучення $(2-6) \cdot 10^{-6}$ м. Так, радіонуклідні характеристики частково розкристалізованої породи наведено в таблиці 1.6.

Аналіз елементного, фазового і радіонуклідного складу лавоподібних паливовмісних матеріалів дозволяє зробити висновок, що аномальний вміст ізотопів плутонію у цих матеріалах пов'язаний з розплавом уран-цирконій кисневої фази, яка утворилася при взаємодії збагаченої плутонієм периферійної частини паливних таблеток, з внутрішньою поверхнею цирконієвої оболонки твела в інертному або відновлюючому середовищі. Вміст плутонію в такому розплаві може бути більшим у 2-3 рази, ніж паливні значення [9].

1.4. Територіальний розподіл забруднення

Територіальний розподіл окремих видів техногенних новоутворень в основному має такий характер: аерозольно-конденсаційне забруднення, яке охопило значні території і його можна віднести до глобального типу; паливовмісні частинки сконцентровані в основному у ближній зоні (30-кілометрова зона); радіоактивні скломаси, переплавлений метал, конструктивно-будівельні матеріали знаходяться у границях проммайданчика і приміщень аварійного блоку.

Що стосується неокислених паливних частинок першого викиду, які з'явилися в результаті механічного руйнування ядерного палива, то вони утворили вузький західний слід (10-15 % активності довгоживучих радіонуклідів), а частинки, які

РОЗДІЛ 1

виникли в результаті окислення ядерного палива, утворили північний (60-70 %) та південний (20-25 %) сліди активності.

Найвнє також перекриття різного виду забрудненнями тих самих територій: цезієві плями конденсаційного забруднення спостерігаються у ближній зоні, а паливні частинки виявлені у країнах Європи. Наприклад, території Брянської, Калузької і Тульської областей мають в основному конденсаційний тип забруднення ґрунтів, Гомельська область – паливний, а Брестська область – змішаний тип забруднення.

У прилеглих до промайданчика радіоактивних мулах забруднення представлене в основному диспергованим реакторним паливом.

Поведінка радіоактивного забруднення „далеких” слідів визначається в основному поведінкою цезія в різного типу ґрунтах.

Територія „ближніх” слідів (30-кілометрова зона) характеризується суперпозицією двох компонент випадань – конденсаційною компонентою і паливною компонентою. Паливна компонента представлена твердофазними випаданнями різноманітного дисперсного складу з матрицею переважно з оксидів урану, що містять великий спектр продуктів розпаду, включаючи ^{137}Cs , ^{134}Cs , ^{90}Sr , ^{144}Ce , ^{106}Ru , ізотопи плутонію, трансуранові елементи та інші. Співвідношення конденсаційної компоненти і паливної компоненти є різними на різних напрямках і відстанях. Для чистопаливної компоненти радіоактивних чорнобильських випадань відношення активностей ^{137}Cs до активностей ^{90}Sr ($A_{^{137}\text{Cs}}/A_{^{90}\text{Sr}}$) близьке до одиниці. З віддаленням від ЧАЕС це відношення зростає за рахунок збільшення частки конденсаційної компоненти випадань, основною радіоактивною складовою яких є цезій [37]. Радіонукліди ^{90}Sr , $^{238-241}\text{Pu}$ і ^{241}Am були викинуті з реактора в основному у складі паливних частинок. Тому радіаційна ситуація за межами

РОЗДІЛ 1

30-кілометрової зони аварії визначається в основному тільки ^{137}Cs , а в її межах найбільше значення має забруднення ^{90}Sr [45], плутонієм та америцієм [66].

Автори роботи [13] підтверджують також той факт, що в „ближній” зоні (10 км) ґрунт, вода, повітря забруднене в основному радіонуклідами паливного викиду. Незалежні випадання цезію не дали істотного внеску у сумарну радіоактивність. Співвідношення активностей ^{137}Cs і ^{144}Ce на різних відстанях від реактора наведено в таблиці 1.7.

Таблиця 1.7

Збільшення відносної активності ^{137}Cs зі зростанням відстані від зруйнованого реактора (дані травня 1986 р.)

Відстань від 4-го блоку, (км)	Відношення активностей в ґрунтових пробах $A_{^{137}\text{Cs}} / A_{^{144}\text{Ce}}$
0,05	0,069
0,6	0,078
3	0,068
30	0,19
60	7,5

В результаті досліджень 1987-1989 років (Інститут атомної енергії ім. І.В.Курчатова та „Радієвий інститут” ім. В.Г. Хлопіна) за аналізами тисяч проб ґрунту зроблено висновок, що під час аварії викид палива з реактора 4-го блоку складав $3 \pm 1,5$ %, причому ^{137}Cs – 2,1 % накопиченого перед аварією, ^{90}Sr – 1,5-2 %, ізоотопів плутонію – 1,5 % [13]. Подальші дослідження за територіальним розподілом ^{90}Sr в 30-кілометровій зоні показали, що попередня оцінка активності стронцію завищена приблизно в 3 рази і складає 0,4-0,5 % від його

РОЗДІЛ I

вмісту в 4-блоці ЧАЕС [8, 47]. На основі проведеної оцінки викиненого в оточуюче середовище палива в результаті аварії і того, що залишилося в об'єкті „Укриття” зроблено висновок, що більше 95 %, тобто $1,80 \cdot 10^5$ кг опроміненого палива із зруйнованої активної зони реактора знаходиться в об'єкті. Викид ^{137}Cs за границі об'єкту складає – 33 ± 10 %, викид радіоактивного йоду – приблизно 50-60 % [13].

Підсумовуючи, зауважимо, що з вищенаведеного виникає так звана генетична [33] класифікація радіоактивних забруднень:

- аерозольно-конденсаційні мікрочастинки глобальних випадань з різким фракціонуванням, аж до моноізотного складу радіонуклідів;
- малозмінені частинки опроміненого палива, які знаходяться на проммайданчику, в складі випадань ближньої і далекої зон;
- частинки випадань змішаного уран-цирконієвого складу, це – продукти глибокого термохімічного перетворення твелів;
- скломаси приміщень підреакторного простору, які містять новоутворені мінерали ураніт і циркон – продукти повної асиміляції і наступної кристалізації компонентів твелів;
- перешлавлені металеві сплави на базі заліза, які зі силікатних розплавів екстрагують вибірково ^{106}Ru ;
- конструкційно-будівельні матеріали, забруднені різними способами опроміненим паливом і його компонентами.

РОЗДІЛ 2

МІГРАЦІЙНІ ВЛАСТИВОСТІ ҐРУНТІВ І РАДІОНУКЛІДІВ

2.1. Чинники, що зумовлюють мобільність радіонуклідів у геосфері

Мобільність радіонуклідів у ґрунтах залежить в першу чергу від співвідношення конденсаційної і паливної компонент. Для радіоізотопів стронцію, церію, плутонію та інших тугоплавких елементів, які представлені практично лише паливною компонентою, мобільність залежить від швидкості деструкції паливних частинок, а також інтенсивності сорбції вилужених радіонуклідів твердою фазою ґрунту і міцністю цього зв'язку. Процеси трансформації в залежності від конкретних умов можуть проходити з різними швидкостями. Мобільність радіонуклідів міняється з часом і може істотно відрізнятись від їхньої мобільності у початковий момент часу. Зокрема, вміст обмінних форм у пробах ґрунтів, відібраних в 1988-1989 роках на територіях, що характеризуються переважанням паливної компоненти забруднення, коливається від 5-10 % до 80-90 %.

Мобільність радіонуклідів, які знаходяться на території промайданчика об'єкту „Укриття”, залежить також від розподілу їх між різними фазами дисперсного ґрунту. Небезпека міграції радіонуклідів, зосереджених на території промайданчика, полягає у проникненні значної їх кількості у р. Прип'ять і водоносні горизонти ближньої зони ЧАЕС через наяв-

ність тріщин у конструкціях і технологічні проходи, наприклад, кабельні канали. При контакті радіоактивної речовини з водою атмосферного походження і технологічними розчинами спостерігається руйнування паливовмісних мас і перехід у розчинений і колоїдний стан не тільки ізотопів цезію і стронцію, але й α -випромінюючих ізотопів урану, плутонію та інших трансуранових елементів [6, 7, 25, 35, 90, 91].

На міграційну здатність радіонуклідів у навколишньому середовищі впливає цілий комплекс причин. Чинники, що зумовлюють рухливість радіонуклідів у геосфері і зв'язану з нею швидкість міграції елементів у ґрунті, можна розділити на дві групи [116].

Перша з них пов'язана із впливом характеристик ґрунту, зокрема, його мінералогічного, хімічного та гранулометричного складу, а також стану зволоженості, складу органічної речовини і кислотності ґрунтового розчину.

До другої групи віднесено вплив фізико-хімічних властивостей радіонуклідів: знак і величину валентності іона, форму хімічної сполуки, здатність до адсорбції, комплексоутворення та гідролізу. Значний вплив на рухливість радіонуклідів мають також їх форми перебування у радіоактивному випаданні.

Полідисперсність ґрунту визначає величину його внутрішньої поверхні і це в першу чергу впливає на кількісні параметри кінетики адсорбції і десорбції іонів. Швидкість цього процесу залежить від властивостей порового розчину та розчинності радіонуклідів. Так, наприклад, чим менші частинки, у склад яких входять радіоактивні атоми, тим швидше встановлюється іонообмінна рівновага. Вважається, що адсорбція проходить на поверхні частинок ґрунтових мінералів (глинистих), які мають нескомпенсований електричний заряд кристалічної ґратки або іонні сполуки, що здатні до дисоціації в контакт з розчином.

Лабораторні дослідження впливу диспергованості мінералів на їхні сорбційні властивості показали, що збільшення диспергованості мінералів дозволяє суттєво підвищити сорбційні

РОЗДІЛ 2

характеристики зразків за рахунок збільшення вкладу бокових граней у сумарну поверхню зразка, особливо для мінералів з досконалою структурою. Збільшення величин сорбції здійснюється перш за все за рахунок іонообмінних центрів на бокових гранях [55].

Прохоров В.М. [84] до основних чинників впливу на міграцію відносить обмінну адсорбцію радіонуклідів у формі катіонів.

Вирізняється також така форма фіксації радіонуклідів, як „міцна” адсорбція (на відміну від іонообмінної адсорбції) та адсорбція, що пов’язана з утворенням нерозчинних солей. Фіксація у формі „міцної” адсорбції зумовлена тим, що деякі іони мають такі розміри, які дозволяють їм проникнути і закріпитися у внутрішньому міжкристалічному просторі або проникнути безпосередньо у кристалічну ґратку мінералів. Фіксовані іони, на відміну від обмінно адсорбованих, не витісняються десорбуючими солевими розчинами (в еквівалентній кількості), хоча і здатні повільно переходити у розчини. Наявність глинистих мінералів у ґрунтах може суттєво змінити поведінку радіонуклідів. Фіксація часто ускладнює, або робить взагалі неможливим, застосування до оцінки сорбційних властивостей ґрунту рівняння іонного обміну. Підкреслимо, що ^{137}Cs відноситься до радіонуклідів, які добре фіксуються багатьма типами ґрунтів.

Суттєвий вплив на розподіл радіонуклідів між ґрунтовими компонентами має кількісний і хімічний склад органічної фракції. Хоча органічні речовини представляють незначну частину мінеральних ґрунтів, визначальним фактором є їхня здатність зв’язувати радіонукліди за рахунок фізичної сорбції на поверхні частинок, реакцій іонного обміну і комплексоутворення, а також здатності екранувати мінеральні частинки, попереджаючи цим самим сорбцію радіонуклідів. Ці явища відбуваються у тому випадку, коли розглядаються процеси взаємодії ґрунту з іонними або добре розчинними формами радіонуклідів і при достатньо довгому часі їх контакту [63].

РОЗДІЛ 2

В загальному випадку взаємодія органічних речовин з радіонуклідами може привести як до прискорення, так і до сповільнення міграції, в залежності від їхнього фізико-хімічного складу. При цьому, як правило, комплексоутворення збільшує швидкість міграції радіонуклідів, а адсорбція – зменшує. Високомолекулярні складові ґрунтового гумусу покривають мінеральні частинки ґрунту і заважають проникненню іонів до їхньої поверхні. Це зменшує адсорбцію на мінеральних частинках ґрунту. Причому, якщо для більшості іонів цей ефект компенсується адсорбцією на молекулах складових гумусових речовин, то, наприклад, для ^{137}Cs , який практично не адсорбується гумусом, його значна адсорбція здійснюється за рахунок його фіксації мінеральними складовими ґрунту [55].

На міграційні властивості радіонуклідів також істотно впливає кислотність ґрунтів. Кислотність ґрунтів спричинена наявністю у ґрунтовому розчині вільних органічних і мінеральних кислот. Кислотність ґрунтових розчинів pH для більшості ґрунтів приймає значення в межах від 3 до 9. Зазначимо, що значення $pH = 6,7$ означає нейтральну реакцію ґрунту, $pH < 6$ – кислу, а $pH > 7$ – лужну [101].

На міграцію радіонуклідів має вплив і присутність мікроорганізмів у ґрунтах, роль яких ще мало вивчена. Участь мікрофлори у взаємодії з радіонуклідами можливо полягає у вибіркового поглинанні іонів радіонуклідів, включення їх в метаболічні процеси з наступним частковим виділенням мікроорганізмами в іонній формі або у формі хімічних сполук з органічними речовинами. Зовнішньо це проявляється аналогічно адсорбції елементів неживою органічною речовиною. Тим не менше між цими процесами є і певні відмінності [84].

Крім цього при дослідженні міграції необхідно враховувати змінність властивостей ґрунту у часі (температурні і водні режими; процес росту і відмирання рослин; господарська діяльність людини).

РОЗДІЛ 2

2.2. Вплив типових ґрунтів на міграцію радіонуклідів

Типовими ґрунтами 30-кілометрової зони ЧАЕС є [19]:

- дерново-підзолисті супіскові (с. Стара Рудня);
- дерново-підзолисті старозорані супіскові (с. Коргород);
- дерново-підзолисті старозорані легкосуглинисті (м. Чорнобиль);
- дерново-середньопідзолисті легкосуглинисті (с. Кливини);
- поверхнево підзолисті супіскові (с. Копачі);
- алювіальні дернові кислі супіскові (с. Беневка і лівобережна заплава р. Прип'ять);
- алювіальні дернові кислі легкосуглинисті (с. Рудня Льбинецька).

Різні ґрунти складаються з достатньо обмеженого набору мінералів і часто відрізняються лише їхнім кількісним співвідношенням. Типовими мінеральними компонентами ґрунтів є монтморилоніт, каолініт, іллініт, галлуазіт.

Найбільші сорбційні властивості має монтморилоніт [55]. Великі значення величин сорбції зумовлені особливостями структури монтморилоніта і можливістю сорбції іонів цезію не тільки на зовнішній поверхні, але й проникненням їх у міжшаревий простір із заміщенням відповідних іонообмінних позицій. Монтморилоніт, наприклад, Черкаського родовища – це глинистий мінерал з набухаючою структурою, каолініт Глуховського і Глуховецького родовищ – глинистий мінерал з ненабухаючою шаруватою структурою різним ступенем досконалості. Для мінералів з ненабухаючою структурою величини сорбції суттєво менші.

Для мінералів групи монтморилоніту і вермикуліту відмічено, що їхня обмінно-сорбційна ємність на 80 % зв'язана з внутрішніми заміщеннями у кристалічній структурі, які також

РОЗДІЛ 2

приводять до некомпенсованих зарядів, що виникають на базальній спайній площині. Іноді ці внутрішні заміщення компенсуються зарядами інших іонів ґратки, але частіше адсорбованими катіонами розчину. На долю іонного обміну на гранях мінеральних лусок монтморилоніту і вермикуліту припадає 20 % сорбційної ємності цих мінералів.

В деяких мінералах типу іліту наявні сорбційні клиноподібні центри з великою селекційною здатністю стосовно різних радіонуклідів [51]. За величиною селективної здатності розрізняють три основні типи іонообмінних сорбційних центрів. Сорбційні центри максимальної ємності і мінімальної селективності, як правило, відносять до звичайної іонообмінної поверхні. Два інші типи сорбційних центрів з меншою ємністю, але значно більшою селективністю називають клиноподібними. Клиноподібні центри знаходяться в області крайових частин міжпакетних просторів кристалічної ґратки, які розширюються до поверхні. В англомовній літературі неселективні сорбційні центри, які розміщені на поверхні частинок, позначають скорочено RES (Regular Exchange Sites); сорбційні центри, що знаходяться між шарами кристалічної ґратки в області розширених країв, позначають FES (Frayed Edge Sites). Специфічне розміщення клиноподібних центрів сорбції зумовлює їх високу селективність по відношенню до іонів з низькою енергією гідратації.

Показано [34], що для мінералів ілітової групи ємність катіонного обміну зв'язана з наявністю порушених хімічних зв'язків на краях зруйнованих граней (FES) глинистих частинок. Існування таких порушених зв'язків приводить до появи некомпенсованого заряду, який в значній мірі може нейтралізуватися адсорбованими з розчину катіонами. Захоплені катіони можуть обмінюватися на інші катіони розчину. За експериментальними даними ємність катіонного обміну зруйнованих граней ілітів складає всього 2,75 %, тоді як решта 97,25 % об'ємної ємності припадає на спайні поверхні. Однак інтенсивність протікання іонного обміну на цих зруйнованих гранях

РОЗДІЛ 2

на стільки висока, що на них при малих концентраціях радіонукліду в розчині осідає до 75 % сорбованого катіону.

Головною причиною іонообмінної здатності каолінітових і галлуазитових мінералів, як і мінералів іллітової групи є порушені зв'язки на краях обламаних граней глинистих частинок. Крім цього сорбційна ємність цих мінералів створюється за рахунок часткового заміщення протонів у деяких гідроксильних групах, які знаходяться на краях цих зруйнованих граней. Таке оголювання *ОН*-групи пов'язане з особливостями структури каолініту і галлуазиту (шари гідроксилу розміщені на одній стороні базальної площини спайності). Вздовж цієї площини найчастіше проходить розшарування лусок мінералів.

Органічні речовини у ґрунтах складають близько 8-10 %. В органічній фракції ґрунту радіонукліди містяться в так званих гумусових кислотах, які об'єднують гумінові і фульвокислоти. Це складні суміші біохімічно стійких високомолекулярних з'єднань. Гумусові кислоти є сильно реактивно-здатними та активними іонообмінними речовинами, які утворюють міцні зв'язки з багатьма іонами, молекулами речовин, елементами, що перебувають у розчині, а також включених у кристалічну ґратку мінералів. Ці кислоти вступають у взаємодію з катіонами металів, утворюючи різноманітні види з'єднань. В основі цих взаємодій є процеси іонного обміну [36].

Гумінові кислоти містять циклічні структури і різноманітні функціональні групи (гідроксильні, карбонатні, карбоксильні, аміногрупи тощо), які визначають їхні кислотні та іонообмінні властивості. Молекулярна маса гумінових кислот коливається у широкому діапазоні та умовно приймається приблизно 900-1500. В склад фульвокислот входить специфічна елементна складова *СНО*, якої нема в гумінових кислотах. Молекулярна маса фульвокислот менша ніж 700. З ростом молекулярної маси розчинність солей, утворених металами з органічними кислотами, як правило, знижується. Це справедливо і для органокомплексів металів у ґрунтах. Фульвати різних металів у ґрун-

РОЗДІЛ 2

тах менш стійкі, ніж гумати [113, 114]. Гумінові кислоти мають ємність поглинання стосовно до Cs^+ і Sr^{2+} від 10 до 100 мг-екв/100 г [117]. Цей факт спричиняє зниження рухливості радіонуклідів у присутності гумінових кислот. Фульвокислоти утворюють розчинні комплексні сполуки з ^{90}Sr і ^{90}Y (іттрій-90) і збільшують результуючу рухливість радіонуклідів у ґрунті. Лабораторні дослідження [55] підтверджують, що наявність фульвокислот у розчинах знижує величину сорбції цезія глинистими мінералами. Цей ефект пов'язаний зі зниженням сорбційних характеристик цих мінералів щодо ^{137}Cs внаслідок сорбції на їхній поверхні самих гумінових речовин.

Вміст гумінових і фульвокислот залежить від типу ґрунту. Так вміст гумінових кислот зростає від дерново-підзолистих ґрунтів до чорнозему, а вміст фульвокислот відповідно зменшується.

Варто звернути увагу на донні відклади водоймищ і заплавл ближньої зони ЧАЕС. Для донних відкладів у водоймищах характерна наявність замулених пісків, а у заплавах – високого вмісту органічної речовини та біогенного карбонату [90]. У мулі як ультрадрібнодисперсній системі проходять інтенсивні окислювально-відновні реакції в умовах постійного зволоження [113, 114]. У мулах водоймища-охолоджувача проходить значна деструкція „гарячих” частинок, шляхом їх розпушення, гідратації та утворення сполук з природними органічними речовинами.

З досліджень [90] випливає, що перехід радіонуклідів у воду в замулених пісках відбувається з доступних для води позицій (мікротріщин, дефектів структури тощо), а також унаслідок безпосереднього розчинення матриці частинок.

Більша рухливість стронцію порівняно з цезієм у геохімічних процесах відома. У донних відкладах водоймища ця різниця у рухливості зростає. Це відбувається як унаслідок впливу кальцію, що знаходиться у природній воді, так і за рахунок

РОЗДІЛ 2

сорбції частини радіоцезію на високомолекулярній органіці та глинистих мінералах, які входять у склад мулу.

Так при дослідженнях форм знаходження радіонуклідів у донних осадах [78] виявлено, що ^{90}Sr поглинаються твердою фазою відкладу переважно за механізмом іонного обміну, тоді як ^{137}Cs швидко входить у кристалічну ґратку мінералів, а плутоній поглинається аморфними сполуками, які знаходяться на поверхні мінеральних частинок.

Часто до міграційних чинників радіонуклідів відносять гранулометричний склад ґрунтів. В роботі [65] визначено початковий розподіл радіонуклідів, що випали у результаті аварії на ЧАЕС, за ґрунтовими фракціями різного ступеня дисперсності та встановлено закономірності розподілу радіонуклідів залежно від гранулометричного складу ґрунтів і фізико-хімічних характеристик випадань. Дослідження проводились для дерново-підзолистих ґрунтів, забруднених частинками фрагментованого реакторного палива і радіоактивними аерозолями конденсаційного типу. Відбір проб проводився у травні – вересні 1986 року в ряді областей Росії, Білорусії, України. Ґрунти досліджуваних ділянок генетично близькі, але відрізняються гранулометричним складом у широкому діапазоні, а також складом радіоактивного забруднення. Для районів дослідження характерні слабко гумусовані дерново-підзолисті піскові і супіскові ґрунти, в яких переважають фракції середнього і дрібного піску, великого і дрібного порошу з невисоким вмістом мулистих фракцій. Масова частка мулистої фракції з частинками розміром менше, ніж $1 \cdot 10^{-6}$ м мала і змінюється у межах 0,5 – 3,1 %. Через малий вміст ця фракція не може розглядатися у досліджуваних ґрунтах як носій радіонуклідів. В таблиці 2.1 наведено гранулометричний склад ґрунтів досліджуваних ділянок [65].

Розподіл радіонуклідів за ґрунтовими фракціями відображає відмінності як у гранулометричному складі ґрунтів, так і в

РОЗДІЛ 2

дисперсності та абсолютній активності аерозольних частинок випадань. Основна частина радіоактивних випадань, які потрапили на поверхню ґрунту, розподіляється між фракціями порошу (30-80 %) і дрібного піску (48 %), за рахунок їх високої масової частки у досліджуваних зразках. У той же час до 30 % радіонуклідів можуть бути асоційовано з великими ґрунтовими фракціями з розміром частинок більше ніж $5 \cdot 10^{-4}$ м (таблиця 2.2).

Таблиця 2.1
Гранулометричний склад ґрунтів (%)

№ зразка	Місце відбору проби		Розмір фракції, $\cdot 10^{-3}$ м					
	район	область	< 0,05	0,05-0,1	0,1-0,25	0,25-0,5	0,5-1,0	> 1,0
1	2	3	4	5	6	7	8	9
1	1	Брянська	54,7	нема	22,7	7,6	4,1	10,9
2	1	Брянська	51,8	нема	30,3	6,1	3,4	8,4
3	2	Могилевська	35,7	нема	35,8	10,6	3,4	14,5
4	3	Гомельська	44,2	нема	44,8	6,8	2,3	1,9
5	4	Гомельська	61,0	нема	30,0	6,8	1,1	1,1
6	5	Гомельська	21,7	0,8	60,8	13,7	2,7	0,3
7	5	Гомельська	9,8	8,4	29,1	15,1	27,9	9,7
8	5	Гомельська	39,5	0,9	38,7	14,7	3,9	2,3
9	5	Гомельська	37,2	0,8	38,8	15,5	5,0	2,7
10	6	Гомельська	19,3	1,1	71,9	6,0	0,9	0,8
11	7	Київська	14,8	8,8	19,7	22,3	22,3	12,1
12	7	Київська	19,9	нема	29,5	24,0	19,4	7,2
13	8	Житомирська	15,3	1,5	76,7	2,3	0,4	3,8
14	8	Житомирська	15,5	0,8	77,5	3,1	1,6	1,5
15	9	Житомирська	19,1	нема	50,1	23,7	1,7	5,4

(Райони: 1 – Новозибківський, Брянська обл.; 2 – Чериківський, Могилевська обл.; 3 – Ветківський, Гомельська обл.; 4 – Брагінський, Гомельська обл.; 5 – Хойникський, Гомельська обл.; 6 – Наровлянський, Гомельська обл.; 7 – Чорнобильський, Київська обл.; 8 – Народницький, Житомирська обл.; 9 – Овруцький, Житомирська обл.)

РОЗДІЛ 2

Таблиця 2.2

Внесок ґрунтових фракцій різного розміру у сумарній активності ґрунтів (%)

№ зразка	Розмір фракції, $\cdot 10^{-3} \text{ м}$					
	< 0,05	< 0,1	< 0,25	< 0,5	< 1,0	> 1,0
1	78,4	нема	9,5	3,2	3,0	5,9
2	65,7	нема	11,4	4,5	4,8	13,6
3	13,9	нема	15,8	3,8	4,0	62,5
4	39,9	нема	25,1	7,9	4,7	22,4
5	66,8	нема	13,9	11,5	2,1	5,7
6	47,6	1,2	37,4	9,9	2,9	1,1
7	8,0	8,8	26,0	19,1	31,2	6,9
8	79,9	0,2	4,3	1,5	2,2	12,0
9	78,2	0,7	4,4	1,8	2,2	12,8
10	29,8	0,2	47,8	9,8	8,0	4,5
11	45,1	12,0	6,0	5,4	4,9	26,7
12	46,3	нема	11,2	9,7	9,9	22,9
13	56,9	0,6	18,6	2,8	3,1	18,1
14	48,9	0,3	21,7	5,9	11,5	11,9
15	74,8	нема	12,8	7,3	1,0	4,2

Нумерація зразків відповідає нумерації в таблиці 2.1.

В роботі [96] проведено дослідження вмісту ^{137}Cs у гранулометричних фракціях ґрунтів Народицького району, зокрема для дерново-слабокпідзолистих, дерново-слабокпідзолистих слабкоглеюватих піскових та торфово-глейових ґрунтів. В результаті проведених досліджень встановлено, що у ґрунтових перетинах розподіл міграційних форм залежить від типу локального ландшафту, глибини залягання та гранулометричного складу ґрунтів. Частка мобільних форм ^{137}Cs збільшується у напрямку від елювіального до супераквального ландшафту, від верхніх горизонтів ґрунтового розрізу до нижніх, від диспер-

РОЗДІЛ 2

сних до крупніших фракцій. Найбільшою здатністю до утворення міцнофіксованих форм ^{137}Cs характеризуються дрібнодисперсні фракції ґрунту ($< 1 \cdot 10^{-5}$ м). Але внаслідок того, що ці фракції складають відносно невелику частку ґрунту, з ними у верхніх шарах ґрунту пов'язано не більше 10-15 % радіонуклідів. Більша частина ^{137}Cs (50-85 %) пов'язана з фракціями від $1 \cdot 10^{-5}$ м до $5 \cdot 10^{-4}$ м.

Вертикальний міграційний процес ^{137}Cs відбувається за рахунок мобільних форм та комплексних сполук із гумусовими кислотами. Міцність зв'язку цих форм з різними гранулометричними фракціями є важливою характеристикою для прогнозування сорбційно-десорбційних процесів.

Як зазначалося вище, забруднення ґрунтів ближньої зони аварії носить явно виражений „паливний” характер. Розміри „гарячих” частинок у ближній зоні вимірювались десятками мікрометрів на фоні дрібніших частинок. Забруднення територій, віддалених на декілька сотень кілометрів від місця аварії, представлено переважно випаданнями конденсаційного типу, які характеризуються меншими середніми розмірами. На значному віддаленні (Скандинавія) випадання були представлені частинками діаметром менше $3 \cdot 10^{-6}$ м, причому переважали частинки субмікронного розміру.

2.3. Фізико-хімічні властивості радіонуклідів

Всі радіонукліди характеризуються тими самими хімічними властивостями, що і стабільні ізотопи цих елементів. Однак тотожність поведінки радіонуклідів і їхніх стабільних аналогів може спостерігатися у випадку рівноважного розподілу фізико-хімічних форм радіонуклідів та природних форм перебування їхніх стабільних аналогів у ґрунті, тобто при досягненні повноти ізотопного обміну у фазах і компонентах ґрунту.

РОЗДІЛ 2

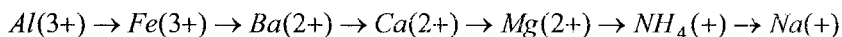
Переважна більшість досліджень спрямована на вивчення міграційних властивостей ^{137}Cs і ^{90}Sr , $^{239,240}\text{Pu}$ та ^{241}Am [27, 75]. Це пов'язано з тим, що в біологічних процесах ^{137}Cs , ^{90}Sr наслідують у своїй поведінці такі життєво необхідні хімічні аналоги як природні ізотопи калію (K) і кальцію (Ca) відповідно, тоді як $^{239,240}\text{Pu}$ та ^{241}Am накопичуються в людському організмі та є джерелом α -випромінювання.

Природний стронцій має чотири стабільні ізотопи з масовими числами 84, 86, 87, 88. Вміст стабільного стронцію в земній корі складає $3,4 \cdot 10^{-2}$ %. Серед радіоактивних ізотопів стронцію є два ізотопи: ^{90}Sr з періодом піврозпаду $T_{1/2} = 28,1$ року і енергією випромінювання $E = 0,544 \text{ MeV}$ та ^{89}Sr – $T_{1/2} = 50,5$ доби, $E = 1,463 \text{ MeV}$. Закріплення та розподіл ^{90}Sr в компонентах ґрунтів в основному зумовлене закономірностями поведінки стабільного стронцію, а також його хімічного аналога – стабільного Ca , вміст якого в ґрунті становить 2,96%. Стронцій у геохімічних процесах є аналогом Ca , оскільки розміри іонних радіусів стронцію і кальцію є співвимірними ($r_{\text{Sr}} = 1,2 \text{ \AA}$, $r_{\text{Ca}} = 1,04 \text{ \AA}$) і заряди іона в обох випадках однакові. В осадовому процесі для Ca найтипівішими мінералами є кальцит і арагоніт, доломіт і гіпс. Однак стронцій у цих мінералах майже відсутній через відмінність кристалічних ґраток ^{90}Sr і Ca . Ступінь окислення ^{90}Sr у будь-яких природних середовищах +2. Властивості ґрунтів за впливом на розподіл ^{90}Sr у ґрунті утворюють ряд (в сторону зменшення вагомості) [116]:

вологість → *вміст обмінних кальцію і магнію* → *ємність обміну* → *вміст органічної речовини* → *pH ґрунтового розчину*.

РОЗДІЛ 2

Сорбція ^{90}Sr твердою фазою ґрунту значно залежить від наявності катіонів у розчині. Конкуруючі катіони для сорбції ^{90}Sr твердою фазою ґрунту складають ряд:



Сорбційна рівновага стронцію у системі „ґрунт-вода” встановлюється на протязі кількох діб [52].

При збільшенні концентрації аніонів PO_4^{3-} , SO_4^{2-} та CO_3^{2-} у ґрунті зростає сорбція стронцію за рахунок співосадження з важкорозчинними його сполуками з Ca , Sr , Fe .

Значимо, що ^{90}Sr сорбується такими мінералами, як асканіт, бентоніт, вермикуліт [116]. Сорбційні властивості порід по відношенню до ^{90}Sr приблизно визначаються таким рядом порід (розміщені у порядку зменшення даних властивостей):

чорнозем → *бентоніт* → *каоолініт* → *глинистий суглинок* → *супіски* → *піски* → *тріцинуваті породи (граніт, базальт, вапняк, пісковик)*.

На поведінку ^{90}Sr значний вплив має наявність у ґрунті органічної речовини. Стронцій у всіх типах ґрунтів знаходиться переважно в органічній фракції ґрунту, причому у фульватній формі. Стронцій присутній у ґрунтах не у вигляді індивідуальних сполук з органічними речовинами, а у формі складних комплексів, які містять кальцій, залізо, алюміній.

Розподіл та рухливість ^{90}Sr залежить від кількісного і якісного складу гумусу у ґрунті. Наявність у гумусі фульвокомплексів приводить до високої міграційної здатності ^{90}Sr . Так, його розподіл між гуміновою кислотою і фульвокислотою для вилугованого чорнозему становить 3,62 % і 35 %, а для дерново-підзолистих ґрунтів -- 3,69 % і 28 % відповідно.

РОЗДІЛ 2

На високу міграційну здатність ^{90}Sr впливають і його хімічні властивості, а саме: ступінь його окислення в будь-якому природному середовищі: +2; малий вплив концентрації стронцію на форми його міграції; незначний вплив значення pH природних вод на сорбційність стронцію.

Природний цезій (Cs) представлений одним стабільним ізотопом, його вміст у земній корі складає $6,5 \cdot 10^{-4} \%$, і радіоізотопами ^{134}Cs (період піврозпаду $T_{1/2} = 2,06$ року, енергія випромінювання $E = 1,367 \text{ MeV}$) та ^{137}Cs ($T_{1/2} = 30,17$ року, $E = 1,76 \text{ MeV}$). При цьому ^{137}Cs є одним із основних дозоутворюючих радіонуклідів. У хімічній та геохімічній поведінці цезій подібніший до рубідію (Rb), який є хімічним аналогом калію. Через співвимірні іонні радіуси ($r_K = 1,33\text{A}$, $r_{\text{Rb}} = 1,49\text{A}$, $r_{\text{Cs}} = 1,65\text{A}$) та однаковий заряд рубідій і цезій проникають у кристалічну ґратку калієвих мінералів (слоди та польові шпати) в основному за рахунок ізовалентного ізоморфізму.

Для досягнення сорбційної рівноваги ^{137}Cs у ґрунтах і донних відкладах необхідно декілька місяців [52].

В умовах земної поверхні самостійних мінералів цезію нема. Ступінь окислення цезію в будь-яких компонентах природного середовища: +1. Важливою особливістю поведінки цезію поряд з іонообмінним зв'язуванням є необхідна сорбція (фіксація) твердою фазою ґрунту. Причина цього – взаємодія іонів цезію з кристалічною ґраткою деяких глинистих мінералів, яка полягає у проникненні радіонукліду у міжпаquetний простір. Міцно фіксовані іони цезію в значно меншій мірі переходять у ґрунтовий розчин.

Цезій знаходиться у ґрунтах у трьох формах [114]:

- в органічній складовій ґрунту цезій знаходиться у вигляді хелатних сполук з гуміновими і фульвокислотами. При цьому обмін на інші катіони можливий, але ускладнений, у зв'язку з високою стійкістю комплексів.

РОЗДІЛ 2

- в мінеральній складовій ґрунтів цезій знаходиться в обмінній формі на поверхнях кварциту, каолініту, а також у міжпакетних шарах і каналах слюдистих мінералів.

- в поверхневих шарах мінералів монтморилонітової групи і гідрослюд, які мають перманентний заряд. Катіони цезію закріплені на поверхні мінералів значно міцніше, а обмін ускладнений.

По відношенню до ^{137}Cs сорбційні властивості ґрунтів зменшуються таким чином:

глинисті породи (каолінит, монтморилоніт, бентоніт) → ґрунти (чорнозем, перегній, червонозем та ін.) → піски → тріщинуваті породи.

В донних відкладах ^{137}Cs зв'язаний з мінеральною складовою намулу, про що свідчать відсутність вилуговування цезію з намулу, а також відсутність летючості при відпалі намулу [93, 94, 117].

Відносний вміст ^{137}Cs у органічній і мінеральній фракціях ґрунтів залежить від типу ґрунту. Так, частка ^{137}Cs , зв'язана з органічною складовою ґрунту, збільшується від дерново-підзолистих ґрунтів до чорнозему [114]. Але з органічною компонентою ґрунту зв'язана незначна частина ^{137}Cs – не більше 3-10 % . Основна ж його частина (90 %) зв'язується з мінеральною частиною ґрунту – суміші кварцу, ортоклазу і глинистих мінералів. Більша частина ^{137}Cs (45-50 %) зв'язана з глинистими мінералами, вміст яких не перевищує 5-7 мас% у мінеральній складовій ґрунту [58].

З часом ^{137}Cs мігрує і фіксується в складі найстійкіших гумінових комплексів. Через 5 років основна частина ізотопу (60-90 %) переходить в гумати. В основному ^{137}Cs фіксований на глибині 0,05-0,20 м [114].

РОЗДІЛ 2

Міграційна активність цезію у ґрунтах залежить і від pH середовища. В кислих і лужних ґрунтах рухомість ізотопу зростає у 6-7 раз.

На даний момент крім основних дозоутворюючих радіонуклідів ^{137}Cs і ^{90}Sr серйозну проблему становить ^{241}Am [27, 66], період піврозпаду якого рівний 432,2 року. Радіонукліди америцію з масовими числами 241, 245 і 246 є дочірними продуктами радіонуклідів плутонію з такими ж масовими числами.

^{241}Am є тягучим ковким металом сріблясто-білого кольору. Він проявляє у водних розчинах ступінь окислення +2, +3 (найстійкіші сполуки), +5, +6, +7, а в твердому стані і у вигляді комплексних іонів у розчинах +4. Металічний америцій добре розчиняється у концентрованих мінеральних кислотах. В реакціях з киснем, воднем, азотом, сіркою, вуглецем і фтором утворює нерозчинні сполуки. При розпаді ядер ^{241}Am випромінюються α -частинки з енергією 5,45 MeV, а також γ -кванти з енергією 60 KeV та рентгенівські промені з енергією в інтервалі 10-20 KeV.

За рахунок β -розпаду ^{241}Pu з урахуванням періоду його піврозпаду, який становить 14,4 року, очікується збільшення вмісту ^{241}Am у довкіллі приблизно в 40 разів порівняно з його аварійним викидом і максимум його активності досягнеться у 2059 році. На цей час кількість ^{137}Cs і ^{90}Sr зменшиться у 4 рази і основним дозоутворюючим елементом буде ^{241}Am [66].

2.4. Підземні води

Ключову роль у міграції радіонуклідів у геологічному середовищі відіграють підземні води. Вони утворюють у надрах

РОЗДІЛ 2

глибинні та приповерхневі горизонти (поверхневі води), які зв'язані з шарами сильно і слабо проникних відкладів.

Як правило, водоносні горизонти знаходяться на значній глибині і добре захищені від поверхневих забруднень. Геологічні шари є природними пористими середовищами, води яких знаходяться у порах, утворюючи порові розчини різного складу. В загальному випадку можемо говорити, що багатоконпонентний поровий розчин – це специфічний вид водних дисперсних систем, які пронизують ґрунтовий покрив земної кори і утримуються ґрунтовими частинками під дією сил поверхневої взаємодії. Поровий розчин на протязі тривалого часу контактує з твердою фазою ґрунту і становить середовище первинної акумуляції найбільш рухливих форм хімічних елементів, зокрема радіонуклідів.

Ґрунтові порові розчини сприяють накопиченню мікроелементів у рослинах через кореневу систему, внаслідок чого вони складають важливу ланку у біологічній міграції радіонуклідів. Будучи відкритими системами, що генетично зв'язані з іншими видами природних вод, порові розчини ґрунтів відіграють важливу роль у процесах геохімічної міграції радіонуклідів [75].

Вертикальна та латеральна (через пласти) фільтрація підземних вод у поверхнево залягаючих водоносних горизонтах обумовлюється геоморфологічними умовами території. Так, в зоні забруднення, спричиненого аварією на ЧАЕС, усі основні долини річок є областями розвантаження усіх водоносних горизонтів, прив'язаних до зони інтенсивного водообміну. Головні вододільні простори є областями основного живлення системи горизонтів.

Експлуатація підземних вод зумовлює перетікання води із поверхневих вод та суміжних горизонтів у горизонт, що експлуатується та підсилює низхідну міграцію забруднень у порушену геосистему [116].

РОЗДІЛ 2

Постачальниками забруднювачів, зокрема радіонуклідів, є атмосферні опади, які переносяться гравітаційним способом або фільтруються через зону аерації та ґрунт у підземні води.

Активність міграції забруднювачів залежить також від сорбційних властивостей порід зон аерації і ґрунтів та насичення їх водою.

На сорбційні властивості порід істотно впливає концентрація катіонів Ca^{2+} , Mg^{2+} , Na^+ , K^+ у воді, а також нерадіоактивних ізотопів стронцію і цезію, які конкурують з найпоширенішими радіонуклідами ^{90}Sr і ^{137}Cs . Встановлено, що чим вища концентрація кальцію чи концентрація суми Ca^{2+} , Mg^{2+} , Na^+ , K^+ у воді, тим вища міграційна здатність радіонуклідів.

Оскільки на міграційні властивості радіонуклідів сильно впливає pH , наявність органічних сполук, які утворюють органіномінеральні комплекси, входження радіоактивних елементів у колоїди, то поширення торфовиків, боліт, органічних залишків у вигляді окремих включень, лінз та прошарків, глинистих відкладів, промитих піскових дон, що залягають на більш давніх піскових товщах, сприяє мозаїчній зміні умов міграції за хімічними (сорбційними) та фільтраційними показниками геологічного середовища.

РОЗДІЛ 3

**ФІЗИКО-ХІМІЧНІ ФОРМИ
РАДІОНУКЛІДІВ**

3.1. Класифікація форм радіонуклідів у ґрунті

Наявні у ґрунтах фізико-хімічні форми (стани) радіонуклідів залежать від типу забруднення території (аерозольно-конденсаційне, паливні частинки та інше), часу, що пройшов з моменту забруднення, типу ґрунтів, виду трансформації нуклідів у ґрунтах. Форма знаходження радіонуклідів у атмосферних випаданнях впливає на їх дальший перерозподіл між компонентами природного середовища, інтенсивність міграції у системах: ґрунт, „ґрунт-вода”, „вода-донні відкладення”, „ґрунт-рослина”.

Так, при аналізі співвідношення існуючих форм знаходження радіонуклідів у ґрунтах 30-кілометрової зони ЧАЕС, необхідно враховувати неоднорідність форм радіонуклідів, які спостерігалися в атмосферних випаданнях, і в значній мірі відрізнялися від форм глобальних випадань, а також залежність від положення ділянки на радіоактивному „сліді” та сорбційної і фіксуєної здатностей ґрунтів.

Як правило, вирізняють два стани радіонуклідів: у розчинній і нерозчинній формі. Але для інтерпретації експериментальних досліджень необхідно також розрізняти інші форми радіонуклідів, які фігурують при протіканні процесів вилугування, обмінних процесів та інших.

РОЗДІЛ 3

Існують різні підходи до класифікації форм радіонуклідів у ґрунтах. Ряд авторів, зокрема [82], визначають як різні форми радіонуклідів, ті що знаходяться у: „гарячих” частинках; водорозчинній формі; обмінносорбованій формі та необмінносорбованому (фіксованому) стані. В результаті виговування радіонуклідів з „гарячих” частинок утворюються такі рухомі форми радіонуклідів, як водорозчинна та обмінносорбована. При цьому необмінносорбована форма утворюється унаслідок процесів вилуговування радіонуклідів з „гарячих” частинок і подальшої їх фіксації твердою фазою ґрунту. Причиною фіксації є взаємодія іонів радіонуклідів з кристалічною ґраткою деяких глинистих фракцій ґрунту та входження їх в міжпаquetний чи міжкристалічний простір структурних елементів цих фракцій.

У працях [53, 54] запропоновано розрізнати радіонукліди, які знаходяться у складі паливних частинок (A_1); у поровому розчині у катіонній формі (A_2); на поверхні твердих фракцій ґрунту, які затримані за механізмом іонного обміну (A_2^*); у твердій фракції ґрунту в незворотно-сорбованій формі (A_3); у складі розчинених комплексів у поровому розчині (A_4). Тут для позначення типу радіонукліду використано таку саму літеру A , як і для позначення його радіоактивності.

Така класифікація базується на тому, що розчинна форма радіонуклідів може існувати як у вигляді катіонів, так і у вигляді нейтральних або негативно заряджених комплексних сполук з розчинними органічними речовинами або мінеральними компонентами ґрунтового розчину. Катіонна форма знаходиться у розчині в стані рівноваги з часткою радіонуклідів, адсорбованою за механізмом іонного обміну на внутрішній поверхні ґрунту (поверхні твердих складових ґрунту або органіки).

У твердій складовій ґрунту радіонукліди знаходяться в обмінній і необмінній формах. До обмінної форми відносять поверхневі радіонукліди, сорбовані за механізмом іонного обміну.

РОЗДІЛ 3

До необмінної форми – радіонукліди, які знаходяться у складі паливних частинок, а також радіонукліди, захоплені за механізмом незворотної сорбції (знаходяться в кристалічній ґратці або у складі нерозчинних сполук).

Прийmemo, що усі форми радіонуклідів, які знаходяться у ґрунті, складають його повне забруднення A_0 , тобто

$$A_0 = A_1 + A_2' + A_2^* + A_3 + A_4 \quad (3.1)$$

У ґрунті проходять різні процеси трансформації фізико-хімічних форм радіонуклідів. Паливні частинки руйнуються, збільшується їхня поверхня і в результаті додаткова кількість радіонуклідів переходить у розчин. Катіонна форма радіонуклідів, взаємодіючи з твердими фракціями ґрунту, переходить у водорозчинні комплексні сполуки або „фіксований” стан. Суккупність процесів трансформації схематично показана на рис. 3.1.

Виділені у схемі основні форми радіонуклідів суттєво відрізняються швидкостями міграції. Так A_2' і A_4 (катіонна і водорозчинна форми) мігрують разом з ґрунтовим розчином. Потік радіонуклідів A_2' , як правило, менший, ніж A_4 за рахунок сповільнення його процесами адсорбції і десорбції. Радіонукліди у формі A_2^* можуть мігрувати по поверхні твердих фракцій ґрунту (зі значно меншим коефіцієнтом дифузії). Форми радіонуклідів A_1 , A_3 переміщаються тільки разом з частинками, в склад яких вони входять. Основні механізми їх руху є „просипання” по порах і тріщинах у ґрунті, а також унаслідок життєдіяльності організмів і рослин. Інтенсивність цього руху залежить від гранулометричного складу ґрунту.

Зауважимо, що для донних відкладень при вивченні трансформації фізико-хімічних форм радіонуклідів пропонується враховувати також ремобілізацію (зворотність) процесів комп-

РОЗДІЛ 3

лексоутворення і фіксації. Ремобілізацією цих процесів у початкові моменти трансформації у системі „грунт-вода” можна було знехтувати, але з часом цей процес проявляється все істотніше [54].

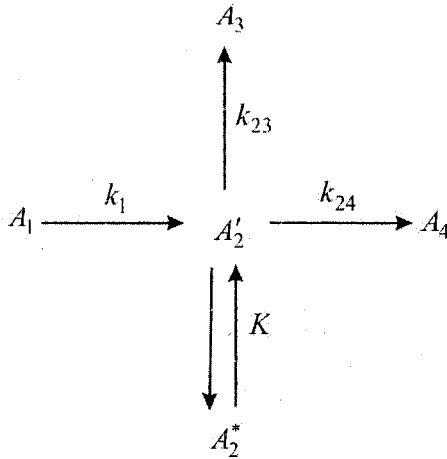


Рис.3.1. Схема трансформації хімічних форм радіонуклідів. k_1 – кінетичний коефіцієнт вилугування, K – кінетичний коефіцієнт іонообмінної рівноваги, k_{23} – кінетичний коефіцієнт процесу незворотного зв'язування („фіксації”), k_{24} – кінетичний коефіцієнт переходу у розчинні комплекси.

В експериментальних дослідженнях встановлено, наприклад, що сорбований глинистими мінералами ^{137}Cs не повністю десорбується розчинами електролітів за декілька десятків діб, а ізотопна рівновага між внесеним у донні відкладення ^{134}Cs і глобальним ^{137}Cs не встановлюється навіть через 180 діб [52]. Однак дані про довготривалі трансформації форм знаходження

РОЗДІЛ 3

радіонуклідів у ґрунті свідчать про наявність ремобілізації. Після внесення розчинів ^{137}Cs у ґрунт частка його обмінної форми зменшується з часом до певного рівня, який не залежить від кількості внесеного радіонукліду і не міняється суттєво на протязі кількох років. Зворотність фіксації ^{90}Sr підтверджується тим, що при повторній обробці ґрунту розчинами електролітів з нього виділяється майже така сама частка радіонукліду, як і при первинній. Це свідчить про необхідність врахування при теоретичних дослідженнях процесу зворотного до фіксації – процесу ремобілізації.

У ґрунтах встановлюється певне співвідношення водорозчинних і обмінних форм радіонуклідів, яке визначається рівнянням іонообмінної рівноваги. Час встановлення іонообмінної рівноваги вимірюється годинами, час обміну між розчинними і фіксованими формами – роками. Тому водорозчинні і обмінні форми можна об'єднати в мобільну форму (M) і тоді схема трансформації радіонуклідів спрощується [11] (рис.3.2):

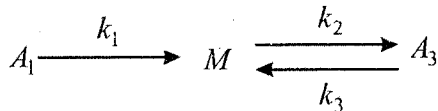


Рис.3.2. Схема трансформації хімічних форм радіонуклідів. Тут k_1 , k_2 , k_3 – кінетичні коефіцієнти мобілізації, іммобілізації, ремобілізації.

У наведеній схемі 3.2 кожен радіонуклід зі свого стану (форми) у складі паливних частинок повинен перейти у поровий розчин, де він знаходиться у мобільному стані, і лише потім в іммобільний стан у твердій фракції ґрунту (незворотно-сорбована форма). Така схема трансформації станів радіонуклідів ілюструє послідовність їх перетворень, в яких мобільні форми є

проміжними. В схемі 3.2 враховує також процес ремобілізації радіонуклідів з незворотно-сорбованої форми назад у мобільну.

3.2. Форми знаходження радіонуклідів у різних типах ґрунтів

Виділення фізико-хімічних форм радіонуклідів з проб ґрунту реалізується за відомими методиками Ф.І.Павлоцької [54, 76, 77]. При цьому вважається, що у *водну витяжку* переходять водорозчинні сполуки в некатіонних формах і катіони, десорбовані за іонним механізмом. В *ацетатну витяжку* переходять радіонукліди, які сорбовані ґрунтом за механізмом іонного обміну, тобто такі радіоактивні частинки можна віднести до обмінної форми. *Соляна витяжка* містить радіонукліди з розчинених паливних частинок і частково незворотно сорбовані радіонукліди (віднесені до необмінної форми). *Сумішню азотної і плавикової кислот* виділяються „неекстраговані” залишки радіонуклідів необмінних форм у вигляді включень у мінерали – фіксована форма.

Дослідженню форм знаходження радіонуклідів у ґрунті присвячено низку робіт [5, 8, 17, 18, 37, 43, 50, 52-54, 74, 75, 82, 93, 117]. Процеси трансформації форм радіонуклідів з часом стабілізуються, і у ґрунтах встановлюється певна рівновага між фізико-хімічними формами радіонуклідів.

Дослідження форм знаходження радіонуклідів у ґрунтах 30-кілометрової зони ЧАЕС почали проводити одразу ж після аварії на станції, оскільки ці дані мають вирішальне значення при прогнозуванні міграції радіонуклідів за профілями ґрунтів, їх наявності у ґрунтових водах і рослинах. Раніше проводились дослідження форм радіонуклідів у ґрунтах у зв'язку з вивченням поведінки глобальних випадань продуктів ядерних вибухів. Було показано, що ^{90}Sr знаходиться в основному в обмінній фор-

РОЗДІЛ 3

мі, а ^{137}Cs – в необмінній формі. Різниця в поведінці цих радіонуклідів пояснюється різними механізмами сорбції їх у ґрунтах. Так, ^{137}Cs переважно переходить у кристалічну гратку мінеральної складової ґрунту, а ^{90}Sr сорбується в основному на внутрішній поверхні ґрунтових складових за механізмом іонного обміну [50].

Авторами роботи [50] проведено дослідження вмісту різних форм радіонуклідів ^{90}Sr і ^{137}Cs у ґрунтах 30-кілометрової зони ЧАЕС в залежності від типу ґрунту і рослинності (табл. 3.1).

Таблиця 3.1.

Форми знаходження ^{90}Sr і ^{137}Cs у ґрунтах
30-кілометрової зони

№ майданчика	Дата відбору проби	Водорозчинна форма, %	Обмінна форма, %	Необмінна форма, %
1	2	3	4	5
^{90}Sr				
1	16.07.87	0,06±0,02	11,1±3,2	88,8±3,2
2	09.07.87	0,5±0,2	31±6	68,5±6,2
3	09.07.87	0,7±0,03	34,0±0,2	65,3±2,5
4	15.07.87	0,2±0,06	16,1±2,6	83,7±2,7
5	9.07.87	0,4±0,2	23,4±5,1	76,2±5,4
6	14.07.87	0,1±0,05	16,8±4,2	83,1±4,5
7	15.07.87	0,04±0,01	5,16±2,1	94,8±2,6
8	13.07.87	0,4±0,14	23,9±3,9	71,8±1,6
9	12.07.87	0,05±0,02	7,5±2,5	92,4±0,5
10	15.07.87	0,06±0,01	8,0±0,25	91,9±0,3
11	11.07.87	0,4±0,01	15,3±1,8	84,3±1,8

РОЗДІЛ 3

Продовження таблиці 3.1

1	2	3	4	5
12	24.07.87	0,5±0,1	38,8±1,7	60,7±1,7
13	14.07.87	0,8±0,03	4,7±1,0	94,5±1
14	11.11.86	0,5±0,1	24,0±4,0	75,5±4,3
15	13.07.86	1,1±0,4	11,0±6,0	87,9±6,6
16	10.07.87	0,2±0,066	13,6±2,6	86,2±2,6
17	16.07.87	0,05±0,01	5,5±2,8	94,5±2,8
18	17.07.87	0,15±0,01	23,2±2,7	72,7±2,9
19	08.07.87	0,32±0,11	31,8±5,4	67,9±0,7
20	12.07.87	0,3±0,1	30,5±0,6	69,2±0,7
21	08.07.87	0,15±0,001	23,2±2,7	72,65±2,9
22		0,8±,01	7,2±0,2	92,0±2,0
23	16.07.87	3,2±0,2	31,1±1,6	63,7±1,8
24	08.07.87	4,50±0,01	23,5±3,2	72,0±3,3
¹³⁷ Cs				
4	15.07.87	1,0±1	13,8±0,9	82,3±0,2
7	15.07.87	0,22±0,08	6,32±0,04	93,5±0,1
8	13.07.87	0,9±0,15	10,2±0,7	88,9±0,8
10	15.07.87	0,12±0,02	8,9±0,6	90,9±0,8
11	11.07.87	0,58±0,2	6,9±0,1	92,5±0,2
14	11.11.86	0,07±0,01	1,8±0,4	98,1±0,4
15	13.07.86	0,19±0,01	4,7±0,6	95,1±0,6

В таблиці 3.1 подано тип ґрунту і рослинності на майданчику номер:

1 – підзол глибокий супісковий (розріджений сосново-моховий сосняк); 2, 3, 4 – середньопідзолистий дрібний пісковий (сосняк лишайниковий); 5 – слабкопідзолистий супісковий (сосняк лишайниковий); 6 – дерново-слабокпідзолистий пісковий (березняк злако-різнотравний з домішкою сосни); 7 – окультурений дерново-неглибокопідзолистий супісковий (сіяна лука); 8 – окультурений дерново-слабокпідзолистий супісковий (незібране пшеничне поле); 9 – окультурений слабкопідзолистий сильно-змитий супісковий (покинутий сад, покритий злако-різнотрав'ям), 10 – окультурений дерново-слабокпідзолистий сильно-змитий супісковий (покинутий огорог, покритий злако-різнотрав'ям); 11 – окультурений дерново-слабокпідзолистий супісковий (ви-

РОЗДІЛ 3

бита лука); 12 – окультурений дерново-слабокідзолистий супісковий (незбиране пшенично-різнотравне поле); 13 – слабкодернований пісковий (розріжені мохи); 14, 15 – алювіальний дерновий кислий легкосуглинистий (різнотравна лука), 16 – алювіальний дерновий кислий шаруватий супісковий (вибита злако-різнотравна лука); 17 – алювіальний дерновий кислий шаруватий супісковий (злако-різнотравна лука); 18, 19 – алювіальний дерновий кислий супісковий (злако-різнотравна лука); 20 – алювіальний польовий кислий супісковий (різнотравна лука); 21 – алювіальний польовий кислий легкосуглинистий (злако-різнотравна лука); 22 – дерново-грунтово-глеєвий середньо-суглинистий (різнотравна лука); 23 – болотний алювіальний перегнійно-торфово-глеєвий середньо-суглинистий (осоко-різнотравна лука); 24 – болотний алювіальний перегнійно-торфово-глеєвий середньо-суглинистий (різнотравна лука з домішкою болотного різнотрав'я).

Відносно високий вміст водорозчинних форм ^{90}Sr характерний для піскових і болотяних ґрунтів. Для піскових ґрунтів це зв'язано з їх слабкою сорбуючою здатністю, а для болотяних ґрунтів це зумовлено, напевно, утворенням комплексних сполук ^{90}Sr з фульво- і гуміновими кислотами, які містяться в достатньо великій кількості в болотяних ґрунтах. Для ^{137}Cs характерна значна частка необмінних форм, яка в деяких випадках сягає до 99 %. Висока частка необмінних форм радіонуклідів у ґрунтах 30-кілометрової зони ЧАЕС може бути зумовлена грубо дисперсними випаданнями ядерного палива [50].

Дослідження вмісту різних форм радіонуклідів у суглинистих ґрунтах поблизу оз. Карачай [74] та у ґрунтах Східно-Уральського радіоактивного сліду [16] проводились після тривалого часу з моменту зараження території і коли у ґрунтах встановилась обмінна рівновага. Результати цих досліджень наведено у таблицях 3.2, 3.3.

У праці [82] автори вивчали розподіл фізико-хімічних форм ^{90}Sr , ^{137}Cs в алювіальних дернових ґрунтах лівобережної частини заплави р. Прип'ять. Дослідження проводились на двох ділянках: на віддалі 8 км від ЧАЕС, де рівень забруднення

РОЗДІЛ 3

був 4800 кБк/м^2 , та 4 км від ЧАЕС з рівнем забруднення 14800 кБк/м^2 . В таблиці 3.4 наведено дані досліджень про наявність форм радіонуклідів у ґрунтах обох ділянок.

Таблиця 3.2.

Форми знаходження радіонуклідів у ґрунтах
Східно-Уральського радіоактивного сліду

Радіонуклід	Обмінна форма, %	Водорозчинна форма, %	Розчинна у кислоті форма, %	Фіксована форма, %
1	2	3	4	5
<i>Дерново-підзолисті ґрунти</i>				
^{137}Cs	0,4	0,2	0,4	99,0
^{90}Sr	45,8	2,5	44,2	7,5
<i>Дерново-підзолисті + сірі лісові ґрунти</i>				
^{137}Cs	2,87	0,03	0,5	96,6
^{90}Sr	23,4	2,0	73,6	1,0
<i>Сірі + темно-сірі лісові ґрунти</i>				
^{137}Cs	1,18	0,02	2,7	95,1
^{90}Sr	58,0	2,4	30,0	9,6
<i>Чорноземні + чорноземно-лучні ґрунти</i>				
^{137}Cs	1,1	0,1	2,1	96,6
^{90}Sr	55,9	1,8	30,9	11,4
<i>Алювіально-озерні ґрунти</i>				
^{137}Cs	1,47	0,03	1,7	96,8
^{90}Sr	38,8	1,2	26,0	34,0
<i>Торфово-болотні ґрунти</i>				
^{137}Cs	1,4	0,2	2,9	95,5
^{90}Sr	43,3	2,9	32,0	21,8

РОЗДІЛ 3

Таблиця 3.3.

Геохімічні форми радіонуклідів у суглинистих ґрунтах

Радіонуклід	Обмінна форма, %	Водорозчинна форма, %	Розчинна у кислоті форма, %	Фіксована форма, %
^{90}Sr	66±5	24±6	5±2	5±2
^{137}Cs	7±3	5±3	30±8	58±7
^{237}Np	56±8	3±7	6±2	7±3
$^{239,249}\text{Pu}$	5±3	16±5	53±13	26±7
^{240}Am	6±2	42±9	44±5	8±2

Таблиця 3.4.

Вміст хімічних форм ^{90}Sr , ^{137}Cs
в алювіальних дернових ґрунтах у 1991 році

Радіонуклід	Водорозчинна форма, %		Обмінно-сорбована форма, %		Кислотно-розчинна форма, %		Фіксована форма, %	
	1	2	1	2	1	2	1	2
Ділянка 1 (8 км від ЧАЕС)								
^{90}Sr	0,58	0,61	32,3	32,7	62,5	64,6	4,59	2,1
^{137}Cs	0,15	0,14	0,99	0,65	72,0	79,3	26,8	20,0
Ділянка 2 (4 км від ЧАЕС)								
^{90}Sr	1,7	0,49	60,0	56,2	36,5	41,0	1,83	2,32
^{137}Cs	0,32	0,30	2,92	2,97	78,9	82,4	17,8	14,3

Дослідження [11] показали (табл.3.5), що в ґрунтах зони відчуження з часом збільшується частка мобільних форм ^{90}Sr , внаслідок їхнього виносу з диспергованого палива і руйнування

РОЗДІЛ 3

„гарячих” частинок, а також зменшенням порівняно з 1987-1988 роками вмісту мобільного ^{137}Cs в результаті закріплення його у фіксованій формі.

Таблиця 3.5

Вміст водорозчинних і обмінних форм ^{90}Sr та ^{137}Cs в ґрунтах

Рік відбору проб	^{137}Cs		^{90}Sr	
	Водорозчинна форма, %	Обмінна форма, %	Водорозчинна форма, %	Обмінна форма, %
<i>Дерново-підзолисті ґрунти</i>				
1986	0,13	0,57	0,74	4,1
1987	0,43	9,57	5,0	20,2
1991	0,14	4,7	2,1	35,0
1992	0,62	6,7	7,0	59,0
<i>Торфові ґрунти</i>				
1987	0,32	8,0	4,2	23,2
1991	0,036	0,47	0,69	7,5
1992	0,31	0,68	2,7	21,4

Аналізуючи табличні дані, можна зробити наступні висновки.

Основна кількість ^{137}Cs знаходиться в необмінно-сорбованому стані (результати кислотної витяжки – 72-82 %). Значна частка ^{137}Cs (до 27 %) перебуває у фіксованій формі, у складі кристалічної ґратки глинистих мінералів і „гарячих” частинок.

Зазначимо, що на Східно-Уральському сліді частка фіксованої форми ^{137}Cs у всіх типах ґрунтів станом на 1995 рік (пройшла стабілізація трансформованих форм) перевищує 90 %.

РОЗДІЛ 3

Незначна кількість ^{137}Cs знаходиться в розчинній і обмінній формах (0,3 % і 3 % відповідно).

Більшість ^{90}Sr розподілена між обмінною і необмінною формами (32 % і 65 % відповідно). При цьому наявність ^{90}Sr у фіксованій формі не перевищує 2-5 %, а у водорозчинній формі 0,5-1,7 %.

У роботі [58] проведено дослідження з визначення форм знаходження ^{137}Cs у дерново-підзолистих ґрунтах, заболоченому торфї і піскових ґрунтах, які характерні для Санкт-Петербурзької, Новгородської і Брянської областей. Забруднення цих зон представлено аерозольними випаданнями. Експериментальні дані наведено у таблиці 3.6.

Таблиця 3.6
Форми знаходження ^{137}Cs у пробах ґрунту

Тип ґрунту	Глибина пробовідбору (10^{-2} м)	Форма ^{137}Cs		
		водорозчинна, %	обмінна і легкорозчинна, %	кислоторозчинна, %
Дерново-підзолист.	0-5	0,2	0,5	0,4
- " -	5-10	1,0	1,9	1,4
Торфовий	0-6	0,5	1,1	0,5
- " -	6-11	3,4	6,3	5,7
Пісковий	0-5	0,5	4,1	3,1
- " -	5-10	6,8	6,6	8,9

Встановлено, що у всіх типах ґрунтів, вивчених на осінь 1992 року, водорозчинна форма ^{137}Cs складає найменшу частку. Для поверхневих проб вона коливається у межах 0,2-0,5 %. Зі збільшенням глибини частка водорозчинної форми зростає і сягає для піскових ґрунтів 6,8 %. Вміст обмінної і кислото-

РОЗДІЛ 3

розчинної (необмінної) форм дещо більший і також з глибиною зростає. Крім того в залежності від типу ґрунту спостерігається збільшення рухомих форм цезію в такому порядку:

дерново-підзолисті – торфові – піскові.

Основна частина ^{137}Cs знаходиться у ґрунтах у міцнозв'язаній формі. По відношенню до всього його вмісту частка фіксованої форми ^{137}Cs у дерново-підзолистому ґрунті складає 98 %, у торфовому – 97 % і у пісковому – 92 %.

За методикою Ф.І.Павлоцької проводились дослідження з визначення радіонуклідів у різних фізико-хімічних формах для зразків різних типів ґрунтів – мінеральних (дернових і дерново-підзолистих) та органічних (торфово-болотних). На середину 90-х років фізико-хімічний стан радіонуклідів, що потрапили у навколишнє середовище під час аварії на ЧАЕС в основному стабілізувався і визначається головним чином типом ґрунту [75].

Більший вміст мобільних форм ^{90}Sr у ґрунтах (у порівнянні з іншими радіонуклідами) зв'язаний із домінуванням іонообмінного механізму сорбції радіоізоотопу компонентами ґрунтового комплексу, а також вкладом водорозчинних комплексних сполук радіонукліду з низькомолекулярними органічними і фульвокислотними складовими ґрунтового гумусу.

Властивість ^{137}Cs до незворотної сорбції глинистими мінералами (монтморилоніт, вермикуліт, гідрослюди тощо) спричинює набагато нижчий вміст мобільної форми ^{137}Cs у ґрунтах у порівнянні зі ^{90}Sr .

За період 1987-1992 років для зони з перевагою паливних випадань зауважено зниження вмісту ^{137}Cs в обмінній формі на гідроморфних ґрунтах в 4,3 рази, на автоморфних – в 1,5 рази. Для зони з перевагою аерозольних випадань зниження вмісту

обмінної форми цезію складає для гідроморфних ґрунтів у 15 разів, а для автоморфних – у 1,6 рази [102].

Часова зміна вмісту ^{137}Cs обмінної і рухомої форм у ґрунтах у випадку аерозольного забруднення, як правило добре апроксимується експоненціальною залежністю, а для зон з перевагою паливних випадань динаміка розподілу цих форм носить більш складний характер.

В роботі [12] з допомогою іонообмінного методу проведена оцінка мобільних і міцнозв'язаних радіоізотопів ^{137}Cs та ^{90}Sr в різних типах ґрунтів. Встановлено, що у дерново-підзолистих супіскових ґрунтах порівняно з торфово-глеєвими частка ^{137}Cs у складі найбільш міграційноздатних водорозчинних сполук зростає. Міграційна здатність ^{90}Sr значно вища, ніж ^{137}Cs , особливо у дерново-підзолистих ґрунтах.

Зі збільшенням вмісту органічних речовин у ґрунтах спостерігається зростання частки міцнозв'язаного з ґрунтовим комплексом та зменшення частки обміннозв'язаного ^{90}Sr , а також зменшення частки водорозчинних органо-мінеральних сполук ^{137}Cs і ^{90}Sr .

Всі дослідники приходять до висновку, що ^{137}Cs у органічних комплексах настільки міцнозв'язаний, що нездатний навіть до ізотопного обміну (виділити ^{137}Cs без розкладення органічної речовини неможливо). Виявлено, що найстійкіша, практично незворотна, фіксація ізотопу спостерігається у гумінових комплексах.

Подальші дослідження трансформації форм радіонуклідів ^{137}Cs та ^{90}Sr [17, 18] показують, що фіксація цих радіонуклідів ймовірно проходить двома стадіями. Друга стадія фіксації веде до повільного зменшення рухомих форм цих радіонуклідів з характерним часом для ^{137}Cs не менше ніж кілька десятків років, для ^{90}Sr – біля 100 літ.

РОЗДІЛ 3

Незначний вміст у ґрунтах обмінних форм трансуранових елементів зумовлюється їхніми властивостями утворювати малорозчинні комплексні сполуки з високомолекулярними компонентами ґрунтового гумусу і складні елементоорганічні сполуки, у склад яких входять кальцій, залізо, алюміній та інші метали. Тільки незначна кількість плутонію та америцію утворює водорозчинні сполуки з фульвокислотними компонентами ґрунтового гумусу і сполуки хелатного типу з низькомолекулярними органічними складовими ґрунту.

Суттєвий вплив на стан і поведінку трансуранових елементів вносить гідроліз. Вищий вміст рухомих форм ^{241}Am у порівнянні з $^{239,240}\text{Pu}$ може бути пов'язаний з більшою розчинністю гідроксидів америцію у порівнянні з гідроксидами плутонію, де елементи, як правило, мають ступінь окислення +4 і +3 відповідно [75].

3.3. Форми знаходження радіонуклідів у донних відкладах і воді

Дослідження розподілів форм радіонуклідів у донних відкладах проводились у промислових водоймах ВО "Маяк" [78]. Результати досліджень представлено у таблицях 3.7-3.9. Радіонукліди стронцію, цезію і трансуранових елементів знаходяться у різних формах, і кількісні співвідношення між ними залежать як від типу нукліду, так і місця відбору проби.

Так само як і в ґрунтах, відмінності у формах знаходження радіонуклідів у донних відкладах можуть бути зумовлені різними формами їхнього знаходження у воді, хімічним і мінералогічним складом донних відкладень та різними механізмами поглинання їх твердою фазою.

У результаті радіоактивного викиду на 4-ому блоці ЧАЕС у 1986 році водойми ближньої зони були забруднені радіонук-

РОЗДІЛ 3

лідами, які випали у вигляді пилюватих частинок різної дисперсності і з широкими варіаціями хімічного складу. Внаслідок природних процесів самоочищення води радіоактивні аерозолі сконцентрувалися у донних відкладах. Дослідженню форм радіонуклідів у донних відкладах присвячені роботи [93, 94]. В експериментах досліджувані проби з різних ділянок водойми оброблялись послідовно різними розчинами згідно з відомими методиками, для виділення всіх форм радіонуклідів. Результати досліджень наведено у таблиці 3.10.

Таблиця 3.7

Форми знаходження ^{90}Sr у донних відкладах
водойм ВО „Маяк”

№ зразка	Глибина відбору, 10^{-2} м	Обмінна і легко-розчинна форма, %	Рухлива форма, %	Кислото-розчинна форма, %	Важко-розчинна форма, %
<i>Водойма В-10</i>					
1	0-3	33	29	29	9
	20-23	28	40	26	6
2	0-3	36	34	23	7
	20-23	43	39	14	5
3	0-3	44	28	20	8
	20-23	55	35	7	3
4	0-3	60	33	6	2
	20-23	57	35	6	3
5	0-3	61	31	4	4
6	0-3	68	20	7	5
<i>Водойма В-11</i>					
7	0-3	62	28	7	3
8	0-3	57	33	7	4
9	0-3	65	26	6	3

РОЗДІЛ 3

Таблиця 3.8

Форми знаходження ^{137}Cs у донних відкладах
водойм ВО „Маяк”

№ зразка	Глибина відбору, 10^{-2} м	Обмінна і легкорозчинна форма, %	Рухлива форма, %	Кислоторозчинна форма, %	Важкорозчинна форма, %
<i>Водойма В-10</i>					
1	0-3	8	6	24	62
	20-23	10	10	42	38
2	0-3	4	4	14	77
	20-23	8	8	18	66
3	0-3	6	5	23	67
	20-23	11	9	18	63
4	0-3	6	3	21	70
	20-23	7	2	10	81
5	0-3	5	4	9	82
6	0-3	5	2	42	50
<i>Водойма В-11</i>					
7	0-3	11	7	21	81
8	0-3	37	12	26	25
9	0-3	5	3	24	69

У кожному з виділених розчинів наявні всі довгоживучі радіоізотопи. Особливості аварійного викиду привели до контрастного забруднення донних відкладів водойм. Оскільки виділений з прилеглих до проммайданчика намулів уран має інший ізотопний склад, ніж природний, то ці намули містять, головним чином, дисперговане реакторне паливо.

З віддаленням від аварійного реактора донні відклади менш забруднені, але основним елементом забруднення є радіоцезій у іонообмінній формі, тобто потенційно доступній. Про це свідчить високий вихід радіонукліду при обробці всіх проб

РОЗДІЛ 3

ацетатом амонію. Вміст водорозчинних форм ^{137}Cs невеликий, не перевищує 3-5 %.

Таблиця 3.9

Форми знаходження трансуранових елементів у донних відкладах водоймищ „ВО Маяк”

Зразок (глибина, 10^{-2} м)	Обмінна і лег- корозчинна форма, %	Рухлива форма, %	Кислото- розчинна форма, %	Важко- розчинна форма, %
^{239}Pu				
1 (0-3)	1	16	53	30
1 (20-23)	2	14	79	5
3 (20-23)	32	21	21	26
^{241}Am				
1 (0-3)	5	68	20	7
1 (20-23)	4	39	36	21
3 (20-23)	31	27	19	22
^{244}Cm				
1 (0-3)	7	65	20	8
1 (20-23)	н/в	н/в	н/в	н/в
3 (20-23)	19	27	27	27
Fe				
1 (0-3)	3	13	5	79
1 (20-23)	1	12	83	4
3 (20-23)	н/в	2	2	96

н/в – радіонуклідів не виявлено

На відміну від замулених пісків водойми-охолоджувача донні відклади заплави характеризуються високим вмістом органічної речовини та біогенного карбонату. Основна кількість мобілізованого при вилуговуванні ^{144}Ce в органічній фазі розподілена порівну між фракціями фульво- і гуміновими кислотами.

РОЗДІЛ 3

Таблиця 3.10.

Форми знаходження радіонуклідів у донних відкладах ближньої зони

Ізотоп	Форми знаходження, %				
	водо-розчинна	іонооб-мінна	фульво-комплекс-и	сполуки з гумно-кислотами	міне-ральний залишок
<i>Ставок, замулений пісок; вміст карбонату 0,02 %</i>					
⁹⁰ Sr	1,7	8,8	0,8	3	85,7
¹³⁷ Cs	4,6	9,6	0,65	0,5	84,6
¹⁰⁶ Ru	16,7	6,3	5,7	6,8	64,5
¹⁴⁴ Ce	11,9	3,6	1,5	1,8	81,2
<i>Ставок, мул; вміст карбонату 17,9 %</i>					
⁹⁰ Sr	0,6	не визн.	11,1	3,9	84,4
¹³⁷ Cs	2,9	22,3	0,4	1,7	76,8
¹⁰⁶ Ru	4,2	19,6	1,0	1,5	75,8
¹⁴⁴ Ce	8,8	28,7	-	0,26	70,5
<i>Донні відклади заплави</i>					
⁹⁰ Sr	2,0-6,9	1,4-25,4	0,1-5,8	0,64-0,6	61,7-96,2
¹³⁷ Cs	0,15-0,8	0,5-2,5	0,1-0,9	0,06-1,4	95-99
¹⁰⁶ Ru	0,5-1,9	0,35-1,3	0,8-3,2	3,4-5,2	89-95
¹⁴⁴ Ce	1	0,4	1,3-5,9	1,3-8,4	85-97
<i>Заплава</i>					
¹³⁷ Cs	13,5	30,2	21,8	-	34,5
¹⁰⁶ Ru	50	17,8	36,2	-	-

У водорозчинній і іонообмінній формах відмічено наявність ¹³⁷Cs (1-3 %) і ⁹⁰Sr (1,5-4,5 %), причому в деяких пробах вміст радіостронцію сягає до 30 %. Одночасно звертає на себе увагу факт, що у донних відкладах заплави вміст радіонуклідів у

РОЗДІЛ 3

мінеральному залишку значно вищий, ніж у мулі і піску, деякі проби містять 99 % ^{137}Cs .

В пробах пісків, відібраних поблизу устя Красненської стариці (заплава), кількісний вміст радіонуклідів набагато менший, ніж в інших пробах. В умовах експерименту вони практично повністю десорбуються. Можливо така форма забруднення зумовлена сорбційними властивостями природних мінералів, які складають піски, і різними модифікаціями діоксиду кремнію.

На основі досліджень [93] можна зробити висновок, що у донних відкладах ^{137}Cs знаходиться у двох формах: мінеральній та органічній. Він зв'язаний з гуміновими і ароматичними кислотами на відміну від міграційноздатного ^{90}Sr , який представлений в основному в іонообмінній формі (у вигляді катіонів).

Дослідження форм знаходження радіоактивних забруднень у воді проводились у водах промислових водойм ВО „Маяк” [78]. Дані, які наведено у таблиці 3.11, показують, що незалежно від місця відбору проб води ^{90}Sr , кальцій і магній перебувають у катіонній формі. На відміну від ^{90}Sr і свого аналогу калію, ^{137}Cs знаходиться у воді як у катіонній формі, так і в аніонній та в нейтральній формах, співвідношення між якими різне у різних місцях відбору. Для трансуранових елементів характерна велика частка аніонної форми (аналогічно залізу). Виявлений характер розподілу трансуранових елементів і ^{137}Cs у водоймах ВО „Маяк” близький до даних щодо радіонуклідів у водах траншей заводу в Максі Флетс (табл.3.12).

Наявність радіонуклідів в аніонній формі свідчить про присутність їх у складі від'ємно заряджених комплексних сполук, що, наприклад, у випадку радіоцезія може пояснюватися результатом заміщення іонів амонію та інших хімічних елементів.

РОЗДІЛ 3

Таблиця 3.11

Форми знаходження радіонуклідів і хімічних елементів у воді водойм ВО „Маяк”, %

Форма	⁹⁰ Sr	Ca, Mg	¹³⁷ Cs	K	Na	^{239,240} Pu	²⁴¹ Am	Fe
<i>Водойма В-4</i>								
1	91	100	92	100	94	47	51	2
2	1	н/в	4	н/в	2	41	45	87
3	н/в	н/в	4	н/в	4	12	4	11
<i>Водойма В-10</i>								
1	99-100	100	62-96	99-100	92-96	43-69	40-69	1-10
2	< 1	н/в	3-24	< 1	1-5	30-56	31-60	80-92
3	н/в	н/в	1-14	н/в	1-3	1-12	н/в	7-10
<i>Водойма В-11</i>								
1	99-100	100	99-100	100	100	-	-	-
2	< 1	н/в	< 1	н/в	н/в	-	-	-
3	н/в	н/в	н/в	н/в	н/в	-	-	-

Форми: 1 – катіонна; 2 – аніонна; 3 – нейтральна.

н/в – радіонуклідів не виявлено

Таблиця 3.12

Форми знаходження радіонуклідів у водах траншей заводу в Максі Флетс (%)

Форма	¹³⁷ Cs	^{239,240} Pu	²⁴¹ Am
Катіонна	50	43	59
Аніонна	46	43	37
Суспензія	4	14	4

В рідкій фазі випадань, зокрема у водах ріки Дон і водосховищ на ріці Дон, радіонукліди стронцію і цезію

РОЗДІЛ 3

виявлено у різних формах, причому частка ^{137}Cs у некатіонних формах вища, ніж ^{90}Sr (табл. 3.13).

Таблиця 3.13
Форми знаходження радіонуклідів у природних водах (%)

Форма	Глобальні випадання		р. Дон		Цимлянське водосховище	
	^{90}Sr	^{137}Cs	^{90}Sr	^{137}Cs	^{90}Sr	^{137}Cs
Катіонна	70-99	50-97	94	53	98	65
Аніонна	0,5-22	2-35	2	7	1	19
Нейтральна	0-18	0,7-27	4	40	1	16

3.4. Коефіцієнти трансформації форм радіонуклідів

На основі теоретичних і лабораторних досліджень УкрНДГМІ [94] щодо виносу радіостронцію (як найменш здатного сорбуватися із довгоживучих ізотопів, які входять у структуру UO_2) із паливних частинок можна зробити висновок, що швидкість розчинення паливної компоненти дорівнює не більше $1 \cdot 10^{-9} \text{ c}^{-1}$.

Кінетичні коефіцієнти (коефіцієнти швидкості) вилуговування радіонуклідів з паливних частинок k_1 залежать від характеристик частинок, які випали, і від властивостей ґрунту [52]. Тому значення k_1 у 30-кілометровій зоні ЧАЕС різні в залежності від напрямку і відстані від станції. На західному і південно-західному напрямках значення $k_1 = (0,36-1,32) \cdot 10^{-9} \text{ c}^{-1}$, при середньому значенні $k_1 = 0,792 \cdot 10^{-9} \text{ c}^{-1}$, а на північно-західному – $k_1 = (1,32-9,48) \cdot 10^{-9} \text{ c}^{-1}$, при середньому значенні $k_1 = 3,72 \cdot 10^{-9} \text{ c}^{-1}$. На цих напрямках вплив віддалі від станції на значення кінетичного коефіцієнта вилуговування не спостерігається. На

РОЗДІЛ 3

південному і південно-східному напрямках прослідковується тенденція збільшення значення кінетичного коефіцієнта вилуговування при збільшенні відстані від станції. На відстані до 5 км середнє значення k_1 складає $(2,4 \pm 1,2) \cdot 10^{-9} \text{ c}^{-1}$, при відстані 5 км і більше – $k_1 = (10,8 \pm 4,8) \cdot 10^{-9} \text{ c}^{-1}$.

Таку залежність кінетичного коефіцієнта вилуговування можна пояснити гранулометричним складом паливних частинок.

Для аллювіальних дернових ґрунтів кінетичний коефіцієнт вилуговування ^{90}Sr з „гарячих” частинок змінюється в межах $k_1 = (3,24 - 8,04) \cdot 10^{-9} \text{ c}^{-1}$ [82].

На основі експериментальних даних розраховані кінетичні коефіцієнти мобілізації і іммобілізації ^{90}Sr і ^{137}Cs у дерново-підзолистих і торфових ґрунтах (таблиця 3.14) [11]. Для ґрунтів 30-кілометрової зони кінетичний коефіцієнт фіксації k_f змінюється у межах $k_f = (1,2 - 4,8) \cdot 10^{-7} \text{ c}^{-1}$, кінетичний коефіцієнт ремобілізації – $k_r = (0,72 - 2,4) \cdot 10^{-8} \text{ c}^{-1}$ [52].

Таблиця 3.14

Середні значення кінетичних коефіцієнтів мобілізації (k_1) і іммобілізації (k_2)

Радіонуклід	Тип ґрунту	$k_1, (10^{-9} \text{ c}^{-1})$	$k_2, (10^{-9} \text{ c}^{-1})$
^{90}Sr	Дерново-підзолистий	6,2	0,63
^{90}Sr	Торфовий	9,8	11
^{137}Cs	Дерново-підзолистий	6,2	54
^{137}Cs	Торфовий	9,8	79

РОЗДІЛ 3

Поряд з кінетичними параметрами фіксації і ремобілізації важливою характеристикою стану радіонуклідів у ґрунті є рівноважна частка f_{∞} рухливої форми ^{137}Cs і ^{90}Sr [52], яка визначається співвідношенням

$$f_{\infty} = \frac{k_f}{k_f + k_r}, \quad (3.2)$$

де k_f – кінетичний коефіцієнт фіксації, k_r – кінетичний коефіцієнт ремобілізації.

Рівноважна частка обмінної форми може бути визначена експериментально через певний час після потрапляння радіонукліду у ґрунт у водорозчинній або обмінній формі. Цим умовам відповідають експерименти при штучному внесенні радіонуклідів у ґрунт або при забрудненні ґрунту глобальними випаданнями, оскільки вміст у них необмінних форм незначний. Це відноситься і до викидів ^{137}Cs в результаті аварії на ЧАЕС у віддалених районах, в яких переважала конденсаційна компонента. В таблиці 3.15 узагальнені дані про рівноважну частку рухливого цезію у різних типах ґрунтів.

З проведених досліджень випливає, що похибка визначення середнього значення рівноважної частки для кожного типу ґрунту значна. Стандартне відхилення значень від середнього значення для дерново-підзолистих ґрунтів, наприклад, складає 67 %, для торфового – 83 %.

Рівноважна частка мобільного стронцію у ґрунті оцінюється за його рівноважною формою при глобальному або штучному внесенні. Дослідження форм штучно внесенного стронцію у ґрунти показують, що для кислих ґрунтів з низьким вмістом органічної речовини рівноважна частка мобільного стронцію оцінюється як 80 ± 15 %, для нейтральних і лужних ґрунтів з високим вмістом гумусу – 60 ± 10 %. Таким чином, частка

РОЗДІЛ 3

рівноважного вмісту мобільного стронцію може бути оцінена задовільно при наявності мінімальної інформації про ґрунт. Тоді як для ^{137}Cs невизначеність такої оцінки сягає 80 %.

Таблиця 3.15
Середня рівноважна частка рухливого ^{137}Cs
у різних типах ґрунтів

Тип ґрунту	^{137}Cs , %	Число незалежних проб
Дерново-підзолистий (крім глесового)	12±8	23
Торфовий, торфово-болотний, торфово-глесвий	6±5	9
Дерново-глесвий, дерново-підзолистий глесвий	13±6	9
Алювіальний дерновий	0,7±0,2	3
Чорнозем вилугуваний	6,8±0,4	2

На даний час прийнято [52, 121, 123], що в ґрунті та в донних відкладах ^{137}Cs фіксується в результаті дифузії катіонів у об'єм кристалічних частинок ґрунту. Для практичного прогнозування розглядається модель [52] згідно якої перехід обмінної форми у необмінну здійснюється в результаті дифузії радіонуклідів в об'єм ґрунту на характерну глибину $l \sim \sqrt{\pi Dt}$, де D – коефіцієнт дифузії, t – час. Процес фіксації при такому підході описується виразом

$$\varphi = \varphi_{об} \left(1 + \frac{l}{\sqrt{\pi Dt}} \right), \quad (3.3)$$

де φ – частка мобільної форми (обмінної або водорозчинної) в момент часу t , а $\varphi_{об}$ – частка мобільної форми у рівноважному стані ($t = \infty$).

РОЗДІЛ 3

Якщо означити дифузний параметр фіксації δ

$$\delta = \frac{l}{\sqrt{\pi D}}, \quad (3.4)$$

то співвідношення (3.3) набуде вигляду

$$\varphi = \varphi_{об} \left(1 + \frac{\delta}{\sqrt{t}} \right). \quad (3.5)$$

Зазначимо, що з формул (3.4) і (3.5) впливає співвідношення $\varphi > \varphi_{об}$ для всіх значень $t < \infty$, а при $t \rightarrow \infty$, φ прямує до рівноважного значення $\varphi_{об}$.

Для оцінки параметрів у виразі (3.5) необхідно мати дані про величину φ у два моменти часу. В таблиці 3.16 наведено середнє значення дифузійного параметру фіксації, розраховане за експериментальними даними.

Таблиця 3.16.

Дифузійний параметр фіксації ^{137}Cs для деяких типів ґрунтів

Ґрунт	δ для ^{137}Cs , $\text{с}^{1/2}$
Пісковий	$(8,8 \pm 5,9) \cdot 10^2$
Мінеральний (крім піскового)	$(2,9 \pm 1,2) \cdot 10^3$
Торфовий	$(1,47 \pm 0,9) \cdot 10^4$

Середнє значення дифузійного параметру δ для ^{90}Sr рівне $(2,3 \pm 0,15) \cdot 10^2 \text{ с}^{1/2}$ [52].

РОЗДІЛ 4

**ВИЛУГОВУВАННЯ РАДІОНУКЛІДІВ З
РАДІОАКТИВНИХ ВИПАДАНЬ ТА ЇХ
ДЕСТРУКЦІЯ**

Як зазначалось, основними джерелами радіоактивного забруднення ґрунту і ґрунтових вод у районі ЧАЕС є дрібнодисперсні частинки зруйнованого ядерного палива, графітові частинки, забруднені паливом, вуглищево-бітумні частинки, вторинні радіоактивні частинки, які утворилися в результаті захоплення радіонуклідів з парогазової фази частинками атмосферного пилу і частинками ґрунту. Забруднення ґрунтових вод може виникнути і при контакті їх з підреакторними техногенними новоутвореннями.

В природних умовах паливовмісні частинки з часом руйнуються під дією процесів вивітрювання, саморуйнування, окислення та інших факторів. У зв'язку з цим радіонукліди переходять у рухомі стани і можуть мігрувати за профілем ґрунту у вигляді тонкодисперсних і колоїдних частинок та в розчинних формах. Тому дослідження процесу вилуговування радіонуклідів з радіоактивних забруднень та впливу різних вилуговуючих речовин на стан і міграцію паливовмісних частинок є необхідним [1, 2, 25, 30, 35, 37, 59-61, 88, 89].

Перехід радіонуклідів у розчин з паливовмісних частинок відбувається за двома механізмами. Частина радіонуклідів переходить у розчин у результаті розчинення матриці, а друга частина – в результаті їх вилуговування з матриці.

При руйнуванні частинок поряд з переходом радіонуклідів у розчин має місце, в тій чи іншій мірі, зворотний процес утримання радіонуклідів у твердій фазі ґрунту за рахунок сорбції їх на природних компонентах ґрунту, співосад з важкорозчинними металоорганічними, органомінеральними і мінеральними сполуками. У зв'язку з цим практична відсутність радіонуклідів у деяких випадках у розчині при їх вилуговуванні ще не свідчить, що процес руйнування частинок ядерного палива не відбувся. Повніша інформація може бути отримана при дослідженні вилуговування радіонуклідів з самих техногенних частинок ядерних матеріалів, які виділені з проб ґрунту.

Мобільність радіоізоотопів стронцію, церію, плутонію та інших тугоплавких елементів в першу чергу залежить від швидкості деструкції паливних частинок, а також швидкості і міцності сорбції вилугованих радіонуклідів твердою фазою ґрунту. В роботах [37, 40, 44, 45, 47, 48] проведено дослідження по деструкції паливних компонент радіоактивного забруднення.

4.1. Лабораторні дослідження вилуговування радіонуклідів

Дослідження вилуговування радіонуклідів з різних видів радіоактивних забруднень при дії розчинів близьких до природних, а також при дії мінеральних кислот проведено у працях [1, 2, 30, 37, 59-61, 88, 89].

Перші дослідження ступеня вилуговування радіонуклідів з паливовмісних частинок проводились відразу після аварії у 1986 році [1, 2, 30]. Серія дослідів проводилася для окремих типів паливних частинок, коли в якості вилуговуючого розчину використовувалась водна витяжка чорнозему ($pH = 6,2$).

В таблиці 4.1 наведено фізико-хімічні характеристики частинок палива, для яких проводились досліді. Дані про ступінь

РОЗДІЛ 4

переходу радіонуклідів з частинок палива у розчин у відсотках від вмісту у пробі подано в таблиці 4.2.

Таблиця 4.1

Фізико-хімічні характеристики паливних частинок в пробах палива

Но- мер про- би	Діаметр части- нок (10^{-3} м)	Маса части- нок, (10^{-6} кг)	A_{95Zr} (10^{11} , Бк/кг)	A_{106Ru} (10^{11} , Бк/кг)	A_{134Cs} (10^{11} , Бк/кг)	A_{137Cs} (10^{11} , Бк/кг)	A_{144Ce} (10^{11} , Бк/кг)
1	0,2-0,4	3,15	2,8	7,0	0,66	1,8	21,0
2	0,3-0,5	0,4	3,2	13,0	1,5	3,8	32,0
3	0,3-0,6	10,1	--	6,5	1,18	3,7	10,8
4	0,3-0,6	9,9	—	4,6	0,46	1,8	8,7
5	0,3-0,6	10,1	—	4,7	0,67	2,4	9,0

Таблиця 4.2

Ступінь переходу радіонуклідів з паливних частинок у водну витяжку чорнозему (%)

Номер проби	^{95}Zr	^{106}Ru	^{134}Cs	^{137}Cs	^{144}Ce
1	0,003	0,02	0,01	0,02	0,004
2	0,004	0,01	0,01	0,02	0,004
3	—	0,01	0,02	0,03	0,02
4	—	0,01	0,03	0,04	0,008
5	—	0,02	0,01	0,01	0,0009

Зазначимо, що тут нумерація проб дещо відрізняється від їхньої нумерації у праці [30]. Проби, представлені у таблицях 4.1 і 4.2, відібрані на відстані 1 – 2 км від ЧАЕС. Проби 1 та 2 –

РОЗДІЛ 4

це зразки палива. Проба 3 містить крихкі частинки з матовим блиском і мікрозернистою структурою, 4 – частинки крихкої структури, покриті плівкою зі скляним блиском, 5 – щільні частинки з сильним скляним блиском і високою міцністю.

Ступінь вилуговування радіонуклідів у водну витяжку чорнозему є незначною (сога частка відсотка) і, як і слід було чекати, ступінь вилуговування радіонуклідів зі щільних частинок (проба 5) менша, ніж з крихких (проба 3).

Для другої серії дослідів (1989 р.) [30] використано концентрат паливних частинок, так звані шліхові проби. В якості вилуговуючих розчинів послідовно використовувались водна витяжка чорнозему і дві порції децимолярного розчину соляної кислоти. Результати дослідів наведено у таблиці 4.3.

Таблиця 4.3

Ступінь переходу радіонуклідів зі шліхових проб у розчини
(проби відібрані на відстанях 5,0 – 17,5 км від ЧАЕС на різних
напрямах) (%)

Но- мер про- би	Водна витяжка чорнозему			0,1 моль/л HCl			0,1 моль/л HCl (повторний)		
	¹⁰⁶ Ru	¹³⁷ Cs	¹⁴⁴ Ce	¹⁰⁶ Ru	¹³⁷ Cs	¹⁴⁴ Ce	¹⁰⁶ Ru	¹³⁷ Cs	¹⁴⁴ Ce
1	4,6	1,4	–	3,6	6,6	9,4	4,6	2,6	0,7
2	1,5	0,4	–	1,1	0,4	0,5	1,1	3,9	8,5
3	1,0	0,4	–	5,1	9,0	45,0	1,0	5,4	5,4
4	0,2	0,1	0,01	3,1	24,0	23,0	0,5	11	4,8
5	0,03	0,03	–	2,5	9,0	13,0	0,4	6,6	3,3

1 – південний захід, 15 км; 2 – північний захід, 17,5 км; 3 – північний схід, 5,3 км; 4 – південний захід, 13,5 км; 5 – південний захід, 5,0 км

Інтенсивніший перехід радіонуклідів зі шліхів пов'язаний, напевно, з більшою дисперсністю паливних частинок у шліхах у порівнянні з одиничними зернами. Паливні частинки в одинич-

РОЗДІЛ 4

них зернах мають розміри $(0,3-0,5) \cdot 10^{-3}$ м, а у важких шліхах – $(0,01-0,04) \cdot 10^{-3}$ м.

В серії дослідів, проведених у 1987 році [2] вилуговування проходило з графітових частинок, забруднених паливом, які відібрані у 1986 році з ґрунтів у районі ЧАЕС. В якості вилуговуючого розчину взято водну витяжку чорнозему (таблиця 4.4).

Таблиця 4.4

Ступінь переходу радіонуклідів з графіту у водну витяжку чорнозему (%)

Зразок (графіт)	^{95}Zr	^{106}Ru	^{134}Cs	^{137}Cs	^{144}Ce
1	0,9	0,6	2,1	2,4	1,2
2	1,1	1,5	3,7	4,4	1,8
3	1,7	1,2	2,9	1,7	1,6

Якщо з окремих паливних частинок у водну витяжку чорнозему перейшло рутенію та ізоотопів цезію $(1-2) \cdot 10^{-2}$ %, а цирконію і церію – $(3-4) \cdot 10^{-3}$ % (таблиця 4.2), то ступінь переходу радіонуклідів при контакті з графітовими частинками в таку ж витяжку на кілька порядків вища (таблиця 4.4).

Оцінка ступеня переходу в розчин α -випромінюючих радіонуклідів виконана на основі радіохімічного аналізу частинок палива і графіту. Встановлено, що ступінь переходу урану з частинок палива у водну витяжку чорнозему складає $(1-4) \cdot 10^{-3}$ %, а сумарна α -активність (в основному плутоній) виносить $(4-7) \cdot 10^{-3}$ %, що корелює зі ступенем вилуговування ^{144}Ce ($4 \cdot 10^{-3}$ %).

Наступну серію дослідів з вилуговування радіонуклідів проведено для трьох типів паливних частинок (проби 3-5) [1]. В якості вилуговуючих розчинів використовувались дистильована вода, амонійно-ацетатний буфер ($pH=4,8$) та 1 моль/л розчин соляної кислоти. В таблиці 4.5 наведено ступінь вилуговування

РОЗДІЛ 4

радіонуклідів з проб паливних частинок. Встановлено, що ступінь вилуговування радіонуклідів зі щільних частинок палива з високою твердістю нижча, ніж з інших видів паливних частинок.

Таблиця 4.5

Ступінь переходу γ -випромінюючих радіонуклідів з паливних частинок у розчини (нумерація проб відповідає табл.4.2) (%)

Проба	^{106}Ru	^{134}Cs	^{137}Cs	^{144}Ce
<i>Дистильована вода</i>				
3	$1,1 \cdot 10^{-2}$	$2,4 \cdot 10^{-2}$	$3,4 \cdot 10^{-2}$	$1,5 \cdot 10^{-2}$
4	$9,6 \cdot 10^{-3}$	$3,2 \cdot 10^{-2}$	$3,6 \cdot 10^{-2}$	$7,6 \cdot 10^{-3}$
5	$2,1 \cdot 10^{-3}$	$1,3 \cdot 10^{-2}$	$1,3 \cdot 10^{-2}$	$8,7 \cdot 10^{-4}$
<i>Амонійно-ацетатний буфер</i>				
3	$6,5 \cdot 10^{-2}$	$1,9 \cdot 10^{-2}$	$2,4 \cdot 10^{-2}$	$9,0 \cdot 10^{-2}$
4	$1,9 \cdot 10^{-1}$	$1,6 \cdot 10^{-2}$	$1,7 \cdot 10^{-2}$	$3,7 \cdot 10^{-2}$
5	$2,7 \cdot 10^{-2}$	$8,6 \cdot 10^{-3}$	$9,0 \cdot 10^{-3}$	$1,0 \cdot 10^{-2}$
<i>1 моль/л HCl</i>				
3	0,25	0,25	0,33	0,31
4	1,8	0,28	0,34	0,17
5	0,5	0,25	0,28	0,11

В роботі [1] описано досліди, які проводились на зразках ґрунтів, відібраних у травні 1986 року по південно-західному (проба А) і західному (проба Б) слідах радіоактивних викидів на відстані 14,6 і 1,2 км від 4-го блоку ЧАЕС відповідно. Проба А є сумішшю кварцового піску і рослинних залишків (~ 30%), проба Б – кварцовий пісок (типовий вид ґрунту в районі ЧАЕС). Найбільша частка активності у піскових ґрунтах за станом на 1987 рік належала ^{144}Ce , ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{106}Ru , ^{95}Zr та ^{95}Nb . Вміст радіонуклідів у пробах А і Б (Бк/кг) подано у таблиці 4.6.

У дослідах в якості вилуговуючих розчинів використувались водні витяжки опалого листя, соснових гілок і хвої,

РОЗДІЛ 4

торфу і чорнозему з полігонів в околі ЧАЕС (таблиці 4.7-4.8). В усіх дослідах після контакту проб з водними витяжками спостерігалось підвищення pH розчинів. В таблицях 4.7 і 4.8 наведено результати досліджень ступеня переходу радіонуклідів у вибрані розчини після контакту проб з вилуговуючими розчинами протягом 1, 6, 20 годин при перемішуванні при кімнатній температурі. Символ „-” означає, що кількість радіонуклідів у розчинах була нижче, ніж границя чутливості реєстрації.

Таблиця 4.6

Вміст радіонуклідів у пробах А і Б (Бк/кг)

Проба	A_{95Zr}	A_{106Ru}	A_{137Cs}	A_{144Ce}
А	$(9,0 \pm 0,5) \cdot 10^5$	$(1,44 \pm 0,08) \cdot 10^6$	$(5,9 \pm 0,3) \cdot 10^5$	$(5,2 \pm 0,3) \cdot 10^6$
Б	$(1,9 \pm 0,1) \cdot 10^8$	$(4,0 \pm 0,2) \cdot 10^8$	$(1,65 \pm 0,09) \cdot 10^8$	$(1,12 \pm 0,08) \cdot 10^6$

Таблиця 4.7

Ступінь переходу радіонуклідів із проби А в розчини (%)

Час перемішування (год.)	^{95}Zr	^{106}Ru	^{137}Cs	^{144}Ce
1	2	3	4	5
<i>Водна витяжка листя (pH = 8,23)</i>				
1	$0,3 \pm 0,1$	—	$4,6 \pm 0,4$	$0,6 \pm 0,1$
6	—	$3,4 \pm 0,6$	$3,9 \pm 0,6$	$0,4 \pm 0,1$
20	—	$4,1 \pm 0,3$	$4,2 \pm 0,4$	$0,9 \pm 0,2$
<i>Водна витяжка соснових гілок і хвої (pH = 5,27)</i>				
1	—	—	$2,5 \pm 0,6$	—
6	—	$4,7 \pm 0,7$	$2,9 \pm 0,3$	$0,3 \pm 0,2$
20	—	—	—	—

РОЗДІЛ 4

Продовження таблиці 4.7

1	2	3	4	5
<i>Водна витяжка торфу (pH =6,77)</i>				
1	–	–	–	–
6	0,6 ± 0,3	3,7 ± 0,4	–	0,3 ± 0,1
20	–	3,7 ± 0,4	2,2 ± 0,6	0,2 ± 0,1
<i>Водна витяжка чорнозему (pH =6,05)</i>				
1	–	1,6 ± 0,9	2,0 ± 0,4	–
6	2,1 ± 0,4	–	4,9 ± 0,8	2,1 ± 0,2
20	–	–	2,0 ± 0,3	–

Таблиця 4.8

Ступінь переходу радіонуклідів із проби Б в розчини (%)

Час перемішування (год.)	⁹⁵ Zr	¹⁰⁶ Ru	¹³⁷ Cs	¹⁴⁴ Ce
<i>Водна витяжка листя (pH =8,22)</i>				
1	1,3 ± 0,2	0,4 ± 0,1	2,4 ± 0,1	0,7 ± 0,03
6	0,9 ± 0,1	1,7 ± 0,1	3,0 ± 0,1	0,6 ± 0,03
20	0,2 ± 0,1	0,2 ± 0,1	2,9 ± 0,1	0,1 ± 0,03
<i>Водна витяжка соснових гілок і хвої (pH =6,50)</i>				
1	0,2 ± 0,02	0,2 ± 0,1	3,2 ± 0,2	0,2 ± 0,02
6	0,3 ± 0,02	5,2 ± 0,4	3,8 ± 0,2	0,3 ± 0,02
20	0,2 ± 0,02	0,6 ± 0,1	4,5 ± 0,2	0,2 ± 0,02
<i>Водна витяжка торфу (pH =6,35)</i>				
1	0,05 ± 0,01	0,1 ± 0,01	1,0 ± 0,1	0,1 ± 0,01
6	0,3 ± 0,1	0,6 ± 0,1	2,6 ± 0,1	0,2 ± 0,01
20	0,2 ± 0,1	0,6 ± 0,1	3,6 ± 0,2	0,2 ± 0,01
<i>Водна витяжка чорнозему (pH =6,05)</i>				
1	0,05 ± 0,003	0,6 ± 0,1	0,7 ± 0,1	0,05 ± 0,003
6	0,07 ± 0,004	3,2 ± 0,1	1,1 ± 0,1	0,06 ± 0,004
20	0,2 ± 0,01	5,4 ± 0,1	1,4 ± 0,1	0,2 ± 0,01

РОЗДІЛ 4

Незалежно від природи розчину збільшення часу контакту проб ґрунту А з розчинами від 1 до 20 годин не суттєво вплинуло на ступінь вилуговування радіонуклідів.

Повніша інформація була отримана при роботі з пробою Б. При тривалішому контакті у всіх розчинах, крім опалого листя, збільшується концентрація ^{137}Cs ; у водній витяжці чорнозему збільшується концентрація всіх радіонуклідів. Перехід ^{95}Zr і ^{144}Ce у всі розчини, незалежно від тривалості контакту, складає менше 1 %. Перехід ^{106}Ru у водні витяжки чорнозему і соснової хвої складає біля 5 %. Ступінь вилуговування ^{137}Cs при контакті з розчином 20 годин найбільша у розчині соснової хвої (4,5 %) і у витяжці торфу (3,6 %).

Визначено також ступінь вилуговування радіонуклідів із проб ґрунту при контакті їх з азотною, соляною, сірчаною кислотами різної концентрації (таблиці 4.9-4.10). Серія дослідів проводилась при різних часах (1 год., 8 год., 8 год. з підігрівом до температури 358 ± 2 К) контакту частинок з розчинами азотної, соляної та сірчаної кислот. При збільшенні часу контакту і концентрації мінеральних кислот зростає ступінь переходу радіонуклідів у розчини, те саме спостерігається і при проведенні вилуговування при підвищеній температурі розчинів.

Таблиця 4.9

Ступінь переходу радіонуклідів із проби А в розчини
мінеральних кислот (%)

Час перемішування (год.)	^{95}Zr	^{106}Ru	^{137}Cs	^{144}Ce
1	2	3	4	5
<i>1 моль/л HNO₃</i>				
1	$3,4 \pm 0,1$	$4,0 \pm 0,1$	37 ± 2	$3,5 \pm 0,1$
8	$4,7 \pm 0,1$	–	67 ± 1	18 ± 2
8 (з нагрівом)	–	–	100 ± 1	86 ± 1

РОЗДІЛ 4

Продовження таблиці 4.9

1	2	3	4	5
<i>6 моль/л HNO₃</i>				
1	7,5 ± 0,1	–	44 ± 1	14 ± 2
8	16,0 ± 0,5	19 ± 1	96 ± 1	91 ± 1
8 (з нагрівом)	69 ± 1	–	91 ± 1	88 ± 1
<i>1 моль/л HCl</i>				
1	–	7,5 ± 0,1	32 ± 2	5,5 ± 0,1
8	–	10 ± 0,3	33 ± 2	8,3 ± 0,1
8 (з нагрівом)	4,7 ± 0,1	11 ± 0,3	72 ± 1	53 ± 1
<i>6 моль/л HCl</i>				
1	–	–	36 ± 2	4,0 ± 0,2
8	3,3 ± 0,1	–	47 ± 1	4,6 ± 0,2
8 (з нагрівом)	12 ± 1	–	73 ± 1	48 ± 1
<i>0,5 моль/л H₂SO₄</i>				
1	–	9,1 ± 0,2	29 ± 2	5,9 ± 0,1
8	–	22 ± 2	55 ± 1	13 ± 1
8 (з нагрівом)	–	–	48 ± 1	11 ± 1
<i>3 моль/л H₂SO₄</i>				
1	–	–	25 ± 2	2,8 ± 0,1
8	6,3 ± 0,1	–	32 ± 2	7,4 ± 0,2
8 (з нагрівом)	50 ± 1	–	75 ± 1	59 ± 1

Таблиця 4.10

Ступінь переходу радіонуклідів із проби Б в розчині
мінеральних кислот (%)

Час перемішування (год.)	⁹⁵ Zr	¹⁰⁶ Ru	¹³⁷ Cs	¹⁴⁴ Ce
1	2	3	4	5
<i>1 моль/л HNO₃</i>				
1	0,3 ± 0,1	–	35 ± 2	0,5 ± 0,01
8	0,7 ± 0,1	1,4 ± 0,1	47 ± 1	3,3 ± 0,1

РОЗДІЛ 4

Продовження таблиці 4.10

1	2	3	4	5
8 (з нагрівом)	21 ± 1	6,1 ± 0,3	80 ± 1	47 ± 1
<i>6 моль/л HNO₃</i>				
1	1,0 ± 0,1	2,0 ± 0,1	32 ± 1	6,4 ± 0,1
8	16,0 ± 0,3	5,5 ± 0,1	61 ± 1	48 ± 1
8 (з нагрівом)	31 ± 1	9,3 ± 0,3	63 ± 1	53 ± 1
<i>1 моль/л HCl</i>				
1	1,1 ± 0,1	2,2 ± 0,1	38 ± 1	2,0 ± 0,1
8	–	1,9 ± 0,1	47 ± 1	3,1 ± 0,1
8 (з нагрівом)	6,5 ± 0,2	12 ± 1	71 ± 1	26 ± 1
<i>6 моль/л HCl</i>				
1	2,1 ± 0,1	4,5 ± 0,1	47 ± 1	2,9 ± 0,1
8	5,3 ± 0,1	6,2 ± 0,1	56 ± 1	8,3 ± 0,2
8 (з нагрівом)	17 ± 1	13 ± 1	20 ± 1	18 ± 1
<i>0,5 моль/л H₂SO₄</i>				
1	2,3 ± 0,1	3,8 ± 0,1	30 ± 1	2,4 ± 0,1
8	1,9 ± 0,1	–	39 ± 1	2,1 ± 0,1
8 (з нагрівом)	66 ± 1	5,0 ± 0,1	75 ± 1	51 ± 1
<i>3 моль/л H₂SO₄</i>				
1	16 ± 2	3,8 ± 0,1	45 ± 1	8,0 ± 0,1
8	95 ± 1	19 ± 2	73 ± 1	87 ± 1
8 (з нагрівом)	100 ± 1	19 ± 2	78 ± 1	89 ± 1

Аналізуючи результати досліджень, проведених у роботах [1, 2, 30], на зразках ґрунтів, відібраних у 1986-1987 роках можна зробити висновки, що ступінь вилугування радіонуклідів – ⁹⁵Zr, ¹⁰⁶Ru, ¹³⁷Cs і ¹⁴⁴Ce:

- з частинок палива невелика і складає десяті і соті частки відсотка для водних витяжок із різних типів ґрунтів і десяті частки відсотка для 1 моль/л розчину соляної кислоти;
- з графіту і шліху вища, ніж з паливних частинок;

РОЗДІЛ 4

- з піскових ґрунтів у водні витяжки, які близькі до природних, найвища для ^{137}Cs і ^{106}Ru , та складає кілька відсотків;
- у водні витяжки (крім витяжки чорнозему) практично не залежить від часу контакту проб з розчином;
- при збільшенні часу контакту збільшується для всіх досліджуваних радіонуклідів у всіх розчинах мінеральних кислот і у водній витяжці чорнозему;
- обробка зразків ґрунтів мінеральними кислотами (концентрації до 6 моль/л) не приводить до повного переходу радіонуклідів у розчини (складає до 80-90 %).

Для вивчення ступеня вилугування радіонуклідів у дослідженнях [59, 60] використовувались інші розчини.

Для дослідів використовували проби ґрунту, відібрані у 1988 році на західному сліді 5,0 км (чорнозем) і 13,5 км (пісковий ґрунт) від 4-го блоку ЧАЕС. Вміст радіонуклідів у пробах чорнозему і піщого ґрунту складав (в Бк/кг): для ^{106}Ru – $(1,7 \pm 0,7) \cdot 10^6$ і $(3,0 \pm 1,0) \cdot 10^5$; для ^{137}Cs – $(2,5 \pm 0,9) \cdot 10^3$ і $(5,0 \pm 1,0) \cdot 10^2$; для ^{144}Ce – $(3,2 \pm 0,7) \cdot 10^3$ і $(8,0 \pm 4,0) \cdot 10^2$ відповідно.

Проби послідовно оброблено розчинами: 1 – NaOH (0,1 моль/л) + $\text{Na}_2\text{C}_2\text{O}_4$ (0,05 моль/л); 2 – $(\text{NH}_4)_2\text{C}_2\text{O}_4$ (0,2 моль/л) + $\text{H}_2\text{C}_2\text{O}_4$ (0,1 моль/л) (розчином Тамма); 3 – NaOH (0,1 моль/л) + $\text{Na}_2\text{C}_2\text{O}_4$ 0,05 (моль/л); 4 – HCl (1 моль/л). Це дозволило визначити частку радіонуклідів, зв'язаних з аморфними сполуками (органічні природні кислоти, їх сполуки з хімічними елементами, гідроксиди заліза та алюмінію), які покривають тонкою плівкою мінеральні частинки та частку радіонуклідів (4-й дослід), адсорбованих компонентами ґрунту. Результати досліджень наведено в таблиці 4.11.

Аналізи результатів дослідів показують, що після всіх обробок з піщого ґрунту в розчин перейшло ^{106}Ru ~ 30 %,

РОЗДІЛ 4

$^{137}\text{Cs} \sim 10\%$, $^{144}\text{Ce} \sim 60\%$. Оскільки, за рік після аварії дослідями з вилугування не виявлено виходу радіонуклідів з чистих паливних частинок, а ^{144}Ce є їхнім безпосереднім компонентом, то можна зробити висновок, що на 1988 рік $\sim 60\%$ паливних частинок у піщовому ґрунті розклалися, і ^{144}Ce з'єднався з аморфними сполуками і сорбувався на компонентах ґрунту.

Таблиця 4.11

Ступінь переходу радіонуклідів у розчини з піщового ґрунту і чорнозему (%)

Розчин	^{106}Ru	^{137}Cs	^{144}Ce
<i>Піщовий</i>			
1	$15,05 \pm 5,0$	$1,1 \pm 0,1$	$14,7 \pm 0,8$
2	$5,0 \pm 3,0$	$2,3 \pm 0,2$	$24,7 \pm 0,8$
3	$8,0 \pm 4,0$	$1,2 \pm 0,1$	$4,2 \pm 0,3$
4	$1,9 \pm 1,0$	$5,7 \pm 0,4$	$14,8 \pm 0,8$
<i>Чорнозем</i>			
1	$0,7 \pm 0,5$	$0,7 \pm 0,07$	$1,0 \pm 0,1$
2	$0,7 \pm 0,5$	$2,0 \pm 0,2$	$0,8 \pm 0,1$
3	$0,6 \pm 0,4$	$1,2 \pm 0,1$	$0,5 \pm 0,05$
4	$0,5 \pm 0,3$	$1,0 \pm 0,1$	$1,7 \pm 0,1$

При послідовній обробці проб чорнозему в розчини перейшло тільки $^{106}\text{Ru} \sim 2,5\%$, $^{137}\text{Cs} \sim 5,0\%$ і $^{144}\text{Ce} \sim 4,0\%$. Отримані дані свідчать про те, що 96% ^{144}Ce зв'язано або з паливними частинками, або зі сполуками, які не розчиняються у використовуваних розчинах.

Таким чином, результати вилугування радіонуклідів з проб ґрунту 1988 року показали, що

РОЗДІЛ 4

- можливий суттєвий розклад паливних частинок у піскових ґрунтах з перерозподілом радіонуклідів між різними складовими ґрунту;
- у чорноземі радіонукліди утримуються паливними частинками або іншими компонентами ґрунту.

Однією з можливих причин інтенсивнішого переходу радіонуклідів у розчини з проб піщового ґрунту може бути наявність у цих пробах дрібніших частинок палива (відстань від ЧАЕС – 13,5 км), ніж у пробах чорнозему (відстань від ЧАЕС – 5 км).

На початку 1991 року продовжено досліді з вилуговування радіонуклідів з важких шліхів, частинок ядерного палива і графіту [61]. Для дослідів виділено наступні фракції: окремі зерна паливних частинок – $(0,2 - 0,4) \cdot 10^{-3}$ м; концентрат паливних частинок (важкі шліхи) з середнім розміром зерен – $(0,3 - 0,5) \cdot 10^{-4}$ м, мінімальні зерна – $(0,2 - 0,3) \cdot 10^{-5}$ м; легка фракція; частинки графіту розміром $(0,2 - 0,4) \cdot 10^{-3}$ м, які „забруднені” ядерним паливом.

В якості вилуговуючих розчинів використано водну витяжку ґрунту, 2 порції HCl (0,1 моль/л) та HCl (1 моль/л). Результати дослідів наведено у таблиці 4.12. В таблиці вилуговуючі розчини позначено так: 1 – водна витяжка; 2 – 1-ша порція HCl (0,1 моль/л); 3 – 2-га порція HCl (0,1 моль/л); 4 – HCl (1 моль/л).

Результати досліджень показали, що після всіх обробок з паливних частинок вилуговується 0,8 - 1,4 % радіонуклідів. Вищі значення відсотоків вилуговування отримано для концентрату паливних частинок. Збільшення концентрації соляної кислоти не вплинуло на ступінь переходу радіонуклідів у розчин. Низькі значення ступеня вилуговування розчином HCl (0,1 моль/л) отримано і для легкої фракції. Хоча ця фракція містить дуже маленькі паливні частинки, але, очевидно, за рахунок сорбції вилужених радіонуклідів на компонентах фракції (глини, оксиди заліза та інші) їхня концентрація в розчинах незначна.

РОЗДІЛ 4

Таблиця 4.12

Ступінь вилуговування радіонуклідів (%)

Вилуговуючий розчин	^{106}Ru	^{137}Cs	^{144}Ce	$\sum \alpha$ - активність
1	2	3	4	5
<i>Окремі зерна паливних частинок</i>				
1	—	$6,2 \cdot 10^{-3}$	—	$5 \cdot 10^{-3}$
2	0,5	0,6	0,4	0,2
3	0,1	0,3	0,2	0,2
4	0,2	0,5	0,3	0,6
Всього вилуговано	0,8	1,4	0,9	1,0
<i>Концентрат паливних частинок</i>				
1	—	$2,1 \cdot 10^{-2}$	—	—
2	2,0	5,7	6,4	11,7
3	0,4	3,6	1,9	2,4
4	1,0	6,6	3,7	7,2
Всього вилуговано	3,4	15,9	12,0	21,3
<i>Легкі фракції</i>				
1	—	$2,6 \cdot 10^{-2}$	—	—
2	—	0,6	2,2	—
3	—	0,5	1,5	—
4	—	2,3	7,0	—
Всього вилуговано	—	3,4	10,7	—
<i>Частинки графіту</i>				
1	—	0,3	0,1	—
2	—	6,7	20,9	13,6
3	—	1,6	4,3	4,1
4	0,9	1,2	1,6	14,5
Всього вилуговано	0,9	9,8	26,9	32,2

З графітових зерен спостерігається інтенсивніше вилугування радіонуклідів. Це пов'язано, напевно, з іншим фізико-хімічним складом палива, яке забруднює графіт. Особливо інтенсивно вилугується з графітових зерен ^{144}Ce – біля 25 %.

Як і у випадку γ -випромінюючих радіонуклідів, ступінь переходу у вибрані розчини сумарної α -активності з концентрату паливних частинок вища (біля 21 %), ніж з окремих великих зерен паливних частинок (біля 1 %). Ступінь вилугування α -випромінюючих радіонуклідів з графіту корелює зі ступенем вилугування церію [61].

4.2. Вилугування радіонуклідів з паливних частинок

В праці [59] наведено результати лабораторних досліджень з вилугування радіонуклідів з диспергованого палива (U) та уран-цирконієвих частинок ($U-Zr$), які відібрані у червні 1991 року з проб ґрунту західного сліду на відстані 2,7 км від 4-го блоку ЧАЕС. У досліджах використовувались вилуговуючі розчини: водні витяжки чорнозему ($pH=5,2$) і деревини ($pH=3,9$). Результати вилугування радіонуклідів з частинок типу U та $U-Zr$ представлено в таблицях 4.13 і 4.14.

В таблиці 4.15 наведено дані ступеня переходу радіонуклідів з двох типів паливних частинок у різні розчини при послідовній обробці: 1 – H_2SO_4 (0,2 моль/л) при кімнатній температурі; 2 – HNO_3 (7 моль/г) при температурі (371±2) К; 3 – HNO_3 (7 моль/г)+ NH_4F (0,1 моль/г) при 371 К.

Дані, наведені в таблиці 4.15, свідчать, що в процесі витримки частинок у розчині H_2SO_4 (0,2 моль/л) ступінь переходу γ -випромінюючих радіонуклідів і урану у розчин поступово зростає і досягає кількох відсотків.

РОЗДІЛ 4

Таблиця 4.13

Ступінь переходу радіонуклідів з двох типів паливних частинок
у водну витяжку чорнозему (%)

Час (до- ба)	¹⁰⁶ Ru	¹²⁵ Sb	¹³⁴ Cs	¹³⁷ Cs	¹⁴⁴ Ce	²⁴¹ Am	U, (10 ⁻⁶ кг/л)
<i>U - частинки</i>							
0,08	—	0,0081	0,0076	0,0086	—	—	—
0,8	0,0055	0,034	0,019	0,021	0,0076	0,0018	3,2
3,6		0,055	0,023	0,025	0,0076	—	3,2
5,3		0,090	0,024	0,026	0,0093	—	2,3
<i>U - Zr - частинки</i>							
0,08	—	—	—	0,030	—	—	—
0,8	—	—	0,051	0,051	—	0,041	5
3,6	—	—	0,064	0,057	—	0,083	0,38
5,3	—	—	0,051	0,065	—	—	0,36

Таблиця 4.14

Ступінь переходу радіонуклідів з двох типів паливних частинок
у водну витяжку деревини (%)

Час (до- ба)	¹⁰⁶ Ru	¹²⁵ Sb	¹³⁴ Cs	¹³⁷ Cs	¹⁴⁴ Ce	²⁴¹ Am	U, (10 ⁻⁶ кг/л)
<i>U - частинки</i>							
2	—	0,0013	0,0031	0,0028	0,0013	0,021	5,8
4,6	0,0033	0,014	0,005	0,0049	0,0056	0,035	5,4
7,2		0,019	0,0058	0,006	0,0068	0,035	7,6
<i>U - Zr - частинки</i>							
2	—	—	0,013	0,013	—	—	13
4,6	—	—	—	0,021	—	—	3,9
7,2	—	—	—	0,022	0,0039	—	3,8

РОЗДІЛ 4

Таблиця 4.15

Ступінь переходу радіонуклідів з двох типів паливних частинок у розчини (%), послідовна обробка

Екстрагент	Час (доба)	^{137}Cs	^{144}Ce	$\sum \text{Pu}$	^{241}Am	U
<i>U - частинки</i>						
1	1	0,1	0,5	—	1,2	0,7
1	6,7	1,1	1,6	—	3,5	1,3
1	9,5	1,9	2,2	—	4,2	1,4
1	16,5	3,4	3,2	4,2	6,3	2,2
2	0,167	95,6	87,2	90,7	85,2	91,4
3	0,167	0,8	9,4	5,0	8,5	6,2
<i>U - Zr - частинки</i>						
1	1	0,2	0,1	—	0,1	0,1
1	6,7	1,3	0,4	—	0,8	0,2
1	9,5	2,3	0,6	—	1,0	0,3
1	16,5	6,9	1,1	1,5	1,3	0,6
2	0,167	86,9	52,4	57,4	46,3	41,4
3	0,167	4,8	38,6	37,6	42,3	52,0

1 – H_2SO_4 (0,2 моль/л); 2 – HNO_3 (7 моль/г); 3 – HNO_3 (7 моль/г) + NH_4F (0,1 моль/г).

Поведінка радіонуклідів відрізняється в частинках двох типів. З частинок диспергованого палива ^{144}Ce , ^{241}Am і уран виходять в більшій кількості, ніж з уран-цирконієвих частинок. Відмінності у ступені переходу ^{144}Ce , ^{241}Am , плутонію і урану в розчин у залежності від типу частинок спостерігаються і для розчину HNO_3 (7 моль/л): з частинок диспергованого палива в розчин перейшло більше 85 % цих радіонуклідів, а з уран-цирконієвих біля 50 %. В результаті дії на уран-цирконієві частинки

РОЗДІЛ 4

розчину 7 моль/л HNO_3 + 0,1 моль/л NH_4F спостерігається дальший перехід урану в розчин.

З проведених досліджень випливає, що в результаті всіх вказаних обробок не вдалось досягнути повного розчинення частинок диспергованого палива та уран-цирконієвих частинок.

Результати досліджень показали, що високоактивні частинки двох типів, які формують радіоактивне забруднення ближньої зони викиду ЧАЕС, є достатньо стійкими до дії ґрунтових розчинів. При вибраних умовах дослідів ступінь переходу в розчин таких радіонуклідів, як ^{106}Ru , ^{125}Sb , ^{137}Cs , ^{144}Ce , U з частинок диспергованого палива складає соті і тисячні частки відсотка. В перші дні контакту частинок з розчинами спостерігається незначне розчинення матриці. Однак можна очікувати, що в процесі тривалішого контакту може проходити пасивація поверхні частинок за рахунок утворення гідратованих оксидів урану. Міцність утримування радіонуклідів, за виключенням ізотопів цезію, уран-цирконієвими частинками вища, ніж частинками диспергованого палива. Це зумовлено наявністю важко розчинних сплавів і конгломератів паливних частинок зі сполуками цирконію і кремнію.

Частинки диспергованого палива легше руйнуються, ніж уран-цирконієві частинки. Подрібнення частинок приводить до збільшення ступеня переходу радіонуклідів у розчини. Таким чином, дисперговане паливо є екологічно небезпечніше, ніж уран-цирконієві частинки.

4.3. Вилуговування радіонуклідів із лавоподібних скломас

Дослідження зі ступеня і швидкості вилуговування радіонуклідів із лавоподібних скломас проведено в роботі [88]. Для дослідів взято зразки бурого і зеленого скла.

РОЗДІЛ 4

Зразок бурого скла – пластинка невизначеної форми, вагою 0,581 г, товщиною $(0,12-0,13) \cdot 10^{-2}$ м, загальною поверхнею $4,3 \cdot 10^{-4}$ м², густина зразка $2,6 \cdot 10^3$ кг/м³. Питомі активності склали в (Бк/кг): ^{144}Ce – $2,3 \cdot 10^{12}$, ^{106}Ru – $1,6 \cdot 10^{10}$, ^{134}Cs – $2,52 \cdot 10^{10}$, ^{137}Cs – $5,28 \cdot 10^{10}$ (станом на 20.04.86 р.). В якості вилуговуючого розчину використано хлорид натрію (0,01 моль/л, рН = 6,5). Час контакту зразка з розчином складав 39 діб. В таблиці 4.16 наведено результати визначення питомої активності γ -випромінюючих радіонуклідів у розчині.

Таблиця 4.16

Питома активність γ -випромінюючих радіонуклідів у розчині

Час витримки, доби	^{106}Ru ($10^3 \cdot \text{Бк/л}$)	^{134}Cs ($10^3 \cdot \text{Бк/л}$)	^{137}Cs ($10^3 \cdot \text{Бк/л}$)	^{144}Ce ($10^3 \cdot \text{Бк/л}$)
0,1	10±2	5,1±0,7	21±2	19±2
1,1	45±4	5,4±0,8	35±2	44±4
4,1	99±7	8±1	45±3	69±6
8,1	196±12	7±1	51±3	86±7
15,1	284±17	8,1±0,8	59±4	109±8
22,1	594±35	8±1	59±4	110±9
29,1	812±49	11±1	65±4	117±8
39,0	933±62	8,0±0,2	65±4	117±9

Аналіз результатів досліджень показує, що концентрація радіонуклідів у розчині збільшується зі збільшенням часу витримки зразка у розчині. Але якщо для рутенію концентрація збільшується протягом всього часу контакту (39 діб), то для ізотопів цезію і церію після 15 діб відбувається насичення розчину.

РОЗДІЛ 4

Граничне значення довгоживучого ^{137}Cs в розчині в умовах експерименту складає $6,5 \cdot 10^4 \text{ Бк/л}$.

В реальних умовах час контакту склоподібних матеріалів з водою може суттєво відрізнятись від лабораторних експериментів. Тому такі параметри, як ступінь і швидкість вилуговування, є інформативнішими характеристиками процесу. Швидкість вилуговування розрахована за формулою [88]:

$$V_n = \frac{A_n}{A_0} \cdot \frac{1}{\frac{S}{m} t_n}, \quad (4.1)$$

де V_n – швидкість вилуговування ($\text{кг}/\text{м}^2 \cdot \text{с}$); A_n – активність радіонукліда, що вилуговувався за період часу t_n ; A_0 – початкова активність радіонукліду; S – поверхня зразка, яка знаходилась у контакті з розчином, (м^2); m – вага зразка (кг); t_n – тривалість вилуговування (с).

З формули (4.1) випливає, що чим більший час вилуговування, тим менша швидкість вилуговування V_n .

Для зразка бурого скла проведені дослідження для визначення ступеня і швидкості вилуговування актиноїдних елементів (таблиці 4.17 і 4.18).

Як видно з таблиць найбільша швидкість вилуговування для ^{137}Cs і ^{144}Ce спостерігається в перші моменти контакту зразка з розчином. Швидкість вилуговування ^{106}Ru в першому наближенні постійна протягом всього часу контакту і приймає значення $1,3 \cdot 10^{-8} \text{ кг}/(\text{м}^2 \cdot \text{с})$. Ступінь вилуговування урану приблизно в 10 разів вищий, ніж плутонію. Результати досліджень також показали, що відношення активностей ізотопів плутонію в розчині $^{238}\text{Pu}/^{239,249}\text{Pu}$ дорівнює 0,39.

РОЗДІЛ 4

Таблиця 4.17

Ступінь переходу радіонуклідів у розчин (для зразка бурого скла) (%)

Час витримки, доби	^{106}Ru	^{134}Cs	^{137}Cs	^{144}Ce
0,1	$4,0 \cdot 10^{-2}$	$1,3 \cdot 10^{-3}$	$2,2 \cdot 10^{-3}$	$1,2 \cdot 10^{-3}$
1,1	$1,9 \cdot 10^{-1}$	$3,8 \cdot 10^{-3}$	$3,6 \cdot 10^{-3}$	$2,8 \cdot 10^{-3}$
4,1	$4,0 \cdot 10^{-1}$	$4,3 \cdot 10^{-3}$	$4,5 \cdot 10^{-3}$	$4,3 \cdot 10^{-3}$
8,1	$7,8 \cdot 10^{-1}$	$4,6 \cdot 10^{-3}$	$5,0 \cdot 10^{-3}$	$5,0 \cdot 10^{-3}$
15,1	1,1	$5,0 \cdot 10^{-3}$	$5,5 \cdot 10^{-3}$	$6,3 \cdot 10^{-3}$
22,1	2,2	$5,0 \cdot 10^{-3}$	$5,3 \cdot 10^{-3}$	$6,2 \cdot 10^{-3}$
29,1	2,8	$6,3 \cdot 10^{-3}$	$5,4 \cdot 10^{-3}$	$6,2 \cdot 10^{-3}$
39,0	3,2	$4,3 \cdot 10^{-3}$	$4,9 \cdot 10^{-3}$	$6,1 \cdot 10^{-3}$

Таблиця 4.18

Швидкість переходу радіонуклідів у розчин (для зразка бурого скла) ($\text{кг}/(\text{м}^2 \cdot \text{с})$)

Час витримки, доби	^{106}Ru	^{137}Cs	^{144}Ce	U	Pu
0,1	$5,17 \cdot 10^{-8}$	$2,76 \cdot 10^{-9}$	$1,49 \cdot 10^{-9}$	—	—
1,1	$2,64 \cdot 10^{-8}$	$4,94 \cdot 10^{-10}$	$3,91 \cdot 10^{-10}$	—	—
4,1	$1,49 \cdot 10^{-8}$	$1,72 \cdot 10^{-10}$	$1,61 \cdot 10^{-10}$	—	—
8,1	$1,49 \cdot 10^{-8}$	$9,43 \cdot 10^{-11}$	$9,54 \cdot 10^{-11}$	—	$5,29 \cdot 10^{-10}$
15,1	$1,1 \cdot 10^{-8}$	$5,63 \cdot 10^{-11}$	$6,44 \cdot 10^{-11}$	—	—
22,1	$1,49 \cdot 10^{-8}$	$3,68 \cdot 10^{-11}$	$4,37 \cdot 10^{-11}$	$2,07 \cdot 10^{-9}$	$2,07 \cdot 10^{-10}$
29,1	$1,49 \cdot 10^{-8}$	$2,87 \cdot 10^{-11}$	$3,33 \cdot 10^{-11}$	—	—
39,0	$1,26 \cdot 10^{-8}$	$1,95 \cdot 10^{-11}$	$2,41 \cdot 10^{-11}$	$8,39 \cdot 10^{-12}$	$9,2 \cdot 10^{-11}$

РОЗДІЛ 4

З порівняння швидкостей вилугування радіонуклідів випливає, що цей процес проходить з різними швидкостями. Оскільки вилугування проходило в нейтральному розчині, не виключено, що в процесі вилугування проходив частковий вторинний перерозподіл елементів гідролізу (церій, уран, плутоній). Звідси випливає, що процес вилугування із склоподібних матеріалів для радіонуклідів індивідуальний. Ця індивідуальність зумовлена як різними зв'язками основної маси радіонуклідів з різними компонентами скла, так і різним механізмом процесу вилугування.

Збереження постійної швидкості вилугування ^{106}Ru дозволяє припустити, що вся маса рутенію міститься в матриці (металеві сферичні гранули), яка легко руйнується в розчині.

З відносно високого ступеня вилугування ^{137}Cs і ^{144}Ce в перші моменти контакту з розчином і далі суттєве зменшення швидкості можна зробити висновок, що в перші моменти часу проходить вилугування цих радіонуклідів з поверхневого шару нерозчиненої матриці, а потім відбувається дифузійний процес з об'єму скла.

Наступна серія дослідів з вилугування була проведена для зразка зеленого скла [88]. Металевих включень у зеленому склі набагато менше, ніж у бурому. Досліди проводились на зразку зеленого скла – пластинці вагою $2,4 \cdot 10^{-5}$ кг, товщиною $0,05 \cdot 10^{-3}$ м. Питома активність радіонуклідів у зразку складає в (Бк/кг): $^{144}\text{Ce} - 1,0 \cdot 10^{12}$, $^{106}\text{Ru} - 2,9 \cdot 10^9$, $^{137}\text{Cs} - 1,9 \cdot 10^{10}$, $^{134}\text{Cs} - 8,4 \cdot 10^9$. Площа контакту пластинки з розчином $S = 1,7 \cdot 10^{-4}$ м². В якості вилугуючого розчину взято, як і для бурого скла, розчин хлориду натрію (0,01 моль/л).

В процесі проведення дослідів встановлено, що ступінь вилугування радіонуклідів із зеленого скла дуже низька, і тільки після контакту пластинки з розчином протягом 20 діб було виявлено радіонукліди у всьому об'ємі розчину.

РОЗДІЛ 4

Ступінь вилугування радіонуклідів із зеленого скла складає (%): $^{144}\text{Ce} - 4,7 \cdot 10^{-3}$, $^{106}\text{Ru} - 2,3 \cdot 10^{-1}$, $^{137}\text{Cs} - 2,1 \cdot 10^{-2}$, $^{134}\text{Cs} - 1,8 \cdot 10^{-2}$. Швидкість вилугування радіонуклідів зі зразка при контакті його з розчином протягом 20 діб складає ($\text{кг}/(\text{м}^2 \cdot \text{с})$): $^{144}\text{Ce} - 3,68 \cdot 10^{-12}$, $^{106}\text{Ru} - 1,84 \cdot 10^{-10}$, $^{137}\text{Cs} - 1,725 \cdot 10^{-11}$. Отримані дані свідчать, що швидкість вилугування для рутенію на два порядки, а для цезію на один порядок нижча для зеленого скла, ніж для бурого.

Результати досліджень з вилугування радіонуклідів із зразків склоподібних продуктів з підреакторного простору свідчать, що найбільш стійким до вилугування є зелене скло.

Для оцінки хімічної стійкості основних модифікацій палива в об'єкті „Укриття” (дисперговане паливо, „гарячі” частинки конденсаційного типу, лавоподібні паливовмісні матеріали) проведено дослідження впливу води на швидкість вилугування радіонуклідів [63]. Зразки конструктивного і пластифікованого бетону, графіту, таблеток палива, лавоподібних паливовмісних матеріалів витримували у спеціальних ємностях з вилуговуючим розчином безпосередньо всередині 4-го блоку. Для дослідів використовували зразки масою 0,001-0,01 кг, об'єм вилуговуючого розчину становив 0,25 – 0,50 л, при температурі $T = 283,15 \pm 5^\circ \text{K}$.

Проведені дослідження показали, що найшвидше вилугується ^{137}Cs із зразків бетону і графіту – водорозчинні форми ^{137}Cs практично повністю переходять у розчин за декілька годин. Швидкість вилугування ^{137}Cs , ^{90}Sr і урану зі зразків палива і лавоподібних паливовмісних матеріалів значно нижча, ніж з аерозольно-конденсаційних частинок, які визначають рівень забруднення зразків бетону. Лавоподібні паливовмісні матеріали виявились найстійкішими модифікаціями забруднення в об'єкті „Укриття”. Результати досліджень представлено в таблиці 4.19.

РОЗДІЛ 4

Таблиця 4.19

Залежність швидкості вилуговування радіонуклідів з типових
вразків паливовмісних матеріалів від часу контакту

Час контакту, рік	Швидкість вилуговування компоненту, $кг/(м^2 \cdot с)$		
	^{137}Cs	^{90}Sr	U
<i>Чорна кераміка (зелене скло)</i>			
0,5	—	—	$2,3 \cdot 10^{-12}$ $6,9 \cdot 10^{-12}$
1	$1,15 \cdot 10^{-11}$	$2,3 \cdot 10^{-12}$	—
	$4,6 \cdot 10^{-11}$	$5,75 \cdot 10^{-12}$	$6,9 \cdot 10^{-12}$
5	$1,15 \cdot 10^{-11}$	$8,05 \cdot 10^{-13}$	$1,15 \cdot 10^{-12}$
	$2,3 \cdot 10^{-11}$	$5,75 \cdot 10^{-12}$	$8,05 \cdot 10^{-12}$
<i>Коричнева кераміка (буре скло)</i>			
0,5	—	—	—
	—	—	$4,6 \cdot 10^{-11}$
1	—	—	—
	$1,15 \cdot 10^{-10}$	$5,75 \cdot 10^{-11}$	$3,45 \cdot 10^{-11}$
5	$2,3 \cdot 10^{-11}$	$1,15 \cdot 10^{-11}$	$5,75 \cdot 10^{-12}$
	$3,45 \cdot 10^{-11}$	$1,15 \cdot 10^{-11}$	$1,15 \cdot 10^{-11}$
<i>Паливо</i>			
0,5	—	—	$5,75 \cdot 10^{-11}$
1	$9,2 \cdot 10^{-10}$	$1,15 \cdot 10^{-10}$	$4,6 \cdot 10^{-11}$
5	$6,9 \cdot 10^{-10}$	$6,9 \cdot 10^{-11}$	$5,75 \cdot 10^{-11}$

Узагальнення результатів дослідження вмісту радіонуклідів у воді з приміщень 4-го блоку за 1991-1996 роки показує, що основний вклад у сумарну їх активність вносять ізотопи цезію. Максимальна концентрація ^{137}Cs і ^{90}Sr за даний період склала $2 \cdot 10^8$ і $1 \cdot 10^7$ Бк/л відповідно.

4.4. Гранулометричний склад ґрунту і швидкість вилугування радіонуклідів

Процеси міграції радіонуклідів аварійного викиду визначаються швидкістю їх вивільнення з гарячих частинок. Найбільш характерним забрудненням у ґрунтах Київської, Житомирської та Рівненської областей є паливні частинки розміром $(0,001-2) \cdot 10^{-4}$ м. Припускається, що вилугування радіонуклідів ґрунтовими розчинами проходить внаслідок дифузійного переміщення радіонуклідів в об'ємі частинки в напрямку поверхні [29].

Для експериментальних досліджень відбирались проби ближньої зони, в яких переважають частинки розміром біля $5 \cdot 10^{-5}$ м. Проби відбирались з жовтня 1986 р. до червня 1987 р.

Результати досліджень дозволяють прогнозувати швидкість вивільнення радіонуклідів стронцію і цезію з паливних частинок, і відповідно надходження їх у ґрунтовий поглинаючий комплекс. Так, стронцій у ґрунтах ближньої зони ЧАЕС майже повністю вивільниться протягом 50 років, а найвагоміша концентрація стронцію у ґрунтах буде протягом 5 – 10 років після аварії, що відповідає переходу у ґрунт 80 % стронцію. При віддаленні від станції і відповідно зменшенні розмірів паливних частинок при тих самих коефіцієнтах дифузії швидкість вилугування радіонуклідів зростає. Так при розмірі частинок менше 10^{-5} м основна кількість стронцію вивільниться з частинок напротязі 5 років після його надходження на поверхню ґрунту. Дифузія цезію проходить повільніше, але при зменшенні розмірів частинок перехід цезію у водорозчинні форми різко зростає. За розрахунковими даними з частинок менше $5 \cdot 10^{-5}$ м цезій переходить у ґрунт повністю протягом 5 років, менше 10^{-6} м – за рік. Експериментальні дані щодо вилугування радіонуклідів наведено у таблиці 4.20.

В дослідженнях [37, 41] відмічено відмінності у розподілі ^{137}Cs в твердій фазі різних „гранулометричних” фракцій ґрунту

РОЗДІЛ 4

(великі фракції значно збагачені частинками відмерлої рослинності) і переході радіонукліду у розчин (таблиця 4.21).

Таблиця 4.20

Ступінь вилуговування радіонуклідів з частинок у різних типах ґрунтів за 1, 5, 20 років при внутрішньо дифузійній кінетиці вилуговування (%)

Радіус частинки, 10^{-6} м	Дерново-слабокід- золистий глеюватий супісковий		Дерновий опідзолений супісковий		Торфово- болотний	
	^{137}Cs	^{90}Sr	^{137}Cs	^{90}Sr	^{137}Cs	^{90}Sr
1 рік						
1	50	97	98	100	97	100
5	20	35	40	100	35	100
10	6	20	30	97	20	97
50	2	6	9	35	6	35
100	0,0	2	3	20	2	20
5 років						
1	90	100	100	100	100	100
5	30	93	95	100	93	100
10	15	73	68	100	73	100
50	3	9	15	93	9	93
100	1,5	5	6	73	5	73
20 років						
1	100	100	100	100	100	100
5	50	97	100	100	97	100
10	30	96	98	100	96	100
50	6	19	40	97	19	97
100	3	9	19	96	9	96

Як правило, кількість ^{137}Cs , що екстрагований з різних фракцій зразків ґрунту, не відрізняється, але після „м'якого” озолення органічної речовини кількість екстрагованого цезію з більших фракцій в 1,5–3 рази вища. Ізотопне відношення

РОЗДІЛ 4

$^{144}\text{Ce}/^{137}\text{Cs}$ практично однакове для всіх фракцій, хоча питомі активності радіонуклідів у різних фракціях відрізняються.

Співставлення експериментальних даних з екстракції радіонуклідів і розрахункових даних про співвідношення конденсаційної і паливної компонент випадань для різних точок відбору показало, що зі зразків ґрунтів з близькими частками конденсаційної і паливної компонент екстраговано до 60-80 % ^{137}Cs , який випав у вигляді конденсаційної компоненти. Авторадіографія зразків ґрунтів після проведення всіх екстракцій показала наявність у зразках великої кількості паливних частинок, в тому числі надмікронного розміру.

Таблиця 4.21

Вилуговування ^{137}Cs розчином $\text{CsCl} + \text{CaCl}_2$ в залежності від „гранулометричного” складу ґрунту

№ проби	Фракція, 10^{-3} м	$\frac{^{144}\text{Ce}}{^{137}\text{Cs}}$ на 01.88	До озолення		Після озолення		Всього го, %
			число екстракцій	%	число екстракцій	%	
1	< 0,25	1,0	2	10,6	5	19,0	29,6
	0,25-0,5	0,7	2	12,8	5	15,0	26,8
2	< 0,25	0,1	2	8,6	5	8,5	17,1
	0,25-0,5	0,09	2	8,5	5	20,7	29,3
	> 1	0,15	2	7,5	5	26,8	34,3
3	< 0,25	1,1	2	11,5	5	19,3	30,8
	0,25-0,5	1,5	2	11,6	5	24,6	36,2
4	< 0,25	1,1	2	9,7	5	7,9	17,6
	0,25-0,5	1,1	2	9,5	5	11,7	21,2

Зазначимо, що з часом проходять процеси вилуговування радіонуклідів у глибину ґрунту в результаті їхнього вимивання з верхніх шарів фільтраційними потоками і дифузійними проце-

РОЗДІЛ 4

сами. Бар'єрами, що обмежують розповсюдження радіонуклідів є, в першу чергу, мінерали і породи з високою сорбційною здатністю – глини, гідрослюди, оксиди і гідрооксиди заліза. Ці хімічні процеси регулюють в основному вертикальне поширення радіоактивного забруднення ґрунту. Оскільки частинки палива можна розглядати як домішковий важкий мінерал техногенного походження, то їхню поведінку у важких аллоівіальних відкладеннях можна співставляти з поведінкою акцесорних важких мінералів. Треба відзначити, що пряму аналогію з поведінкою, наприклад, ураніту проводити не можна, так як у діоксиді урану пройшли процеси, які приводять до зменшення його механічної міцності – крихкості, газового розбухання та інше. Тому руйнування паливних частинок проходить набагато швидше, ніж ураніту.

4.5. Деструкція паливних частинок і кінетичні коефіцієнти вилугування (модельні експерименти)

Для вивчення деструкції паливних частинок і розподілу вилугуваних радіонуклідів за компонентами твердої фази ґрунту в роботі [37] використовували проби ґрунту, які відібрані у 1988-1989 роках у різних точках 30-кілометрової зони ЧАЕС. Місця відбору проб характеризуються різними ландшафтно-геохімічними умовами і різним співвідношенням паливної і конденсаційної компонент випадань, а значить різними фізико-хімічними та ядерно-фізичними характеристиками випадань. У дослідях використовувався метод багатократної послідовної екстракції проб наступними розчинами, (*моль/л*): 0,2 $CsCl$ + 0,002 $CaCl_2$; 0,2 $CsCl$ + 0,0005 $FeCl_3$; 0,2 $CsCl$ + 0,007 $NaHCO_3$ та інші.

РОЗДІЛ 4

Результати модельних експериментів з вивчення деструкції паливних частинок показують, що швидкість цього процесу суттєво залежить від фізико-хімічних властивостей ґрунту. При цьому абсолютна кількість великих частинок знижується незначно, а кількість частинок субмікронного розміру поповнюється, напевно, за рахунок руйнування частинок проміжного розміру.

Швидкість деструкції паливних частинок, матриця яких представлена оксидами урану різної стехіометрії ($UO_2 - U_3O_8$), визначається, з одного боку, їх дисперсним складом, а з другого – складом і властивостями твердої фази ґрунту і ґрунтового розчину (pH , складом і концентрацією органічних сполук, концентрацією карбонатів), механічним і мінералогічним складом твердої фази ґрунту, водним режимом. В залежності від цих факторів швидкість деструкції на різних ділянках сліду може відрізнятись в кілька разів. Відомо, що при високих значеннях pH (більше 8) і концентрації карбонат-іонів у розчині уран утворює стійкі розчинні уранілкарбонатіві комплекси [37].

Для дослідження фіксації радіонуклідів і деструкції паливних частинок у ґрунтах використовувались методи ізотопного обміну, ультрафільтрації, діаліза, авторадіографії і трекової радіографії [37, 41].

При послідовній 2-3-кратній екстракції розчином $CsCl$ з твердої фази витягалось 4-12 % ^{137}Cs , 0-2% ^{144}Ce (таблиця 4.22). Після "м'якого" спалювання (<573,15°K) органічної речовини ґрунту при багатократній екстракції розчином $CsCl + CaCl_2$ у розчин перейшло ще додатково 8-33 % ^{137}Cs і 0-2 % ^{144}Ce , при цьому ^{106}Ru не виявлено. Подальша обробка зразків розчином Тамма (розчинення оксидів заліза) ще збільшила вміст радіонуклідів у розчинах.

Сумарна кількість екстрагованих радіонуклідів при даних послідовних екстракціях у залежності від фізико-хімічних влас-

РОЗДІЛ 4

тивостей ґрунтів і співвідношення компонент випадань складає: ^{137}Cs – 30-60 %, ^{144}Ce – 0-14 %, ^{106}Ru – 0-31 %.

Наявність ^{144}Ce в ультрафільтраті ($<0,02 \cdot 10^{-6}$ м) і діалізаті свідчать про присутність радіонукліда у розчині у вигляді колоїдних частинок та іонних або молекулярних форм. Наявність невеликої кількості радіонуклідів субмікронних розмірів показали результати трекової радіографії проб ультрафільтрата ($<0,12 \cdot 10^{-6}$ м).

Таблиця 4.22

Вилуговування радіонуклідів в системі „ґрунт-паливні частинки” при послідовній екстракції різними розчинами (%)

Екстрагент	Кратність екстракції	^{144}Ce	^{137}Cs	^{106}Ru
До озолення				
CsCl	2-3	0-2	4-12	0
Після озолення				
$\text{CsCl} + \text{CaCl}_2$	7	0-2	8-33	0
Розчин Тамма	5-8	0-10	9-25	0-31
Сумарно		0-14	30-60	0-31

Зауважено відмінності в розподілі ^{137}Cs у твердій фазі різних „гранулометричних” фракцій ґрунту. Після „м'якого” озолення органічної речовини кількість екстрагованого ^{137}Cs з більших фракцій у 1,5 – 3 рази вища.

Виходячи з припущення, що ^{90}Sr рівномірно розчинений у ґратці фаз із вмістом урану, а накопичення рухливих форм радіостронцію зумовлене руйнуванням твердофазних випадань, можна вважати в першому наближенні, що швидкість накопичення радіостронцію є показником швидкості деструкції уранової матриці [117].

РОЗДІЛ 4

У таблиці 4.23 наведено оцінки кінетичних коефіцієнтів вилуговування ^{90}Sr та розрахована за цими даними ступінь деструкції частинок. Результати розрахунків прогнозують значно більше збіднення частинок радіостронцієм, ніж це спостерігається у натурних умовах. Коефіцієнти швидкості накопичення водорозчинних форм ^{137}Cs у повітряно-сухих ґрунтах знаходяться у межах $(6,3-12) \cdot 10^{-10} \text{ c}^{-1}$, коефіцієнти швидкості накопичення для ^{90}Sr – $(3,3-5,3) \cdot 10^{-9} \text{ c}^{-1}$ і не залежать від типу ґрунту [116].

Таблиця 4.23

Кінетичний коефіцієнт вилуговування та розрахований ступінь вилуговування ^{90}Sr з паливних частинок у ґрунтах

Місце відбирання проби	k, c^{-1}	Ступінь вилуговування, %	
		за 1 р.	за 6 р.
м. Чорнобиль	$1,7 \cdot 10^{-8}$	41,5	96,0
Заплава р. Прип'ять	$1,7 \cdot 10^{-9}$	5,2 – 27	27,5 – 84,9
с. Бенівка	$(1,6 – 2,0) \cdot 10^{-8}$	39,6 – 46,8	95,2 – 97,7
с. Копачі	$(4,6 – 5,6) \cdot 10^{-9}$	13,5 – 16,2	51,6 – 65,3
с. Корогород	$(1,2 – 4,2) \cdot 10^{-8}$	31,5 – 73,1	89,7 – 99,9

Результати багаторічних спостережень [121] за динамікою накопичення рухливих форм радіоцезію і радіостронцію в забруднених ґрунтах лівобережної заплави р. Прип'ять дають змогу розрахувати кінетичні коефіцієнти трансформації (вилуговування) паливних випадань (таблиця 4.24). З даних, наведених у таблиці випливає, що з часом кінетичний коефіцієнт вилуговування радіонуклідів з паливних частинок зростає.

РОЗДІЛ 4

Дослідження аварійних паливних випадань показали [116], що за 6 років після аварії вони значно трансформувалися, а кількість рухливих форм ^{90}Sr досягла 40-70 % (таблиця 4.25).

Результати спостережень за динамікою накопичення рухливих форм радіостронцію у різних типах ґрунтів наведено у таблиці 4.26 [116].

Таблиця 4.24

Кінетичний коефіцієнт вилуговування радіонуклідів з паливних випадань на території лівобережної заплави р. Прип'ять

Рік	Вміст обмінних форм, %		k, c^{-1}
	^{137}Cs	^{90}Sr	
1986	0,05 – 0,1	1 – 5	$(1,96 - 2,65) \cdot 10^{-9}$ $(1,32 - 2,60) \cdot 10^{-9}$ $(1,72 - 2,76) \cdot 10^{-9}$ $(2,28 - 4,05) \cdot 10^{-9}$ $(3,20 - 5,80) \cdot 10^{-9}$
1987	0,1 – 0,14	6 – 8	
1988	0,14 – 0,16	8 – 15	
1989	0,1 – 0,3	15 – 23	
1990	0,6 – 1,0	25 – 40	
1991	1,0 – 1,4	40 – 60	

Таблиця 4.25

Вміст рухливих форм ^{90}Sr і кінетичний коефіцієнт вилуговування з паливних випадань у ґрунтах тимчасової локалізації "Рудий ліс" (на 8.10.1992)

№ проби	Глибина відбирання проби (м)	Вміст		Кінетичний коефіцієнт вилуговування k, c^{-1}
		рухливих форм, %	$^{90}\text{Sr}, \text{Бк/г}$	
1	1,5 – 1,8	39,7	200	$1,96 \cdot 10^{-9}$
2	2,1 – 2,4	50,8	770	$2,5 \cdot 10^{-9}$
3	0,9 – 1,2	53,0	150	$2,6 \cdot 10^{-9}$
4	2,7 – 3,0	70,2	1330	$3,5 \cdot 10^{-9}$

РОЗДІЛ 4

Отримані різними авторами (див. таблиці 4.23-4.26) значення кінетичних коефіцієнтів трансформації (вилуговування) паливних частинок (k , c^{-1}) на окремих експериментальних ділянках змінюються в широких межах – від 10^{-9} до 10^{-8} c^{-1} . Тому при дослідженні швидкості розчинення паливних частинок особливу увагу слід звернути на вплив таких факторів як фізико-хімічні властивості самих частинок, тип і кислотність ґрунтів та концентрацію кисню в ґрунті.

Таблиця 4.26

Динаміка накопичення рухливих форм ^{90}Sr і кінетичний коефіцієнт вилуговування з частинок твердофазних радіоактивних випадань

Тип ґрунту	Вміст рухливих форм, %			k , c^{-1}
	1987	1988	1989	
Заплавний дерновий заболочений	53	55	59	$0,95 \cdot 10^{-9}$
Дерново-підзолистий пісковий	49	56	85	$5,7 \cdot 10^{-9}$
Меліорований торфово-болотний	34	38	48	$2,2 \cdot 10^{-9}$
Дерново-підзолистий супісковий	47	49	61	$2,2 \cdot 10^{-9}$

4.6. Вплив кислотності ґрунтів та ступеня окислення частинок на швидкість їх розчинення

Для визначення кінетики розчинення паливних частинок та впливу різних факторів на швидкість їх розчинення досліди проводились у лабораторних і природних умовах [44, 45, 47, 48]. Ці дослідження показали, що радіонукліди, які містяться в паливних частинках відзначались на початку малою міграційною

РОЗДІЛ 4

здатністю. З часом відбувалось розчинення паливних частинок і вилуговування з них радіонуклідів, про що свідчать зміни дисперсного складу паливних частинок і збільшення частки обмінного стронцію у ґрунті і як наслідок забруднення рослинності.

Для визначення факторів, які впливають на швидкість розчинення паливних частинок і отримання математичних залежностей швидкості їх розчинення від цих факторів проведено комплексні дослідження, як у модельних лабораторних експериментах, так і в природних умовах у ґрунтах [44, 45, 48]. У цих дослідженнях показано, що в реальних умовах на швидкість розчинення частинок в першу чергу впливають фізико-хімічні властивості самих частинок (ступінь окислення) і кислотність ґрунтів.

В роботі [45] на основі експериментальних даних про форми знаходження ^{90}Sr у різних природних ґрунтово-кліматичних умовах розрахована частка паливних частинок, які розчинилися. Для визначення швидкості розчинення реальних паливних частинок у 1995 році проби ґрунтів відбрано на паливних слідах викиду в 15-кілометровій зоні ЧАЕС. Проби ґрунтів відбирались так, щоб вплив фізико-хімічних властивостей самих частинок та вплив характеристик ґрунтів на швидкість розчинення частинок можна було оцінити окремо. Для всіх проб визначено агрохімічні характеристики, густину забруднення, питому активність ґрунтів, розраховано кінетичний коефіцієнт вилуговування ^{90}Sr з частинок k (с^{-1}) і швидкість розчинення v (м/с). У таблиці 4.27 наведено характеристики проб ґрунтів, для яких розраховано швидкість розчинення паливних частинок і кінетичні коефіцієнти вилуговування ^{90}Sr , а в таблиці 4.28 -- значення цих параметрів для досліджуваних проб ґрунту. В таблиці 4.27 подано наступні позначення ґрунтів: 1 – дерново-підзолистий пісковий; 2 – дерново-підзолистий супісковий; 3 – дерново-підзолистий суглинистий; 4 – дерново-оглеєний; 5 – торфовий.

РОЗДІЛ 4

В дослідях використано частинки першого викиду з реактора (в західному напрямку), що мають найменшу ступінь окислення UO_2 (точки № 1, 5-11), а також частинки, які тривалий час відпалювались під час аварії і викинені в інших напрямках (північний та південний).

Таблиця 4.27

Характеристика проб ґрунтів 15-кілометрової зони ЧАЕС,
відібраних для визначення швидкості розчинення паливних
частинок

№ точки	Тип ґрунту	pH	Питома активність ґрунту, кБк/кг		
			^{137}Cs	^{154}Eu	^{90}Sr
1	2	5,6	8,7±2,6	0,11±0,05	5,0±2,1
2	3	5,0	7,0±0,2	0,13±0,01	5,6±0,3
3	3	4,5	5,7±0,5	0,1±0,02	3,7±0,1
4	2	4,8	20,5±0,8	0,24±0,03	4,1±0,2
5	2	4,7	43±11	0,5±0,2	23±11
6	2	4,65	57±6	0,6±0,2	32±9
7	2	4,5	71±2	0,73±0,05	45±3
8	5	5,2	123±15	1,4±0,3	81±26
9	5	5,2	71±14	1,1±0,4	59±36
10	5	5,5	391±78	4,3±1,3	251±64
11	2	4,5	51±2	0,5±0,02	12±1
12	4	5,5	1,7±0,3	0,025±0,008	1,8±0,6
13	2	5,55	1,2±0,1	0,022±0,007	1,2±0,1
14	2	5,1	1,3±0,3	0,021±0,007	1,0±0,1
15	1	5,2	35,4±0,7	0,8±0,3	7,8±1,0
16	1	5,8	17±1	0,19±0,03	15,0±0,8
17	2	5,3	61±5	0,91±0,05	51±3
18	2	4,45	294±8	3,5±0,1	113±4

Аналіз отриманих даних показує, що найвагомішим фактором щодо швидкості розчинення паливних частинок у ґрунті в природних умовах є фізико-хімічні властивості частинок, а не

РОЗДІЛ 4

грунтово-кліматичні умови. Так частинки з найменшим ступенем окислення UO_2 (точки № 1, 5-11) хімічно найстійкіші незалежно від ґрунтових характеристик. Від 27 до 70 % радіостронцію знаходиться в матриці паливних частинок (на час експериментів – 1995 рік). Сильноокислені частинки, які тривалий час відпалювались під час аварії, розчинились більше при аналогічних ґрунтових умовах.

Таблиця 4.28

Кінетичні коефіцієнти вилуговування для ^{90}Sr і швидкість розчинення паливних частинок для різних типів ґрунтів

№ точки	Постійна вилуговування ^{90}Sr , $k \cdot 10^8$ (c^{-1})	Швидкість розчинення $v \cdot 10^{14}$ (m/c)
1	0,1244±0,0622	0,1886±0,0933
2	0,9019±0,2488	1,0263±0,1555
3	1,3062±0,8397	1,1818±0,1555
4	0,9330±0,2799	1,0574±0,1886
5	0,2488±0,1244	0,3421±0,1886
6	0,2799±0,0933	0,3732±0,1244
7	0,4354±0,0622	0,5598±0,0622
8	0,2488±0,1244	0,4321±0,1555
9	0,1555±0,0933	0,2177±0,1244
10	0,1244±0,0622	0,1555±0,0622
11	0,4354±0,0622	0,5598±0,0622
12	0,4354±0,1244	0,5598±0,1555
13	0,8397±0,2488	0,9952±0,1886
14	0,6220±0,1886	0,7775±0,2177
15	0,9330±0,4043	1,0574±0,2177
16	0,3732±0,0311	0,4665±0,0622
17	0,5598±0,1244	0,7464±0,1555
18	0,6842±0,0933	0,8397±0,1244

РОЗДІЛ 4

Швидкість розчинення однакових частинок (точки № 5-11) дуже залежить від pH ґрунту. Найкраще збереглися частинки у слабкокислих ґрунтах ($pH > 5,2$) на західному сліді, зокрема, в торфових ґрунтах з $pH = 5,2-5,5$ (точки № 9, 10) і дерново-підзолистих супіскових з $pH = 5,6$ (точка № 1).

На основі проведених досліджень отримано емпіричні залежності швидкості розчинення v паливних частинок від кислотності ґрунту для:

слабкоокислених частинок – $v = 1,1 \cdot 10^{-12} \cdot 10^{-0,508 pH}$ м/с ;

сильноокислених частинок – $v = 1,03 \cdot 10^{-13} \cdot 10^{-0,216 pH}$ м/с.

Обидві залежності достатньо добре описують швидкість розчинення частинок для різних ґрунтів, які є типовими для зони відчуження, при $4 < pH < 6$. Це дозволяє робити прогнози динаміки розчинення паливних частинок і, відповідно, забруднення рослинності.

Для уточнення залежності швидкості розчинення від кислотності ґрунтів і ступеня окислення паливних частинок роботи було продовжено. Для цього поставлено серію модельних експериментів і дослідів у природних умовах [44, 48].

Для серії модельних експериментів [48] з визначення швидкості розчинення паливних частинок у лабораторних умовах створено різні зразки, які аналогічні першому викиду при аварії на ЧАЕС (невідпалені, механічно зруйновані) та відпалені на повітрі при температурі 670° К протягом 1, 3, 5, 7, 13 і 21 годин. Для дослідів використано розчини різної кислотності. Проведено 10 циклів розчинення зразків. Експеримент тривав 342 доби.

Після закінчення експерименту радіохімічним методом визначали активність ^{90}Sr , яка залишилася. В межах похибки вимірювань для всіх радіонуклідів активність, яка залишилася, відповідала зменшенню активності паливних частинок за рахунок їх розчинення. Відсутніх відмінностей у процесі переходу

РОЗДІЛ 4

різних радіонуклідів (^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{154}Eu , ^{90}Sr) з частинок у розчин у ході експерименту не встановлено. Це свідчить про хімічне розчинення матриці паливної частинки і відсутність комплексоутворення радіонуклідів. Тому всі розрахунки постійних трансформації проводились для ^{137}Cs , вимірювання активності якого мали найменшу похибку (~ 5%).

На основі експериментальних даних розраховано постійні трансформації (кінетичний коефіцієнт вилуговування) паливних частинок k (с^{-1}) для різних розчинів. Дані наведено у таблиці 4.29.

Таблиця 4.29

Динаміка переходу радіонуклідів із матриці паливних частинок (ПЧ) опроміненого чорнобильського ядерного палива різного ступеня окислення у розчині різної кислотності

Час від-па-лу ПЧ, год	pH роз-чину	Частка активності радіонуклідів (%), які перейшли з матриці ПЧ в розчин після контакту на протязі часу, доби								$k \cdot 10^8$ (с^{-1})
		1,04	8	24	42	100	182	281	342	
1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
0	3	1,25	6,3	15,7	22	27	31	32	33	1,87±0,311
	4	0,16	0,19	0,53	0,73	1,53	2,8	4,6	5,7	0,19±0,003
	5	0,12	0,19	0,25	0,29	0,41	0,75	1,40	1,65	0,06±0,003
	6,9	0,1	0,12	0,15	0,17	0,20	0,47	0,89	1,20	0,04±0,003
	9,2	0,11	0,29	0,96	1,25	1,95	3,7	4,8	5,8	0,2±0,003
1	3	2,4	9,7	16,8	24	43	60	67	71	4,66±0,311
	4	0,58	1,37	2,4	4,6	14,1	29	40	46	2,05±0,062
	5	0,53	1,25	2,3	3,2	6,7	11,7	15,4	16,8	0,68±0,031
	6,9	0,66	1,25	2,1	2,9	4,9	7,7	9,3	11,0	0,43±0,031
	9,2	0,37	0,92	2,7	4,9	14	24	30	34	1,46±0,062

РОЗДІЛ 4

Продовження таблиці 4.29

1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
3	3	3,2	19,4	29	34	51	69	76	78	5,91±0,933
	4	0,44	1,22	3,7	8,1	18,8	32	42	50	1,27±0,062
	5	0,46	1,16	2,5	3,5	8,1	14,6	17,4	18,4	0,68±0,031
	6,9	0,64	1,22	2,0	2,8	5,4	9,0	10,6	11,7	0,47±0,031
	9,2	0,39	0,84	2,7	4,6	11,0	19,6	24	29	1,15±0,031
5	3	2,1	10,2	19,4	30	53	72	80	83	6,84±0,622
	4	0,49	1,74	3,9	7,9	19,3	35	48	55	2,61±0,062
	5	0,41	1,12	2,6	3,9	8,7	15,7	21	23	0,93±0,031
	6,9	0,36	1,12	2,3	3,5	7,4	11,7	14,2	16,4	0,65±0,031
	9,2	0,34	1,01	3,1	5,8	15,1	27,0	33,9	40	1,71±0,031
7	3	2,2	10,2	19,9	30	54	73	81	85	7,15±0,311
	4	0,35	1,68	3,5	6,2	14,8	35	50	58	2,74±0,155
	5	0,46	1,35	3,0	4,6	9,3	16,0	18,4	20,8	0,87±0,062
	6,9	0,51	1,29	2,3	3,5	6,6	10,2	12,0	13,7	0,56±0,031
	9,2	0,31	0,94	2,9	5,2	13	24	31	37	1,59±0,031
13	3	2,6	10,7	21	32	56	75	82	86	7,15±0,622
	4	0,78	3,1	6,0	10,9	22	26	40	43	2,06±0,093
	5	0,69	1,44	2,8	4,2	9,3	16,7	23	27	1,06±0,031
	6,9	0,64	1,28	2,2	3,3	7,2	12,2	16,1	19,2	0,75±0,031
	9,2	0,46	0,95	3,1	6,3	16,1	28	34	40	1,8±0,062
21	3	3,6	14,7	24	33	56	71	77	80	6,22±0,933
	4	0,69	3,6	5,5	10,6	22	40	53	62	3,08±0,062
	5	0,79	1,93	3,4	4,8	9,6	16,6	21	23	0,96±0,031
	6,9	0,80	1,67	2,5	3,6	6,9	11,7	14,9	16,0	0,65±0,031
	9,2	0,54	1,43	3,9	7,0	17,5	30	37	43	1,93±0,062

Найменшу швидкість розчинення мають невідпалені частинки механічно зруйнованого ядерного палива. За 342 доби з цих частинок в розчині ($pH = 5-7$) перейшло не більше 2% активності, при $pH = 4$ і 9 – біля 5%. Тільки для кислого середо-

РОЗДІЛ 4

вища з $pH = 3$ (нетипове для оточуючого середовища) персхід радіонуклідів склав біля 30%.

Відпалювані різний час (1 – 21 год.) на повітрі частинки при температурі 670° К розчинились значно більше, ніж невідпалені паливні частинки. Постійні їх трансформації у 3-10 разів вищі. Так, навіть для нейтрального середовища при $pH = 7$ за 342 доби перейшло у розчин більше 10% активності, а при $pH = 3$ основна частка частинок розчинилася, і тільки 20% активності залишилось у складі паливної частинки. При цьому час вихідного відпалу на повітрі незначно впливає на швидкість розчинення частинок.

Швидкість розчинення всіх типів паливних частинок (відпалених і невідпалених) в перший місяць розчинення у розчинах різної кислотності вища, ніж у наступні місяці. Розчинення паливних частинок на різних дефектах структури іде швидше, ніж з глибинних стійкіших шарів.

Тому для опису кінетики розчинення паливних частинок в найбільш кислих середовищах ($pH = 3$) отримано функцію вигляду [48]

$$\Delta FP = c \cdot \exp(-k_1 t) + (100 - c) \cdot \exp(-k_2 t), \quad (4.2)$$

де ΔFP – масова частка паливних частинок, що не розчинилися на момент часу t , від початку розчинення; k_1 , k_2 – кінетичні коефіцієнти вилуговування при швидкій і повільній трансформації відповідно; c – частка активності, що відповідає швидкій трансформації.

У розчинах кислотності $pH = 3$ для механічно зруйнованих неокислених паливних частинок $k_1 = (59,09 \pm 3,11) \cdot 10^{-8} \text{ c}^{-1}$ і $k_2 = (0,3421 \pm 0,0311) \cdot 10^{-8} \text{ c}^{-1}$, а $c = 26 \pm 1\%$. Для частинок, які відпалювались на повітрі при температурі 670° К протягом 1–21

РОЗДІЛ 4

години – $k_1 = (15,55 \pm 6,22) \cdot 10^{-8} \text{ c}^{-1}$ і $k_2 = (2,177 \pm 0,622) \cdot 10^{-8} \text{ c}^{-1}$, а $c = 70 \pm 20 \%$.

Таким чином, результати досліджень кінетики розчинення чорнобильських паливних частинок у модельних експериментах показують, що найважливіший фактор, що впливає на швидкість розчинення паливних частинок, є їх ступінь окислення. При окисленні поверхня частинок розтріскується, що приводить до збільшення їх реальної поверхні і, як наслідок, збільшення швидкості розчинення у розчинах. Окислені при температурі 670°K частинки на повітрі протягом 1–21 години мають на порядок вищі значення коефіцієнтів трансформації у розчинах кислотності $pH = 4-9$ у порівнянні з неокисленими частинками, отриманими при їх механічному руйнуванні. Мінімальна швидкість розчинення обох типів частинок спостерігається у нейтральному середовищі. У кислому і лужному середовищах швидкість розчинення паливних частинок збільшується.

Наприклад, вапнування кислих ґрунтів зменшує не тільки перехід радіонуклідів у рослини, але й за рахунок зменшення кислотності ґрунтового розчину сповільнює процес розчинення паливних частинок, а також локалізує радіонукліди у недоступних для рослин і міграції формі [48].

4.7. Оцінка швидкості розчинення паливних частинок у природних умовах

Для оцінки швидкості розчинення паливних частинок і переходу радіонуклідів у мобільні форми, а також факторів, які найбільше впливають на ці процеси у природних умовах, проведено дослідження в 50-кілометровій зоні ЧАЕС [44] на основі методу, який базується на порівнянні вмісту у ґрунті чорнобильського ^{90}Sr і внесеного у ґрунт у водорозчинній формі ^{85}Sr .

РОЗДІЛ 4

Для визначення швидкості розчинення реальних чорнобильських паливних частинок у природних умовах у 1995 – 1997 роках проведено відбір проб ґрунту на паливних слідах викиду. Для оцінки впливу властивостей середовища на швидкість розчинення однотипних частинок (з ділянок, де властивості частинок однакові) відбір проб ґрунту проводили у різних точках з відмінними ґрунтовими характеристиками (тип ґрунту, кислотність) і різними ландшафтними умовами (ліс, луг, сільськогосподарські угіддя).

Аналіз отриманих даних про частку активності радіостронцію у паливних частинках підтверджує попередні результати. Найважливішими факторами, що впливають на швидкість розчинення паливних частинок є кислотність ґрунтів і фізико-хімічні властивості самих частинок (ступінь окислення). Найкраще частинки зберігаються у нейтральних ґрунтах незалежно від напрямку і відстані від ЧАЕС. Так, навіть на відстані більше 30 км від ЧАЕС на південь в окультурених нейтральних ґрунтах (pH біля 7), що використовуються у сільськогосподарському виробництві після аварії основна частка радіостронцію знаходиться в необмінній формі у складі паливних частинок (біля 50-70 %). Тип ґрунту безпосередньо не впливає на швидкість розчинення частинок. Так, при однаковій кислотності торфового і дерново-підзолистого ґрунтів вміст радіостронцію в паливних частинках на момент вимірювання однаковий. Режим зволоження ґрунту також значного впливу на швидкість розчинення частинок не має. Аналогічні результати з відсутності впливу вологості ґрунтів на швидкість розчинення отримано і в модельних експериментах. При однаковій кислотності ґрунту не спостерігається вплив ландшафтних умов (луг, ліс, нива) на швидкість розчинення частинок.

На основі експериментальних даних отримано значення коефіцієнтів трансформації k для фіксованого дисперсного складу паливних частинок, які випали у ближній зоні аварії (20 км – 50 км). Проведені дослідження [44, 45, 48] на великій

РОЗДІЛ 4

кількості статистичного матеріалу в ближній зоні не підтверджують значного впливу відстані (розміру паливних частинок) на швидкість їх розчинення при однаковій кислотності ґрунту. Тому для опису динаміки розчинення паливних частинок у ближній зоні для коефіцієнтів трансформації без врахування реального дисперсного складу правомірні залежності:

сильноокислені частинки (південний та північний сліди)

$$k = 1,26 \cdot 10^{-6} \cdot 10^{-0,45pH} \text{ c}^{-1} \text{ при } pH < 6,5 \text{ і}$$

$$k = 1,585 \cdot 10^{-9} \text{ c}^{-1} \text{ при } 6,5 < pH < 7,5;$$

слабкоокислені частинки (західний слід)

$$k = 1,9 \cdot 10^{-8} \cdot 10^{-0,15pH} \text{ c}^{-1} \text{ при } pH < 7,0 \text{ і}$$

$$k = 1,585 \cdot 10^{-9} \text{ c}^{-1} \text{ при } 7,0 < pH < 7,5.$$

Наприклад, на Поліссі карбонатних ґрунтів майже немає. Типові ґрунти Полісся характеризуються слабкокислою реакцією ґрунтового розчину з малим для дерново-підзолистих або високим для органогенних ґрунтів вмістом органічних речовин. Тому великі значення швидкості розчинення паливних частинок вказаного складу на територіях, забруднених паливною компонентою, можна очікувати при контакті частинок з водами р. Прип'ять ($pH = 7,5-8,4$, концентрація бікарбонат-іонів $120-220 \text{ мг/л}$) або при внесенні великих доз вапна у забруднені ґрунти. У випадку внесення у ґрунти великих доз вапна можуть скластися умови, які приведуть до розчинення оксидів урану і вилуговування радіонуклідів з матриць частинок. Це підтверджується результатами модельних експериментів з вивчення поведінки радіонуклідів у системі „ґрунт-паливні частинки-ґрунтовий розчин” [41].

Зазначимо, що зі зменшенням відстані від джерела викиду вклад неокислених частинок зростає. Так, наприклад, на відстані біля 1 км від ЧАЕС на осі західного викиду в могильнику “Ру-

РОЗДІЛ 4

дий ліс” частка обмінного ^{90}Sr після 12 років після аварії складе 20-40 %. Кислотність ґрунтової води, яка підтоплює могильник, $pH = 4,85$. Ґрунт у тілі могильника дерново-підзолистий пісковий з $pH = 5,5 \pm 0,3$. Для даного типу ґрунту при повному розчиненні паливних частинок доля обмінного стронцію повинна становити 80-90 %. Це означає, що через 12 років після аварії тільки 20-50 % активності стронцію перейшло з матриці у ґрунт і може приймати участь у міграційних процесах. Таким чином, коефіцієнт трансформації (кінетичний коефіцієнт вилуговування) паливних частинок у могильнику складе $k = (0,062 - 0,187) \cdot 10^{-8} \text{ c}^{-1}$ і відповідає коефіцієнтам трансформації частинок механічно зруйнованого ядерного палива у модельних експериментах при аналогічних кислотностях розчинів [48].

На основі отриманих значень коефіцієнтів трансформації паливних частинок у тілі могильника “Рудий ліс” розраховано, що максимальну концентрацію радіостронцій у мобільній формі досягне тільки через 20 – 40 років після аварії. За рахунок співвимірності коефіцієнту трансформації k і постійної радіоактивного розпаду λ ^{90}Sr ($\lambda = 0,072 \cdot 10^{-8} \text{ c}^{-1}$) його концентрація у мобільній формі протягом тривалого часу буде триматися на високому рівні і буде мало змінюватися з часом. Аналогічно буде змінюватися забруднення стронцієм ґрунтових вод і рослинності.

Кислотність вод об’єкту “Укриття” складе $pH = 8-10$, що збільшує швидкість розчинення паливних частинок у порівнянні з нейтральними середовищами. Впливаючи на кислотність цих вод, можна суттєво зменшити швидкість розчинення частинок і сповільнити міграцію радіонуклідів з об’єкту “Укриття”.

РОЗДІЛ 5

ПРОЦЕСИ АДСОРБЦІЇ
РАДІОНУКЛІДІВ

5.1. Коефіцієнт розподілу

Одною з основних характеристик ґрунтів, що впливають на міграцію радіонуклідів є їх адсорбційна здатність.

Іони, які містяться у ґрунті можна розділити на дві групи: іони, що знаходяться у поровому розчині, і ті, які зв'язані з твердою фазою ґрунту. Відношення рівноважної концентрації радіонуклідів у твердій фазі до їхньої концентрації у поровому розчині характеризується коефіцієнтом розподілу K_p [116]

$$K_p = \frac{A_{mc}}{A_p} \cdot \frac{W}{\gamma}, \quad (5.1)$$

де A_{mc} – активність радіонукліду у твердій фазі ґрунту (Бк); A_p – його активність у розчині (Бк); W – вологість ґрунту, яка визначається виразом

$$W = \gamma V / d,$$

де γ – густина розчину ($\text{кг}/\text{м}^3$); V – об'єм розчину (м^3); d – вага сухого ґрунту (кг).

Визначення K_p для різних типів ґрунтів і радіонуклідів наведено у працях [10, 50-52, 54, 75, 84, 87].

РОЗДІЛ 5

Так, Прохоров В.М. [84] проводив визначення і дослідження K_p стронцію у чорноземах, каштанових, дерново-підзолистих, підзолистих, солончаках та інших ґрунтах. Методика визначення K_p полягала у наступному. До сухого ґрунту масою d додають розчин радіонукліду з питомою активністю A_0 в такій кількості за об'ємом V , щоб ґрунт мав задану вологість W . Суміш перемішують, витримують у герметичній ємності 20 діб (для досягнення стану рівноваги відносно процесу сорбції-адсорбції). Потім, центрифугуючи, витискають ґрунтовий розчин і вимірюють питому активність A_1 розчину. Коефіцієнт розподілу K_p визначають за формулою:

$$K_p = \left(\frac{A_0}{A_1} - 1 \right) \cdot \frac{W}{\gamma},$$

де A_0 – початкова питома активність; A_1 – питома активність розчину.

Для більшості типів ґрунтів K_p стронцію знаходиться в межах $(0,3-30) \cdot 10^{-3} \text{ м}^3/\text{кг}$. Найчастіше зустрічаються значення $(3-10) \cdot 10^{-3} \text{ м}^3/\text{кг}$. Це набагато менші значення, ніж K_p стронцію для суспензій, де він сягає значень $1 \text{ м}^3/\text{кг}$ і більше.

5.2. Ефективний та обмінний коефіцієнти розподілу радіонуклідів у різних типах ґрунтів

Розподіл радіонуклідів у системі „ґрунт-вода” може змінюватися з часом внаслідок зміни складу водної фази, яка в свою чергу змінює положення рівноваги відносно процесу сорбції-десорбції [50, 52].

Інші методи оцінки коефіцієнтів розподілу радіонуклідів (^{90}Sr і ^{137}Cs) у системі „ґрунт-вода” пропонують у працях [51,

РОЗДІЛ 5

52, 54], де автори вводять поняття ефективного і істинного (обмінного) коефіцієнту розподілу.

Ефективний коефіцієнт розподілу K_p^{ef} у системі „грунт (донні відклади)-вода” приймається рівним відношенню його концентрації у твердій фазі ґрунту $[A]_{ms}$ (Бк/кг) і у розчині $[A]_p$ (Бк/м³), які вважаються пропорційними до відповідних активностей A_{ms} і A_p (Бк), а сам коефіцієнт знаходять за формулою

$$K_p^{ef} = \frac{[A]_{ms}}{[A]_p} = \frac{A_{ms}}{A_p} \cdot \frac{V}{m}, \quad (5.2)$$

де V – об'єм рідкої фази (м³); m – маса твердої фази (кг).

При визначенні коефіцієнту розподілу необхідно враховувати, що у рівновазі з розчиненим радіонуклідом перебувають тільки його обмінні форми. Тому доцільно ввести поняття істинного (обмінного) коефіцієнту розподілу:

$$K_p^{об} = \frac{A_m}{A_p} \cdot \frac{V}{m}, \quad (5.3)$$

де A_m – активність обмінних форм радіонукліду.

Зі співвідношень (5.2), (5.3) отримуємо рівність

$$K_p^{ef} = K_p^{об} + \frac{(A_{ms} - A_m)}{A_m} \cdot \frac{A_m}{A_p} \cdot \frac{V}{m}, \quad (5.4)$$

яка може бути корисною при інтерпретації експериментальних даних.

Авторами роботи [75] проводились дослідження з визначення коефіцієнту розподілу для ґрунтів Білоруського Полісся на різних глибинах: 0-0,05 м, 0,05-0,1 м і 0,1-0,15 м. Результати

РОЗДІЛ 5

досліджень наведено у таблиці 5.1. Об'єктами вивчення були зразки необроблюваних ґрунтів, які відібрано у 1994-1995 роках.

Таблиця 5.1

Активність радіонуклідів A_{me} у ґрунтових залишках, A_p у порових розчинах, коефіцієнти розподілу між твердою і рідкою фазами ґрунтів K_p для ґрунтів Білоруського Полісся

Репер	Глибина шару, $10^{-2} м$	A_{me} , Бк/кг	A_p , Бк/м ³	K_p , $10^{-3} м^3/кг$
1	2	3	4	5
¹³⁷ Cs				
Т-1	0-5	332000	90100	3640±730
Т-1	5-10	25300	9470	2670±520
Т-1	10-15	5950	9990	600±140
Д-2	0-5	33100	8510	3890±570
Д-2	5-10	1620	1700	950±190
Д-2	10-15	612	960	640±140
Т-4	0-5	8590	4810	1790±380
Т-4	5-10	90,5	6050	15±3
Т-4	10-15	23,4	6661	4±1
ДП-5	0-5	44000	32600	1350±320
ДП-5	5-10	1050	9660	110±20
ДП-5	10-15	52,4	1440	36±10
Т-7	0-5	1280	1040	1230±200
ДП-7	0-5	964	1910	500±90
Т-11	0-5	26800	6060	4420±780
⁹⁰ Sr				
Т-1	0-5	11100	121000	90±10
Т-1	5-10	1850	11100	170±30
Т-1	10-15	477	3260	150±40
Д-2	0-5	2960	58200	50±10
Д-2	5-10	1120	89200	13±2

РОЗДІЛ 5

Продовження таблиці 5.1

1	2	3	4	5
Д-2	10-15	253	16700	15±4
ДП-5	0-5	1130	27700	41±8
ДП-5	5-10	99,3	29100	3±1
ДП-5	10-15	60,6	17000	4±1
$^{239,240}Pu$				
Т-1	0-5	142	720	197±20
Т-1	5-10	1,44	24	60±9
Т-1	10-15	0,71	9	79±20
Д-2	0-5	65,0	160	406±61
Д-2	5-10	3,45	41	84±13
Д-2	10-15	1,41	19	74±15
ДП-5	0-5	75,3	460	165±17
ДП-5	5-10	2,47	15	165±25
ДП-5	10-15	0,29	8	36±9
^{241}Am				
Т-1	0-5	155	1210	128±18
Т-1	5-10	6,28	52	121±21
Т-1	10-15	1,62	18	90±14
Д-2	0-5	102	550	185±28
Д-2	5-10	14,1	200	70±12
Д-2	10-15	3,77	50	75±17
ДП-5	0-5	76,6	980	78±11
ДП-5	5-10	4,44	80	56±10
ДП-5	10-15	0,87	31	28±6

Репери Т-1, Д-2, Т-4 і ДП-5 характеризують ближню зону (20 – 50 км від ЧАЕС), а репери Т-7, ДП-7, Т-11 – дальню зону ЧАЕС.

Т-1 (20 км, ґрунт торфово-глеєвий), Д-2 (20 км, ґрунт алювіальний дерновий), Т-4 (46 км, ґрунт торфовий), ДП-5 (20 км, ґрунт дерново-підзолистий пісковий), Т-7 (218 км, ґрунт торфово-глеєвий) та ДП-7 (218 км, ґрунт дерново-підзолистий пісковий) типові для долини р. При-п'ять, а Т-11 (260 км, ґрунт торфово-глеєвий) – для заболочених діл-нок долини р. Сож.

РОЗДІЛ 5

З наведених даних випливає, що коефіцієнти розподілу стронцію значно (на два порядки) менші, ніж у цезію. Коефіцієнти розподілу америцію співвимірні або менші (не більш ніж у три рази) відповідним коефіцієнтам плутонію.

Для кожного радіонукліду можна записати ряд зменшення інтенсивності переходу його в поровий розчин у залежності від типу ґрунту. Так, для ^{90}Sr маємо наступний ряд типів ґрунтів:

дерново-підзолисті → *дернові* → *торфово-глеєві*.

Значення коефіцієнту розподілу у приповерхневих шарах приймають відповідно значення: $(41 - 50 - 90) \cdot 10^{-3} \text{ м}^3/\text{кг}$.

Для ^{137}Cs ряд типів ґрунтів по зменшенню інтенсивності переходу його у поровий розчин має вигляд:

дерново-підзолисті → *торфові* → *торфово-глеєві*

При цьому для ^{137}Cs найменші значення коефіцієнту розподілу $K_p - (500-1350) \cdot 10^{-3} \text{ м}^3/\text{кг}$ приймає для дерново-підзолистих ґрунтів, тоді як для торфово-глеєвих ґрунтів приймає найбільші значення $(3640-4300) \cdot 10^{-3} \text{ м}^3/\text{кг}$.

Зменшення коефіцієнтів розподілу за профілями ґрунтів свідчить про збільшення інтенсивності потрапляння радіонуклідів у ґрунтові розчини з глибиною. Для всіх типів ґрунтів інтенсивність потрапляння ^{137}Cs , $^{239,240}\text{Pu}$, ^{241}Am у порові розчини зростає з глибиною. Для ^{90}Sr такі зміни залежать від типу ґрунту: у мінеральних ґрунтах інтенсивність потрапляння його у порові розчини зростає, а в органічних торфово-глеєвих – спадає.

З отриманих даних випливає, що, як правило, сорбційна здатність твердої фази ґрунтів по відношенню до ^{137}Cs набагато вища, ніж щодо ^{90}Sr , а по відношенню до $^{239,240}\text{Pu}$ – вища, ніж щодо ^{241}Am . В результаті стронцій у ґрунтові розчини поступає набагато інтенсивніше, ніж цезій, а америцій – інтенсивніше, ніж плутоній. Це приводить до високої мобільності і біологічної

РОЗДІЛ 5

доступності ^{90}Sr порівняно зі ^{137}Cs та ^{241}Am порівняно з $^{239,240}\text{Pu}$.

Дослідження коефіцієнту розподілу стронцію і цезію у різних типах ґрунтів показали, що K_p для ^{90}Sr між ґрунтом і водною фазою нижчий, ніж для ^{137}Cs і менше залежить від кількості органічної речовини у ґрунті. Для стронцію виявлено значно більшу залежність коефіцієнту розподілу від мінерального складу ґрунтів. При переході від мінералів групи каоліна до мінералів групи монтморилоніту K_p для ^{90}Sr зростає від 0,18 до 1,71 $\text{м}^3/\text{кг}$ [114]. Коефіцієнти розподілу K_p для ^{137}Cs між гумусом і водним розчином становлять 10 $\text{м}^3/\text{кг}$. Для каолініту в міжпакетних шарах і каналах слоудистих мінералів і цеолітів коефіцієнт розподілу для ^{137}Cs змінюється від 0,25 до 0,40 $\text{м}^3/\text{кг}$. У поверхневих шарах мінералів монтморилонітової групи і гідрослюд $K_p = (0,80 - 1,60) \text{м}^3/\text{кг}$.

5.3. Коефіцієнт селективності

Оскільки ^{90}Sr і ^{137}Cs знаходяться в розчині головним чином у катіонній формі, то їх обмінна сорбція проходить за механізмом катіонного обміну. Сорбційно-десорбційна рівновага катіонів радіонукліду R з катіонами M такого ж заряду характеризують коефіцієнтом селективності [51]:

$$K_c^{ef}(R/M) = \frac{[R]_{об}[M]_e}{[R]_e[M]_{об}}, \quad (5.5)$$

де $[R]_{об}$, $[M]_{об}$ ($\text{Бк}/\text{кг}$) – концентрація обмінних форм радіонуклідів і конкуруючого катіона у твердій фазі, $[R]_e$, $[M]_e$ – їх концентрація у водній витяжці ($\text{Бк}/\text{м}^3$).

Коефіцієнт селективності можна виміряти методом послідовних екстракцій, при якому у водній витяжці визначають

РОЗДІЛ 5

концентрації радіонукліду і конкуруючого іона, у солевій – вміст обмінної форми радіонукліду і конкуруючих іонів у твердій фазі. Безрозмірний коефіцієнт селективності зв'язаний з коефіцієнтом розподілу обмінної форми радіонукліду K_p^{ob} (M^3/kg) наступним чином:

$$K_p^{ob} = K_c^{ef}(R/M)K_p^{ob}(M), \quad (5.6)$$

де $K_p^{ob}(M)$ – обмінний коефіцієнт розподілу конкуруючого катіона M .

Визначений співвідношенням (5.5) коефіцієнт $K_c^{ef}(R/M)$ радіонукліду по відношенню до катіону аналогу M може служити основою для визначення обмінного коефіцієнту розподілу радіонукліду.

Для більшості типів ґрунтів і донних відкладень у випадку стронцію обмінним іоном є Ca^{2+} , а для цезію в залежності від умов може бути або K^+ , або NH_4^+ (амоній). Амоній домінує у відновлюючих умовах донних відкладень, торфово-болотних і органічних лісових ґрунтах.

Для ^{90}Sr , який сорбується ґрунтом неселективно, коефіцієнт селективності обміну катіонів стронцію і кальцію $K_c^{ef}(Sr/Ca)$ у більшості випадків змінюється від 1 до 2 (таблиця 5.2). Гумінові кислоти та органічні речовини краще адсорбують катіони стронцію. Мінерали також переважно адсорбують катіони стронцію. Є тенденція до зменшення ефективного коефіцієнту селективності обміну катіонів стронцію і кальцію при збільшенні кількості адсорбованого стронцію.

Значення ефективного коефіцієнту обміну катіонів цезію і калію для різних типів ґрунтів 30-кілометрової зони представлено у таблиці 5.3.

РОЗДІЛ 5

Таблиця 5.2

Ефективний коефіцієнт селективності обміну катіонів стронцію і кальцію в суспензіях ґрунтів 30-кілометрової зони ЧАЕС і Брянської області

Тип ґрунту	Місце відбору	Шар, 10^{-2} м	$K_c^{ef} (Sr/Ca)$
Дерново-підзолистий старозораний легкосуглинистий	м. Чернобиль	0-0,5	1,0±0,1
		1-2	1,1±0,1
		2-4	1,6±0,2
		4-6	1,8±0,1
		6-10	1,5±0,4
Алювіально-дерновий кислий супісковий ділянка 1	Лівобережна заплава р. Припять	0-2	1,7±0,4
		2-4	1,7±0,3
		0-5	1,0±0,1
		5-10	1,0±0,3
Дерново-підзолистий старозораний супісковий	с. Корогород	0-0,5	1,1±0,1
		0-1	1,2±0,4
		1-2	1,0±0,1
Алювіальний дерновий кислий легкосуглинистий	с. Рудня Іллінецька	0-0,5	0,6
Дерново-середньопідзолистий легкосуглинистий	с. Кливини	0-0,5	0,7
		0-5	0,9±0,3
		5-11	0,8±0,2
Торфово-болотний	Брянська обл.	0-2	1,6±0,1
		11-17	0,9±0,1
		17-22	0,7±0,1
		22-27	1,0±0,1
Дерново-підзолистий глесвий	Брянська обл.	2-4	1,9±0,4
		4-6	1,8±0,6
		8-10	1,4±0,3
Дерново-підзолистий старозораний супісковий	Брянська обл.	0-2	1,9

РОЗДІЛ 5

Таблиця 5.3

Ефективний коефіцієнт селективності обміну катіонів цезію і калію в суспензіях ґрунтів 30- кілометрової зони ЧАЕС і Брянської області

Тип ґрунту	Місце відбору	Шар, $10^{-2} м$	$K_c^{ef} (Cs/K)$
1	2	3	4
<i>Ґрунт зі вмістом органічних речовин менше 20%</i>			
Алювіальний дерновий кислий легкосуглинстий	с. Рудня Іллінецька	0-0,5	7±4
Дерново-підзолистий супісковий	с.Стара Рудня	0-0,5	14,6±0,4
Дерновий алювіальний легкосуглинстий	с. Беневка	0-0,5	17±7
Дерново-середньопідзолистий легкосуглинстий	с.Кливини	0-0,5	5,0±0,5
Дерново-підзолистий старозораний супісковий	с.Корогород	0-0,5	8±3
Поверхнево-підзолистий супісковий	с.Копачі	0-0,5	13±3
Дерново-підзолистий старозораний легкосуглинстий	м.Чорнобиль	0-0,5 0-1	6±4 9±3
Алювіально-дерновий кислий супісковий	Лівобережна заплава р. Припять	0-5 0-5	7±2 8±2
Дерновий старозораний супісковий	Брянська область	0-2	11
Дерново-підзолистий старозораний супісковий	Брянська область	0-2	12
Дерново-підзолистий супісковий	Брянська область	0-4	13±2

РОЗДІЛ 5

Продовження таблиці 5.3

1	2	3	4
<i>Грунт зі вмістом органічних речовин 40-60%</i>			
ТорфOVO-болотний	Брянська область	0-5	4,6±0,8
		5-11	4±2
		11-17	3±2
		17-22	6±4
Дерново-підзолистий глеєвий легкосуглинистий	Брянська область	0-1	3,1
		1-2	3,5
		2-4	3,8
		4-6	3,9
		6-8	3,5
		8-10	4,2
<i>Грунт зі вмістом органічних речовин більше 90 %</i>			
ТорфOVO-болотний	оз. Девок, Великобританія	0-4	1,1
		4-8	1,6
		8-12	1,2
		12-16	0,9
		16-20	1,9

Ефективний коефіцієнт селективності обміну для пари катіонів цезій-калій для більшості типів ґрунтів і відкладень суттєво більший за одиницю і змінюється за даними [51] від 2 до 20 (таблиця 5.3). Причиною цього є наявність різних сорбційних центрів у ґрунтах для катіонів цезію. На поверхні мінералів ^{137}Cs сорбується неселективно. В міжпакетному просторі є так звані селективні клиноподібні центри, які знаходяться в області частин міжпакетних просторів кристалічної ґратки, що розширюються з наближенням до поверхні. Діаметр катіонів в гідратованому стані більший, ніж розміри клиноподібних країв міжпакетних блоків. Але іони з малою енергією гідратації, до яких належать K^+ , Rb^+ , NH_4^+ , а особливо Cs^+ , легко втрачають гідратаційну воду і проникають в міжпакетні простори кристалічної ґратки мінералів, де сорбуються на надшарикових від'ємних зарядах. Внаслідок високої селективності клиноподібних сорбційних центрів майже весь ^{137}Cs сорбується у

РОЗДІЛ 5

грунтах і донних відкладеннях селективно. В той же час іони з високою енергією гідратації (Ca^{2+} , Mg^{2+} , Sr^{2+}), які оточені великою гідратійною оболонкою, нездатні проникати до клиноподібних центрів і сорбуються тільки на поверхні мінералів.

Середній коефіцієнт ефективної селективності обміну цезій-калій для мінерального ґрунту складає 9 ± 4 . У ґрунтах з вмістом органічних речовин більше 90 % коефіцієнт ефективної селективності для цезію складає $1,4 \pm 0,5$, що свідчить про переважання неселективної адсорбції цезію в цих ґрунтах.

В загальному випадку для оцінки обмінного коефіцієнта розподілу ефективний коефіцієнт селективності обміну для пари стронцій-кальцій можна вважати рівним одиниці, а для пари цезій-калій – біля 7.

Другий метод визначення коефіцієнту розподілу цезію ґрунтується на використанні його властивості до селективної сорбції [51]. Базуючись на рівнянні іонообмінної рівноваги для сорбції цезію на клиноподібних центрах сорбції у присутності конкуруючого іону M^+ , можна отримати вираз, який зв'язує обмінний коефіцієнт розподілу цезію з ємністю клиноподібних центрів ($[FES]$, мг-екв/кг) і концентрацією M^+ в розчині:

$$K_p^{ob} = \frac{K_c^{FES} (C_s / M) [FES]}{[M^+]_s}, \quad (5.7)$$

або

$$K_p^{ob} \cdot [M^+]_s = K_c^{FES} (C_s / M) [FES] \cong RIP^{ob}(M), \quad (5.8)$$

де $K_c^{FES} (C_s / M)$ – коефіцієнт селективного іонного обміну Cs^+ на клиноподібних центрах сорбції по відношенню до іону M^+ , $[M^+]_s$ – мольна концентрація іонів M^+ у розчині.

Вираз (5.8) визначає другий широко використовуваний параметр селективної сорбції ^{137}Cs – обмінного потенціалу зв'язування $RIP^{ob}(M)$ (Radiocaesium Interception Potencial). Обмінний потенціал зв'язування цезію є постійною величиною

РОЗДІЛ 5

для даного сорбенту і характеризує його здатність селективно та обмінно сорбувати цезій.

У тих випадках, коли калій є домінуючим іоном, конкуруючим з ^{137}Cs , маємо

$$K_p^{ob}(\text{Cs}) = \frac{RIP^{ob}(K)}{[K]_s}, \quad (5.9)$$

а при домінуванні катіону амонію одержимо

$$K_p^{ob}(\text{Cs}) = \frac{RIP^{ob}(\text{NH}_4)}{[\text{NH}_4]_s}. \quad (5.10)$$

У змішаних випадках, коли внесок калію і амонію є порівняльними, застосовують співвідношення

$$K_p^{ob}(\text{Cs}) = \frac{RIP^{ob}(K)}{[K]_s + K_c^{FES}(\text{NH}_4 / K)[\text{NH}_4]_s}, \quad (5.11)$$

де $K_c^{FES}(\text{NH}_4 / K) = \frac{RIP^{ob}(K)}{RIP^{ob}(\text{NH}_4)}$.

Цей метод суттєво зменшує невизначеність оцінки обмінного коефіцієнту розподілу.

5.4. Коефіцієнт розподілу і сорбенти

Для очищення ґрунтів і ґрунтових вод від радіонуклідів актуальною є проблема вивчення сорбційної здатності різних матеріалів [10, 43, 64, 73, 87, 100].

При вивченні сорбції цезію і стронцію модифікованими сорбентами на основі клиноптилоліта в якості критерію селек-

РОЗДІЛ 5

тивності вибрано коефіцієнт розподілу K_p , який розраховують за формулою [87]:

$$K_p = \frac{A_1 - A_2}{A_1} \cdot \frac{V}{m}, \quad (5.12)$$

де A_1 – вихідна активність розчину (Ku/l), A_2 – кінцева активність розчину (Ku/l), V – об'єм розчину ($л$), m – маса сорбенту ($г$).

Дослідження рівня адсорбції іонів ^{90}Sr і ^{137}Cs проводились у залежності від типу сорбентів і мінерального складу розчинів. В дослідях використовували наступні сильно мінералізовані розчини: I – 0,1 моль/л HNO_3 (кисле середовище), II – 3,5 г СФ-2У + 5 г/л $H_2C_2O_4$ + 25 г/л $NaNO_3$ і III – Na : Ca : Mg : Cl = 1 : 5 : 5 : 25 при загальному вмісті солей 0,8 г/л (таблиця 5.4).

Таблиця 5.4

Коефіцієнт розподілу K_p (M^3/kg) цезію і стронцію
при сорбції з розчинів різного складу

Зразок	^{137}Cs			^{90}Sr		
	I	II	III	I	II	III
Клиноптилоліт в Na формі	1,960	1,320	4,390	0,590	0,125	1,120
Клиноптилоліт + хромат цирконію	1,355	0,770	3,900	0,830	0,145	2,420
Клиноптилоліт + фероціанід сурми (5+)	4,380	8,370	13,460	0,525	0,078	2,550
Клиноптилоліт + SbSi	0,880	0,012	1,020	23,500	1,920	24,250

сильно мінералізовані розчини: I – 0,1 моль/л HNO_3 (кисле середовище), II – 3,5 г СФ-2У + 5 г/л $H_2C_2O_4$ + 25 г/л $NaNO_3$ і III – Na : Ca : Mg : Cl = 1 : 5 : 5 : 25 при загальному вмісті солей 0,8 г/л.

РОЗДІЛ 5

З наведених у таблиці 5.4 даних видно, що склад розчину суттєво впливає на сорбцію радіонуклідів клиноптилолітом. Найбільші значення коефіцієнт розподілу приймає при сорбції з розчину III, а найменші – з розчину II. Для розчину II такий характер зміни K_p зумовлений наявністю у ньому високої концентрації конкуруючих іонів, а також значної кількості аніонів $C_2O_4^{2-}$, які утворюють комплекси зі стронцієм, що ускладнює сорбцію катіонів з розчину. Кисле середовище також зменшує сорбцію ^{90}Sr і ^{137}Cs .

Дані таблиці 5.4 показують, що найбільшу селективність по відношенню до цезію має клиноптилоліт з фероціанідом сурми ($Sb_3[Fe(CN)_6]_5$), а по відношенню до стронцію – кремнієм (Si).

На величину коефіцієнта розподілу K_p має вплив також зміна параметру

$$\alpha = m_s/V_p, \quad (5.13)$$

де $m_s(z)$ – маса сорбента, V_p – об'єм розчину (l).

Цей вплив досліджено для розчинів I та II у стаціонарних умовах [87].

Аналіз зміни коефіцієнтів розподілу в залежності від α в процесі сорбції показав, що оптимальним можна вважати діапазон від 0,001 до 0,01. При α більше 0,01 коефіцієнт розподілу K_p практично не збільшується, а при менше 0,0001 спостерігається значне його зниження.

При дослідженні сорбції ізотопів цезію і стронцію з різних розчинів клиноптилолітом у нагрівій формі виявлено [10], що ефективність сорбції збільшується з підвищенням pH розчину від 8 до 14. Це явище може бути пов'язане з полегшенням руйнування гідроструктур Cs^+ і Sr^{2+} у сильно лужному середовищі. Збільшення сорбції з ростом pH особливо помітне у розчинах з високим вмістом солі (≥ 100 кг/м³). Концентрація неорганічної солі в сильно лужному середовищі не має суттєвого

РОЗДІЛ 5

впливу на сорбцію цезію і стронцію клиноптилолітом. А в слабколужному середовищі ($pH=8$) ступінь сорбції цезію і стронцію суттєво залежить від концентрації неорганічної солі натрію, причому зі збільшенням концентрації рівень сорбції зменшується (таблиця 5.5).

Таблиця 5.5

Вплив хімічної форми клиноптилоліту, pH розчинів та їх солевмісту на рівень сорбції C_s і S_r

Хімічна форма сорбенту	pH середовища	Ступінь сорбції радіонуклідів (%) з розчину $NaNO_3$ різної концентрації					
		1 $кг/м^3$		10 $кг/м^3$		100 $кг/м^3$	
		C_s	S_r	C_s	S_r	C_s	S_r
Природна	8	75,0	70,0	-	45,0	27,0	<0,1
Натрієва	8	93,8	86,0	81,0	79,0	37,0	18,5
Натрієва	12	95,8	99,8	89,8	-	91,0	99,9

В таблиці 5.6 наведено результати дослідження залежності коефіцієнту розподілу радіонуклідів від їх концентрації у розчині нітриту натрію.

Таблиця 5.6

Залежність коефіцієнта розподілу радіонуклідів від їх концентрації у розчині при вмісті солі 1-10 $кг/м^3$, при $pH=13,7$ (^{137}Cs) і $pH=8$ (^{90}Sr)

Концентрація, $кг/м^3$	Коефіцієнт розподілу, $м^3/кг$	
	^{137}Cs	^{90}Sr
$(0,1-2) \cdot 10^{-2}$	5	10
0,2-1	2	0,3
5-10	0,5	0,02

РОЗДІЛ 5

При збільшенні концентрації радіонуклідів у розчині їхня сорбція клиноптилолітом зменшується, особливо сорбція стронцію. Статична ємність C_s і S_r при їх концентрації у розчині $\leq 0,02 \text{ кг/м}^3$ становить приблизно $0,1 \text{ кг}$ для S_r і $1,4 \text{ кг}$ для C_s на 1 кг сорбента.

Дослідження сорбції ^{90}Sr у динамічних умовах показали, що після пропускання модельного розчину з $pH=8$, який містить 13 кг/м^3 нітрату натрію, $2 \cdot 10^{-2} \text{ кг/м}^3$ цезію у вигляді нітрату, питомої активності $1,47 \cdot 10^{10} \text{ Бк/м}^3$ через три адсорбційні колонки з клиноптилолітом у нагрівій формі проходить зниження активності до $13,9 \cdot 10^3 \text{ Бк/м}^3$, тобто ступінь сорбції складає $99,9999 \%$.

5.5. Коефіцієнт дифузії і сорбенти

При очищенні рідких радіоактивних відходів від довгоживучих радіонуклідів широко застосовуються сорбційні методи. При використанні сорбційних матеріалів на практиці поряд з сорбційно-селективними характеристиками важливу роль відіграють і кінетичні параметри. Проведено дослідження іонного обміну кількості радіонуклідів цезію і стронцію на сорбентах різного класу і визначено значення коефіцієнтів дифузії цих радіонуклідів [27, 72, 73, 83, 95].

Для випадку сорбції на сферичних гранулах сорбенту з обмеженого об'єму розчину унаслідок процесу дифузії так званий ступінь перетворення F визначають за формулою

$$F = \frac{6}{\bar{R}} \cdot \frac{C_0}{C_0 - C_\infty} \cdot \left(\frac{Dt}{\pi} \right)^{1/2} \quad \text{при } F < 0,4, \quad (5.14)$$

де \bar{R} – середній радіус гранул (m), C_0 і C_∞ – концентрація радіонукліду у вихідному і рівноважному розчинах відповідно, (Бк/м^3), D – коефіцієнт дифузії (m^2/c), t – час сорбції (c).

РОЗДІЛ 5

Ступінь перетворення F в деяких випадках можна розрахувати також за формулою

$$F = \frac{C_0 - C_t}{C_0 - C_\infty}, \quad (5.15)$$

де C_t – концентрація радіонукліду в момент часу t , (Бк/м³).

Величину C_∞ визначали при безперервному перемішуванні сорбенту з розчином протягом 16 годин. У всіх дослідженнях вимірювали питому активність і приймали, що вона пропорційна до концентрації радіонукліду. Розрахунок D проводили за експериментальними залежностями F від t методом найменших квадратів при $F < 0,4$.

За формулами (5.14), (5.15) розраховано значення D іонів цезію і стронцію на різних сорбентах. Крім цього при середньому радіусі гранул $\bar{R} = 1,88 \cdot 10^{-4}$ м розраховано час напівобміну $t_{0,5}$ і коефіцієнт розподілу K_p за формулами

$$t_{0,5} = \frac{0,03\bar{R}^2}{D}, \quad K_p = \frac{C_0 - C_\infty}{C_\infty} \cdot \frac{V_p}{m_c}, \quad (5.16)$$

де V_p – об'єм розчину (м³), m_c – маса сорбенту (кг).

Результати досліджень наведено у таблицях 5.7 і 5.8. В таблицях застосовані наступні скорочені назви сорбентів: КУ-2×8 – сильно кислотний сульфокатіоніт; NaA – синтетичний цеоліт типу А; NaX – синтетичний цеоліт типу Х; КЛ – природний кліноптилоліт Шивертуїнського родовища, Читинська область, Росія; ІЕ-95 – синтетичний цеоліт, виробництва Dow Chemical, США; D-230 – синтетичний цеоліт, виробництва США; ФЦ – фосфат цирконію сферичної грануляції; ФТ – фосфат титану сферичної грануляції; Терм оксид-35 (Т-35) – сорбент на основі фероціфніду цирконію; МЖА, НЖА – сорбенти на основі фероціфнідів міді і нікелю відповідно, нанесені на поверхню алюмосилікатного носія; ФС-

РОЗДІЛ 5

2 – композиційний силікагель – фероцифнідний сорбент на основі фероцифніду міді; СКК-3 – сурмяно-кремнієвий катіоніт; піролюзит – природний діоксид марганцю, Чіатурське родовище, Республіка Грузія; ІСМА – сорбент на основі модифікованого діоксиду марганцю; БАУ – березове активоване вугілля; КГ-13П – синтетичний шабазит гранульований з перхлорвінілом [72].

Сорбенти МЖА, НЖА, ФС-2 і КГ-13 використовувались у К-формі, всі решта – у Na-формі.

Таблиця 5.7

Значення коефіцієнтів дифузії, часу напівобміну і коефіцієнтів розподілу іонів ^{137}Cs для різних сорбентів при температурі 293° К.

Сорбент	Фракційний склад, мм	$\bar{R} \cdot 10^4$, м	$D \cdot 10^{14}$, м ² /с	$t_{0,5}$, с	K_p , м ³ /кг
1	2	3	4	5	6
КУ-2×8	0,56-1,0	3,9	22±5	4800	6,6±0,7
1	2	3	4	5	6
NaA	0,25-0,50	1,88*	7,8±1,5	13500	1,6±0,2
NaX	0,25-0,50	1,88	9,0±1,3	11700	5,4±0,5
КЛ	0,25-0,50	1,88	30±7	3600	8,6±0,7
ІЕ-95	0,25-0,50	1,88	35±8	3000	14±2
D-230	0,25-0,50	1,88	40±10	2700	11±2
ФЦ	0,25-0,50	1,88	9,2±1,0	11400	15±3
ФТ	0,25-0,50	1,88	35±7	3000	18±3
T-35	0,2-0,315	1,29	57±10	1800	25±4
МЖА	0,25-0,50	1,88	180±80	600	58±8
НЖА	0,25-0,50	1,88	330±120	300	66±8
ФС-2	0,25-0,50	1,88	370±100	300	82±9

* - в стані набухання

РОЗДІЛ 5

Таблиця 5.8

Значення коефіцієнтів дифузії, часу напівобміну і коефіцієнтів розподілу іонів ^{90}Sr для різних сорбентів при температурі 298°K .

Сорбент	Фракційний склад, мм	$\bar{R} \cdot 10^4$, м	$D \cdot 10^{14}$, $\text{м}^2/\text{с}$	$t_{0,5}$, с	K_p , $\text{м}^3/\text{кг}$
КУ-2×8	0,25-0,50	1,88*	170±30	600	2,7±0,2
NaA	0,25-0,50	1,88	20±5	5400	25±5
NaX	0,25-0,50	1,88	57±7	1800	4,8±0,3
КЛ	0,25-0,50	1,88	2,5±0,3	42600	19±4
ІЕ-95	0,25-0,50	1,88	12±2	8400	0,4±0,05
СКК-3	0,25-0,50	1,88	55±8	1800	2,9±0,2
Піролюзит	0,25-0,50	1,88	6,2±1,3	17400	1,7±0,2
ІСМА	0,25-0,50	1,88	180±30	600	500±100
ФТ	0,25-0,50	1,88	0,6±0,2	3000?	0,16±0,02
Т-35	0,25-0,50	1,88	38±7	2700	2±0,2
БАУ	0,25-0,50	1,88	33±7	3000	0,14±0,02
KG-13П	0,75-1,0	4,38	170±20	600	330±80

* - в стані набухання

З наведених у таблицях 5.7, 5.8 даних випливає, що всі досліджувані сорбенти за кінетичними характеристиками при сорбції цезію можна розділити на три групи:

- сорбенти з високою швидкістю сорбції – МЖА, НЖА, ФС-2 ($\tilde{D} \sim (2-4) \cdot 10^{-12} \text{ м}^2/\text{с}$, $t_{0,5} \sim 300-600 \text{ с}$);
- сорбенти з середньою швидкістю сорбції – КУ-2×8, ФТ-35, ІЕ-95, D-230 ($\tilde{D} \sim (2-6) \cdot 10^{-13} \text{ м}^2/\text{с}$, $t_{0,5} \sim 1800-4800 \text{ с}$);
- сорбенти з повільною швидкістю сорбції – ФЦ, NaA, NaX ($\tilde{D} \sim (8-9) \cdot 10^{-14} \text{ м}^2/\text{с}$, $t_{0,5} \sim 11400-13500 \text{ с}$).

У випадку сорбції стронцію сорбенти можна розділити також на три групи:

РОЗДІЛ 5

- сорбенти з високою швидкістю сорбції – КУ-2×8, ИСМА, КГ-13П ($\tilde{D} \sim 2 \cdot 10^{-12} \text{ м}^2/\text{с}$, $t_{0,5} \sim 600 \text{ с}$);
- сорбенти з середньою швидкістю сорбції – NaA, NaX, ІЕ-95, СКК-500, Т-5, БАУ ($\tilde{D} \sim (1-6) 10^{-13} \text{ м}^2/\text{с}$, $t_{0,5} \sim 1800-8400 \text{ с}$);
- сорбенти з повільною швидкістю сорбції – КЛ, піролюзит, ФТ ($\tilde{D} \sim (0,6-6) 10^{-14} \text{ м}^2/\text{с}$, $t_{0,5} \sim 18000-180000 \text{ с}$).

Так, при очищенні рідких радіоактивних відходів від радіоцезію найефективнішими є сорбенти на основі фероцифідів перехідних металів, а при очищенні від радіостронцію – сорбенти на основі модифікованого діоксиду марганцю.

5.6. Проблема повторного забруднення території радіонуклідами

Традиційним способом закріплення ґрунтів є внесення бітумів, а також поліелектролітних комплексів. Присутність поліелектролітних комплексів (ПЕК), як і бітума, змінює гранулометричний склад твердої фракції в бік зменшення частки порошу і тому може впливати по різному на сорбційну здатність ґрунтів, зокрема на величину динамічної сорбційної ємності [105].

В роботах [103-106] проведено експериментальні дослідження (в статичних і кінетичних умовах) впливу бітуму і поліелектролітних комплексів на сорбцію цезію, стронцію і церію у дерново-підзолистих кислих ґрунтах і в пісках, оброблених для зменшення пилоутворення. На основі даних, отриманих при лабораторних дослідженнях спеціально підготованих зразків ґрунту, розраховано концентрацію радіонуклідів у розчині і твердій фазі ґрунту, ступінь сорбції радіонуклідів ґрунтами $S_t = (A_0 - A_t) / A_0$, де A_t , A_0 – активність розчину у момент часу t і вихідна активність відповідно, а також час

РОЗДІЛ 5

досягнення сорбційної рівноваги – t_p , рівноважну ступінь сорбції – S_p , ступінь досягнення рівноваги в різні моменти часу $F = S_t / S_p$ та коефіцієнти розподілу радіонукліду між розчином і твердою фазою – $K_p = ((A_0 - A_t) / A_t) \cdot (V / m)$, де V – об'єм розчину, m – маса твердого зразку.

Отримані результати досліджень для цезію представлено у таблицях 5.9-5.10.

Таблиця 5.9

Ступінь досягнення рівноваги F при сорбції ^{137}Cs ґрунтами в різні моменти часу

Зразок ґрунту	Ступінь досягнення сорбційної рівноваги, %		
	1 год	3 год	8 год
Ґрунт	17	62	97
Ґрунт+ПЕК	21	-	94
Пісок	22	76	98

Таблиця 5.10

Коефіцієнти розподілу K_p для ^{137}Cs у системі „ґрунт – розчин”

Зразок ґрунту	$K_p, \text{ м}^3/\text{кг}$	
	$\alpha^{-1}=5:1$	$\alpha^{-1}=100:1$
Ґрунт	$5,7 \pm 1,3$	$5,6 \pm 1,2$
Ґрунт+бітум	$6,1 \pm 1,2$	$6,0 \pm 0,9$
Ґрунт+ПЕК	$7,2 \pm 2,3$	-
Пісок	$0,8 \pm 0,9$	$1,7 \pm 0,6$
Пісок+бітум	$1,5 \pm 0,7$	$1,8 \pm 1,0$

Наведені у таблицях дані свідчать, що обробка ґрунтів водними розчинами поліелектролітних комплексів слабо впливає на кінетику сорбції ^{137}Cs у досліджуваних ґрунтах. Вплив

РОЗДІЛ 5

антидефляційної обробки ґрунту на коефіцієнт розподілу незначний. В той же час обробка піску бітумом приводить до значного збільшення коефіцієнту розподілу при співвідношенні $\alpha^{-1} = V/m = 5$.

За експериментальними даними отримано залежності рівноважних концентрацій ^{137}Cs у сорбенті C_{Ti} і розчині C_p , які відповідають закону Генрі

$$\lg C_{Ti} = k_i + b_i \lg C_p, \quad (5.17)$$

де $k_i, b_i, i = 1-4$ – емпіричні коефіцієнти.

Індекси i відповідають наступним зразкам сорбентів:

1 – необроблений ґрунт, $k_1 = 3,62, b_1 = 0,93$; 2 – ґрунт оброблений емульсією бітуму, $k_2 = 3,36, b_2 = 0,81$; 3 – пісок, $k_3 = 2,55, b_3 = 0,9$; 4 – пісок, оброблений емульсією бітуму, $k_4 = 2,04, b_4 = 0,72$ [103].

Таким чином, порівняльне вивчення сорбції радіоцезію ґрунтами, обробленими антидефляційними реагентами з метою придушення вітрової ерозії, показало, що ці реагенти у використовуваних концентраціях (0,115 – 1,15 % для водних емульсій бітуму і 0,01 – 0,1 н. для водних розчинів поліелектролітних комплексів ПЕК та поліакрилової кислоти ПАК) слабо впливають на сорбцію радіоцезію ґрунтами. У випадку обробки антидефляційними реагентами кварцового піску, який не містить початково органічних речовин, вплив цих добавок більш суттєвий [103].

Дослідження сорбційних властивостей ґрунтів при обробці їх антидефляційними реагентами по відношенню до стронцію показали, що наявність таких реагентів у ґрунтах слабо впливає на сорбцію стронцію ґрунтами [105]. Результати досліджень наведено у таблицях 5.11 і 5.12.

Дослідження сорбції ^{90}Sr при наявності конкуруючих іонів кальцію показали, що незалежно від обробки зразків ґрунту

РОЗДІЛ 5

антидефляційними реагентами, ефективність сорбції стронцію падає, що відповідає обмінному характеру поведінки стронцію (таблиця 5.13).

При дослідженнях сорбції стронцію ґрунтами виявлено, що в дерново-підзолистому ґрунті приблизно 36% радіостронцію зв'язано з гумусом і знаходиться у вигляді складних комплексів, у склад яких входять також *Fe*, *Al*, *Ca*, *Mg* та інші елементи.

Таблиця 5.11

Залежність ступеня досягнення сорбційної рівноваги ^{90}Sr від розміру частинок ґрунту і обробки їх антидефляційними реагентами в різні моменти часу

Зразок ґрунту, розміри частинок	<i>F</i> , %			
	0,5 год	1 год	3 год	8 год
Ґрунт, $(45-160) \cdot 10^{-6} \text{ м}$	50,8	99,6	-	-
Ґрунт, $(250-500) \cdot 10^{-6} \text{ м}$	28,5	76,3	98,0	-
Пісок+ПЕК, $(250-500) \cdot 10^{-6} \text{ м}$	22,6	67,4	79,5	98,3
Пісок, $(250-500) \cdot 10^{-6} \text{ м}$	35,2	83,1	92,7	-

Таблиця 5.12

Залежність коефіцієнтів розподілу ^{90}Sr у системах „розчин-ґрунт” від антидефляційної обробки і відношення α

Твердий зразок	<i>K_p</i> , м ³ /кг	
	$\alpha^{-1}=50:1$	$\alpha^{-1}=100:1$
Ґрунт	$(3,86 \pm 0,67) \cdot 10^{-1}$	$(4,97 \pm 0,91) \cdot 10^{-1}$
Ґрунт + ПЕК	$(3,15 \pm 1,16) \cdot 10^{-1}$	$(5,11 \pm 2,15) \cdot 10^{-1}$
Пісок	$(2,51 \pm 1,06) \cdot 10^{-2}$	$(2,74 \pm 1,39) \cdot 10^{-2}$
Пісок + ПЕК	$(2,98 \pm 1,67) \cdot 10^{-2}$	$(3,36 \pm 1,15) \cdot 10^{-2}$

Сорбція ^{90}Sr при наявності іонів Ca^{2+} різної концентрації

Твердий зразок	Сорбція радіостронцію, %, при концентрації Ca^{2+} , мг-екв/л			
	8	32	64	128
Ґрунт	97	60	38	19
Ґрунт + ПЕК	98	54	41	12
Ґрунт + бітум	98	76	32	10

5.7. Десорбція радіонуклідів

Для виявлення можливих змін мобільності радіоактивних компонентів у системі „ґрунт-ґрунтовий розчин-рослина” важливими характеристиками є ступінь десорбції радіонуклідів [114].

Дослідження кінетики десорбції радіонуклідів проводили в лабораторних умовах. Експериментальні дані про кінетику десорбції ^{137}Cs і ^{90}Sr з ґрунтів інтерпретували, вважаючи, що

$$\frac{dC_t}{dt} = -k(C_t - C_\infty), \quad (5.18)$$

де k – кінетичний коефіцієнт десорбції (с^{-1}), C_t і C_∞ – концентрації ^{137}Cs в момент часу t і у рівновазі, ($\text{Бк}/\text{м}^3$).

Для ^{137}Cs знайдено значення кінетичного коефіцієнту десорбції $k = 8,3 \cdot 10^{-7} \text{ с}^{-1}$. Використовуючи отримані значення кінетичного коефіцієнту десорбції, було розраховано час максимальної десорбції радіонуклідів з ґрунту. Для ^{137}Cs він складає приблизно 14 діб, що знайшло підтвердження в натурних дослідках.

Кінетичний коефіцієнт десорбції ^{90}Sr , розрахована для реальних зразків ґрунту, складає $k = 6,77 \cdot 10^{-5} \text{ с}^{-1}$, а час очищення приблизно 8,5 год.

РОЗДІЛ 5

Коефіцієнти дифузії ^{137}Cs і ^{90}Sr розраховували з формули [114]

$$C_t = \frac{C_0}{2} \left\{ 1 + \operatorname{erf} \left[\frac{1}{2} \left(x - \frac{vt}{K_p + 1} \right) \cdot \left(\frac{Dt}{K_p + 1} \right)^{-1/2} \right] \right\}, \quad (5.19)$$

де C_t – значення концентрації радіонукліду в момент часу t ($\text{Бк}/\text{м}^3$); C_0 – кінцеве значення концентрації ($\text{Бк}/\text{м}^3$); x – товщина шару (м); v – швидкість елюювання ($\text{м}/\text{с}$); D – коефіцієнт дифузії ($\text{м}^2/\text{с}$); t – час (с); K_p – коефіцієнт розподілу.

Зауважимо, що при дезактивації ґрунтів, які одночасно забруднені ^{137}Cs і ^{90}Sr , необхідна наявність амонію у складі розчину-елюента для того, щоб десорбований ^{137}Cs не поглинався ґрунтом повторно.

При дослідженні дезактивації ґрунтів [108] виявлено відмінності у десорбції цезію з модельних зразків дерново-підзолистих ґрунтів Брянської області і модельних зразків ґрунтів Гур'євської області. Коефіцієнт розподілу цезію між реальним зразком ґрунту з Гур'євської області та елюентом в 4 рази вищий, ніж для ґрунтів Брянської області. Такі відмінності у десорбції ^{137}Cs ґрунтами можна пояснити відмінністю мінерального складу ґрунтів. Приблизно 30% ґрунту Гур'євської області складає польовий шпат, який поглинає ^{137}Cs з води з коефіцієнтом розподілу $K_p \approx 100$. Можливо має місце заміщення катіонів натрію у поверхневому шарі кристалу шпату. В результаті цезій адсорбується в поверхневому шарі кристалічної гратки альбіту. Мінеральна складова ґрунтів Брянської області представлена плагіоклазом $\text{CaAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$. Катіони цезію не можуть замістити двозарядні катіони кальцію в його кристалічній гратці, тому сорбція проходить тільки у шарі Штерна.

У роботах [104, 106] досліджено десорбцію церію і цезію з ґрунтів та вплив антидефляційних реагентів на десорбцію цих

РОЗДІЛ 5

радіонуклідів. Вивчення цього впливу, як і вимірювання коефіцієнту розподілу K_p у системі „грунт-розчин” є важливим, оскільки відома кореляція між параметрами сорбції-десорбції і параметрами, які характеризують перехід радіонуклідів з ґрунтів у рослини, в тому числі між величинами K_p і значенням коефіцієнту накопичення радіонуклідів у рослинах K_d .

За результатами вимірювання активності розчинів і твердих фаз розраховано ступені десорбції радіоцезію. Час контакту твердих радіоактивних зразків з вилуговуючими реагентами в експериментах був достатнім для досягнення десорбційної рівноваги у системі, причому час необхідний для встановлення рівноваги, корелює з часом контакту „твердий ґрунтовий зразок-розчин радіоцезію”. Експериментальні дані зі ступеня десорбції ^{144}Ce з різних вилуговуючих розчинів наведено в таблицях 5.14 і 5.15.

Таблиця 5.14

Розподіл ^{144}Ce за хімічними формами різної мобільності у ґрунтах

Зразок ґрунту	Ступінь десорбції для вилуговуючих розчинів (форма)		
	H_2O (водорозчинна), %	1 моль/л NH_4Ac (обмінна), %	1 моль/л HCl (кислоторозчинна), %
Підзолистий	0,2	38,1	89,2
Підзолистий + ПЕК	0,2	25,4	84,7
Підзолистий + бітум	0,1	32,0	90,6

Обробка зразків ґрунту бітумом і поліелектролітних комплексів (ПЕК) слабо впливає на десорбцію цезію з ґрунту і розподіл його між водорозчинною, обмінною і кислоторозчинними формами.

РОЗДІЛ 5

Таблиця 5.15

Ступінь десорбції ^{144}Ce з органічної компоненти твердих зразків різними вилугувуючими розчинами

Твердий зразок	Ступінь десорбції, %		
	$\text{Na}_2\text{C}_2\text{O}_4 + \text{NaOH}$	$\text{H}_2\text{C}_2\text{O}_4 + (\text{NH}_4)_2\text{C}_2\text{O}_4$	$\text{Na}_2\text{C}_2\text{O}_4 + \text{NaOH}$
Ґрунт	8,1±1,3	12,8±2,3	2,5±0,3
Ґрунт+бітум	8,9±1,6	12,9±2,5	3,0±0,5
Ґрунт+ ПЕК	9,2±2,4	13,7±4,0	3,3±0,8
Пісок	3,7±0,5	1,3±0,3	0,9±0,2
Пісок+бітум	5,3±1,3	5,2±1,6	0,9±0,3
Пісок+ ПЕК	4,8±1,7	6,7±2,0	1,2±1,0

Результати, які наведено в таблицях 5.14 і 5.15, показують на слабе збільшення ступеня вилугування церію з органічних фракцій підзолистих ґрунтів, що містять більше 1% гумусу, після їх обробки бітумними емульсіями і водними розчинами протилежно заряджених електролітів, не дивлячись на те, що частка органічних речовин у ґрунті в результаті антидефляційної обробки зросла майже вдвічі. Ці результати можна пояснити тим, що церій ефективніше утримується фракцією гумусових кислот в порівнянні з бітумною фракцією.

Таким чином, порівняльне дослідження вилугування радіоцерію з ґрунтів, оброблених з метою придушення пилоутворення антидефляційними реагентами, дозволяє зробити висновок, що присутність досліджуваних реагентів слабо впливає на розподіл церію за хімічними формами, які відрізняються рухливістю у системі „ґрунт-ґрунтовий розчин”. Можна очікувати, що чим багатший ґрунт на органічні та органомінеральні речовини, тим менше буде впливати антидефляційна обробка на мобільність радіоцерію в ґрунтах і його перехід у рослини. На збіднених гумусом ґрунтах вплив пилостримуючих композицій, які

РОЗДІЛ 5

містять органічні речовини, в тому числі і у вигляді полімерів, на мобільність цезію може бути суттєвим.

В роботі [106] на основі експериментальних даних вивчено десорбцію і розподіл радіоцезію між мобільними формами у різних зразках дерново-підзолистого супіського ґрунту і піску, як попередньо оброблених, так і необроблених антидефляційними композиціями (водними емульсіями бітуму, водними розчинами поліелектролітів).

Досліди, проведені у статичних умовах показали, що вилуговування цезію дистильованою водою, з усіх зразків практично відсутнє, крім кварцового піску, обробленого попередньо розчинами поліакрилової кислоти (ПАК) і поліетиленіміна (ПЕІ). З таких зразків водою вимивалось біля 0,2% від утримуваного твердою фазою радіоцезію. Досліди проведені в динамічному режимі вилуговування підтвердили мізерність вимивання радіоцезію водою і відповідно відсутність водорозчинних форм як у чистих ґрунтах, так і в оброблених антидефляційними реагентами.

При послідовній обробці активних ґрунтів, експонованих у розчині радіоцезію протягом тижня дистильованою водою, розчином ацетату амонію (1 моль/л) і соляної кислоти (1 моль/л), встановлено, що співвідношення між різними рухомими формами радіоцезію (водорозчинна, обмінна і кислоторозчинна) відповідає $< 0,1:6,1:8,9$ у випадку необроблених ґрунтів і $0,3:7,2:9,0$ у випадку оброблених ґрунтів водними сантинормальними розчинами поліакрилової кислоти і поліетиленіміна.

В таблиці 5.16 наведено результати послідовного вимивання радіоцезію спиртово бензольною сумішшю, першим лужним розчином ацетату натрію, розчином Тамма, другим лужним розчином ацетату натрію.

Аналізуючи усю сукупність отриманих даних, можна відзначити, що невеликі добавки композицій на основі бітума або полікомплексів, які використовуються для придушення вітрової ерозії ґрунтів, незначно впливають на вилуговування радіоцезію з ґрунтів. У випадку пісків, збіднених на органічні компоненти, цей вплив дещо більший.

РОЗДІЛ 5

Таблиця 5.16

Співвідношення між різними формами радіоцезію,
зв'язаного з органічними речовинами ґрунту

Твердий зразок	Частка радіоцезію (%), що вимивається розчинами			
	1	2	3	4
Ґрунт	<0,5	0,9	1,4	1,3
Ґрунт+бітум	0,7	0,7	1,2	1,0
Ґрунт+ПАК+ПЕІ	<1,0	0,8	1,1	1,2
Пісок	<0,5	1,1	1,6	1,0
Пісок+ПАК+ПЕІ	<1,0	1,0	1,4	0,9

1 – спиртово бензолна суміш; 2 – перший лужний розчин ацетату натрію; 3 – розчин Тамма; 4 – другий лужний розчин ацетату натрію

Коефіцієнти розподілу у системах „ґрунт-розчин” корелюють з коефіцієнтами накопичення K_n радіонуклідів у рослинах: $K_p = c + d \ln K_n$, де c і d – константи. Ця кореляція і зміни величини K_p , які спостерігаються при обробці збіднених на органіку ґрунтів антидефляційними реагентами, вказують на можливість зміни міграційної здатності радіоцезію не тільки у системі „ґрунт-розчин”, але у системі „ґрунт-рослина”. Однак, як показують дослідження, ці ефекти можна очікувати тільки для сильно збіднених на гумус ґрунтів і, напевно, тільки у приповерхневих шарах.

РОЗДІЛ 6

МІГРАЦІЯ РАДІОНУКЛІДІВ

6.1. Чинники міграційного процесу радіонуклідів

Радіонукліди, що випали на поверхню ґрунту, під впливом природних чинників мігрують у горизонтальному і вертикальному напрямках.

Нагадаємо, що під міграцією радіонуклідів у ґрунті розуміють сукупність процесів, які приводять до переміщення радіонуклідів і розподілу їх між різними фазами і станами, що обумовлює зокрема перерозподіл радіонуклідів за глибиною ґрунтового профілю та зумовлює надходження їх у рослини і ґрунтові води.

Міграція радіонуклідів у ландшафті розвивається на фоні суперечливої взаємодії двох груп чинників. Одна група визначає переважно винесення з ґрунтів радіонуклідів і розвиток процесів самоочищення ландшафтів. Це чинники стоку і змиву, а також ті, що регулюють кислотність та інші параметри ґрунтів, які сприяють переходу радіонуклідів у рухомі форми. Друга група чинників діє на утримання радіонуклідів на місці випадання та зумовлює радіоекологічну ємність ландшафтів. Це наявність у ґрунті і товщі ґрунтоутворюючих порід гумусу, глинистих мінералів, а також ландшафтно-геохімічних та біогеохімічних бар'єрів.

Внаслідок вітрової ерозії підстилаючої поверхні ґрунту, змиву радіоактивних речовин з рослинності атмосферними

РОЗДІЛ 6

опадами та їхнього стоку в низинні безстічні ділянки і гідрографічну мережу відбувається горизонтальний перерозподіл радіонуклідів. Швидкість горизонтальної міграції залежить від гідрометеорологічних чинників (швидкість вітру у приземних шарах атмосфери, кількість та інтенсивність атмосферних опадів), фізико-географічних особливостей даного району (наприклад, рельєф місцевості, рослинність), дисперсності радіоактивних аерозолей, міцності їх фіксації ґрунтом і рослинністю тощо. Найбільша швидкість горизонтальної міграції радіонуклідів спостерігається при сильних дощах, які змивають радіоактивні речовини, що осіли на листях, суцвіттях, стеблах рослин, при весняному таненні снігу, коли відбувається інтенсивний поверхневий сток атмосферних опадів, які випали в зимовий період, з водозбірних басейнів у гідрографічну мережу або під час ерозії ґрунтів.

З часом у ґрунтах відбуваються процеси переміщення радіонуклідів углиб ґрунту внаслідок їхнього перенесення з верхніх шарів ґрунту фільтраційними потоками і дифузією. Ці хімічні процеси регулюють в основному вертикальне переміщення радіоактивного забруднення. Обмежувачами бар'єрами для розповсюдження радіонуклідів будуть у першу чергу мінерали з високими сорбційними характеристиками – глини, гідроксиди, оксиди і гідрооксиди заліза.

В природних умовах вертикальна міграція радіонуклідів відбувається шляхом переносу частинок твердої фази (до якої відносяться і паливні частинки) у вигляді водних механічних суспензій, та в загальному випадку конвективної дифузії у поровому розчині при супутних явищах сорбції-десорбції [22, 30, 33, 37, 43, 46, 56, 59, 73, 79, 84, 107]. При інтенсивному переносі водних механічних суспензій спостерігаються ефекти зменшення вільно доступного порового розчину і блокування шляхів руху твердих компонент, що в кінцевому результаті приводить до перерозподілу і фактичного знаходження цих частинок тільки у тонкому поверхневому шарі [79]. Конвек-

РОЗДІЛ 6

тивна дифузія радіонуклідів у порових розчинах при малих часах релаксації процесів сорбції у порівнянні з часами релаксації дифузійних просторових процесів у значній обмінній ємності ґрунтів теж не повинна приводити до значного вертикального переносу домішкової речовини [1].

Природні фактори, пов'язані з рухом ґрунтової вологи (фільтраційний потік, капілярний потік, термовологоперенос), можна інтегрально розглядати як один сумарний потік вологи. Перенос радіонуклідів відбувається переважно з ґрунтовим розчином і супроводжується адсорбцією на поверхні твердої фази ґрунту і десорбцією назад у ґрунтовий розчин. Напрямок та інтенсивність руху ґрунтових вод залежить від властивостей ґрунту та кліматичних умов. Так у спекотні літні дні, коли переважає капілярний рух порового розчину, сумарний потік ґрунтових вод направлений угору, після дощів переважає інфільтрація і сумарний потік направлений униз [84].

Але зміною потоку в часі при дослідженнях міграції радіонуклідів у ґрунті, яка проходить роками, можна знехтувати, оскільки середньорічний потік вологи для даного типу ґрунту в даних кліматичних умовах з достатньою точністю для досліджень міграції є величиною постійною.

В роботі [84] автор проводить оцінку внеску конвективного і дифузійного переносу іонів радіонуклідів у їхньому переміщенні у ґрунті на прикладі ^{90}Sr . Швидкість конвективного переносу V іонів у ґрунті запропоновано оцінювати за формулою

$$V \approx v/\gamma K_p, \quad (6.1)$$

де v - середня швидкість потоку вологи; γ - густина ґрунтового розчину; K_p - коефіцієнт розподілу.

РОЗДІЛ 6

Середня швидкість потоку вологи для ґрунтів середньої смуги Європи складає біля $(0,3-30) \cdot 10^{-2}$ м за рік, густина ґрунтового розчину $\gamma = 10^3$ кг/м³, коефіцієнт розподілу для стронцію $K_p \approx 10^{-2}$ м³/кг. В результаті отримуємо, що за рік ⁹⁰Sr зміщується у ґрунті на $(0,03-3) \cdot 10^{-2}$ м.

Поряд з конвективним переносом значну роль у міграції радіонуклідів відіграє дифузія, як фактор, який викликає переміщення не тільки іонів, що знаходяться у розчині, але й адсорбованих іонів. Вклад дифузії буде різним у різних типах ґрунтів. Він буде тим більшим, чим більше іонів адсорбовано і чим менша швидкість потоку ґрунтової вологи.

У ґрунті частина іонів знаходиться в адсорбованому стані, а частина – у розчині. Процес дифузійного переносу іонів, як правило, складається з послідовних процесів повільної дифузії в адсорбованому стані, переході їх у розчин у результаті іонного обміну, більш швидкої дифузії у розчині і переходу знову в адсорбований стан.

Дифузію можна вважати найбільш розповсюдженим процесом, оскільки у ґрунті завжди наявні градієнти концентрації складових елементів. Тому, не дивлячись на порівняльно невелику швидкість дифузійних процесів, вони відіграють часто основну роль у поширенні, зокрема, радіоактивних забруднень.

Щоб оцінити вклад дифузійної міграції можна застосувати наближену формулу переміщення x частинок домішки [84]

$$x \cong 2 \sqrt{\frac{Dt}{\pi}}, \quad (6.2)$$

де D – коефіцієнт дифузії; t – час.

Для ⁹⁰Sr коефіцієнт дифузії змінюється у ґрунтах у природних умовах у межах $(10^{-12}-10^{-11})$ м²/с. В результаті за

РОЗДІЛ 6

рахунок дифузійних процесів середнє зміщення стронцію за рік складає $(0,5-2) \cdot 10^{-2}$ м.

Однак існує якісна відмінність у характері дії двох факторів: конвективного переносу з потоком вологи і дифузією. Конвективний перенос приводить до переміщення зони забруднення зі зміщенням максимальної концентрації углиб ґрунту. Дифузія викликає розширення зони забруднення з одночасним зменшенням величини максимальної концентрації.

Перенос іонів кореневими системами рослин також вносить свій вклад у міграцію радіонуклідів. Значимість цього фактора залежить від глибини розповсюдження і густини кореневої системи у ґрунті. Але оскільки адсорбційна здатність кореневої системи менша, ніж ґрунту, то при умові, що їх сумарний об'єм складає незначну частину від об'єму ґрунту, який займає коренева система, вклад кореневого переносу радіонуклідів, як правило, не суттєвий. Коли ж роль кореневого переносу у міграції є помітною, то його наслідки такі ж, як і у попередніх двох випадках – зона забруднення розмивається і проникає в глибину ґрунту. Зворотний рух по кореневій системі значного впливу на міграцію не має, оскільки радіонукліди з зони малої концентрації забруднення потрапляють у зону великої концентрації, і тому ним можна знехтувати.

Оскільки конвективний перенос вологи у ґрунті і дифузія описуються достатньо точно існуючими математичними моделями, а дія інших факторів приводить до подібних наслідків, то при дослідженні міграції радіонуклідів у ґрунті можна обмежитися врахуванням конвективного переносу радіонуклідів з ґрунтовою вологою та їхньою дифузією.

6.2. Поверхневий змив радіонуклідів

Кількісною характеристикою поверхневого змиву може бути коефіцієнт змиву K , який описує частину запасу

РОЗДІЛ 6

радіонуклідів на водозборі, яка надійшла з поверхневим стоком у водойму [116]. Коефіцієнт змиву K для водорозчинної форми радіонуклідів визначається із співвідношення:

$$K = \frac{A_p h}{A_0 H}, \quad (6.3)$$

де A_p – водорозчинна частина активності; A_0 – загальна активність; h – товщина шару поверхневого стоку, мм; H – загальний водозапас у місці відбирання проби.

Як правило, у 1986 – 1987 роках вміст водорозчинної частини радіонуклідів ^{137}Cs і ^{90}Sr не перевищував 1%, і лабораторні експерименти показали, що $K = n \cdot 10^{-4}$ при використанні середньорічного значення $h/H = 0,15$.

Аналіз результатів досліджень показує, що ^{90}Sr змивається в основному в розчиненому стані (це впливає із співвідношення значень коефіцієнтів змиву у розчиненому стані і зависі). Основна частина ^{137}Cs змивається у завислому стані, що пояснюється здатністю атомів цезію утворювати міцні сполуки з глинистими матеріалами та залучати їх до дрібнодисперсної частини ґрунту.

В той же час для паливних частинок спостерігаються деякі загальні закономірності локальної горизонтальної міграції [30]. В конкретних геоморфологічних умовах при наявності областей збору і виносу піщового матеріалу, які розміщені на різних висотах і з'єднані руслом водних потоків, спостерігається утворення зон накопичення паливних частинок, аналогічно до зон накопичення важких акцесорних мінералів. Радіоактивність паливних частинок спрощує виявлення місць їхнього накопичення. В таблиці 6.1 наведено дані про горизонтальне переміщення паливних частинок на відносно невеликі відстані. Концентрація церію, яка відображає вміст паливних частинок у

РОЗДІЛ 6

піскових ґрунтах, змінюється від області зносу до області накопичення у 4-60 раз.

Таблиця 6.1

Концентрація ^{144}Ce на ділянках локального переносу паливних частинок (на 26.04.86)

Місце відбору проб	Концентрація ^{144}Ce в ґрунті $\cdot 10^4$, Бк/кг		Відстань між точками відбору проб, м
	знос	накопичення	
Полігон 3	0,4	3,1	30
Північний берег ставка-охолоджувача	4,8	80	3
Полігон 4	0,9	55	5
„Лісництво”, 9 км західніше 4-го блоку	8,1	35	3,5
р. Прип'ять, правий берег біля парому	2,4	32	30

На основі досліджень горизонтального переносу радіонуклідів зроблено висновок, що процеси локального переносу паливних частинок можуть привести тільки до незначного їх переміщення, а не до збільшення диференціації розподілу радіоактивних елементів [30].

6.3. Кількісні закономірності вертикальної міграції

Дослідження вертикального розподілу радіонуклідів у ґрунтах 30-кілометрової зони ЧАЕС проводились багатьма науковими школами [3-5, 39-43, 57-58, 64, 72-73, 75-76, 82, 86, 107]. Зокрема, перенос трансуранових елементів досліджувався на ґрунтових полігонах, які розміщені на відстані 5 – 14,5 км від

РОЗДІЛ 6

станції і охоплюють такі типи ґрунтів: торфово-болотний, на низинних торфах потужністю більше, ніж 0,5 м; дерново-луговий пісковий опідзолений; дерново-луговий пісковий, глееватий; дерново-підзолистий пісковий, дерново-слабопідзолистий малогумусний пісковий [5]. Кожен тип ґрунту представлений трьома полігонами, які відрізняються ландшафтом і ступенем забруднення. В таблицях 6.2-6.4 наведено дані вертикального розподілу форм радіонуклідів у залежності від типу ґрунту.

Таблиця 6.2

Розподіл форм ^{90}Sr , ^{239}Pu , ^{241}Am у торф'янику (%)

Шар ґрунту, 10^{-2} м	Форма	^{90}Sr	^{239}Pu	^{241}Am
1	2	3	4	5
1	Водорозчинна	0,59	0,36	0,48
	Обмінна	48,4	0,77	2,4
	Кислоторозчинна	24,8	1,14	43,2
	Твердий залишок	26,1	97,7	53,9
2	Водорозчинна	0,54	0,47	0,32
	Обмінна	46,1	0,94	3,45
	Кислоторозчинна	37,7	1,27	47,1
	Твердий залишок	15,6	97,4	48,9
3	Водорозчинна	0,8	0,52	0,19
	Обмінна	42,9	1,01	3,12
	Кислоторозчинна	38,6	1,17	53,3
	Твердий залишок	17,6	97,3	43,4
4	Водорозчинна	0,8	0,41	0,11
	Обмінна	46,4	0,68	5,6
	Кислоторозчинна	37,3	1,72	61,1
	Твердий залишок	15,1	97,0	33,3

РОЗДІЛ 6

Продовження таблиці 6.2

1	2	3	4	5
5	Водорозчинна	0,5	0,5	0,15
	Обмінна	46,6	1,5	3,55
	Кислоторозчинна	39,5	4,0	52,0
	Твердий залишок	13,4	94,0	44,3
6	Водорозчинна	0,5	1,1	-
	Обмінна	45,6	2,3	6,2
	Кислоторозчинна	37,9	3,4	42,9
	Твердий залишок	16,0	93,2	50,9

Таблиця 6.3

Розподіл форм ^{90}Sr , ^{239}Pu , ^{241}Am у глеєватому ґрунті (%)

Шар ґрунту, 10^{-2} м	Форма	^{90}Sr	^{239}Pu	^{241}Am
1	2	3	4	5
1	Водорозчинна	4,48	0,77	0,55
	Обмінна	26,7	4,11	7,94
	Кислоторозчинна	15,2	4,51	46,0
	Твердий залишок	53,6	90,6	45,5
2	Водорозчинна	4,25	0,58	0,3
	Обмінна	36,5	3,1	6,7
	Кислоторозчинна	27,2	3,7	56,4
	Твердий залишок	32,1	92,6	36,6
3	Водорозчинна	3,77	0,48	0,18
	Обмінна	52,2	5,27	8,56
	Кислоторозчинна	26,8	4,13	53,0
	Твердий залишок	17,2	90,1	38,2

РОЗДІЛ 6

Продовження таблиці 6.3

1	2	3	4	5
4	Водорозчинна	2,67	0,62	0,14
	Обмінна	48,2	4,85	6,69
	Кислоторозчинна	28,6	2,84	53,2
	Твердий залишок	20,5	91,7	39,9
5	Водорозчинна	2,91	0,88	0,15
	Обмінна	58,5	6,37	7,57
	Кислоторозчинна	26,2	3,38	53,7
	Твердий залишок	12,5	89,4	38,5
6	Водорозчинна	2,18	1,44	0,13
	Обмінна	40,8	6,9	9,03
	Кислоторозчинна	19,9	2,69	52,5
	Твердий залишок	37,0	89,0	38,4

Таблиця 6.4

Розподіл форм ^{90}Sr , ^{239}Pu , ^{241}Am у піщовому ґрунті (%)

Шар ґрунту, 10^{-2} м	Форма	^{90}Sr	^{239}Pu	^{241}Am
1	2	3	4	5
1	Водорозчинна	4,07	3,89	0,27
	Обмінна	52,9	5,95	5,8
	Кислоторозчинна	29,7	5,85	73,4
	Твердий залишок	13,3	84,9	20,5
2	Водорозчинна	3,5	0,58	0,12
	Обмінна	55,1	3,65	7,74
	Кислоторозчинна	27,5	3,01	65,6
	Твердий залишок	13,9	92,8	26,9

РОЗДІЛ 6

Продовження таблиці 6.4

1	2	3	4	5
3	Водорозчинна	1,29	0,66	0,16
	Обмінна	58,2	3,54	6,92
	Кислоторозчинна	30,4	3,83	66,4
	Твердий залишок	10,1	91,9	26,5
4	Водорозчинна	0,81	0,29	0,08
	Обмінна	74,7	4,17	6,14
	Кислоторозчинна	18,6	6,36	73,9
	Твердий залишок	5,91	89,2	19,9
5	Водорозчинна	0,74	0,17	0,07
	Обмінна	61,6	3,28	5,7
	Кислоторозчинна	31,2	3,57	74,3
	Твердий залишок	6,51	93,0	20,0
6	Водорозчинна	0,68	0,28	0,09
	Обмінна	64,6	1,73	7,9
	Кислоторозчинна	28,6	3,9	76,1
	Твердий залишок	6,16	94,0	15,8

На 1992 рік для всіх досліджуваних типів ґрунтів у верхньому шарі товщиною 0,06 м знаходилось 95-97 % плутонію та америцію. Вміст ^{90}Sr у малогумусних піскових ґрунтах на глибині 0,12-0,14 м досягає 8-10 % від його повного вмісту у пробі. В цих ґрунтах спостерігається підвищене вилуговування стронцію і його значна міграція у глибинні горизонти. Проникнення активності в оглені ґрунтові горизонти обмежене і складає десять частки відсотка для стронцію і соті частки відсотка – для плутонію та америцію.

Зазначимо, що точність проведених вимірювань не завжди давала суму відсотків форм радіонуклідів у шарі ґрунту рівну 100 %.

В роботі [82] проведено дослідження щодо знаходження різних форм ^{90}Sr і ^{137}Cs за глибиною профілю в алювіально-

РОЗДІЛ 6

дернових ґрунтах. Пробні площі закладено у 1991 році. Проби ґрунту відбирались на глибині 0-0,3 м. Основні властивості алювіально-дернових ґрунтів заплави р. Прип'ять визначаються їх супісковим гранулометричним складом.

На основі експериментальних досліджень автори роблять висновки, що на серпень 1991 року в алювіальних дернових ґрунтах основна кількість радіонуклідів (97-99 % від загального запасу) знаходиться у верхніх шарах ґрунту (0-0,06 м). Незважаючи на значну відмінність хімічних форм ^{90}Sr і ^{137}Cs у ґрунтах практично відсутня різниця у швидкості їх міграції. У верхньому шарі ґрунту на глибині 0,04–0,06 м спостерігається практично рівномірний розподіл водорозчинної та обмінносорбованої форм ^{137}Cs . Нижче цього шару спостерігається поступове збільшення вмісту цих форм. Для всіх типів ґрунтів розподіл міцнозв'язаної форми ^{137}Cs рівномірний за профілем.

Відносний вміст обмінносорбованої форми ^{90}Sr для глевих і піскових ґрунтів збільшується з глибиною в шарі 0-0,06 м. Глибше частка цієї форми розподіляється рівномірно. Відношення рухомої і фіксованої форм ^{90}Sr у досліджуваному шарі 0-0,3 м є величиною постійною.

З метою вивчення міграції ^{137}Cs за ґрунтовим профілем проводились дослідження на ділянках з різними елементами рельєфу [86]. За однакових атмосферних умов найбільші темпи міграції радіонукліду спостерігались на водороздільних увалах, схилах, у пониженнях, а також на затоплених заплавах. За інтенсивністю міграційних процесів ґрунти можна розмістити у такий ряд (за зменшенням інтенсивності):

ґрунти постійно затоплюваних заплав → ґрунти незатоплюваних заплав → ґрунти ділянок водорозділу і терас → ґрунти схилів.

РОЗДІЛ 6

У ґрунтах затоплюваних заплав максимум концентрації забруднення (біля 40 % загального запасу радіоцезію) знаходиться у шарі 0,1-0,15 м (Брянська обл.). На водороздільних схилах і терасах біля 90 % цезію знаходиться у шарі 0-0,05 м. Аналогічні закономірності встановлено і на чорноземах. Однак, темпи міграції у цих типах ґрунтів дещо нижчі, ніж на піскових дерново-підзолистих ґрунтах. Відносно високі темпи міграції цезію на чорноземах Тульської області у порівнянні з дерново-підзолистими ґрунтами пов'язані з великою рухливістю комплексних органічних сполук ^{137}Cs , доброю структурованістю чорноземних ґрунтів (наявністю великих гріщин і пор), а також високою сорбційною здатністю нижчих шарів ґрунтового профілю.

Автори робіт [57-58] проводили дослідження забруднення радіонуклідами ґрунтів Санкт-Петербурзької, Новгородської і Брянської областей Росії. При дослідженнях виявлено, що основними елементами забруднень є радіонукліди $^{134,137}\text{Cs}$ у складі конденсаційних випадань. Питомий вміст цезію в поверхневих пробах на травень – жовтень 1992 року для Санкт-Петербурзької області становив $(7-4 \cdot 10^3)$ Бк/кг, для Новгородської – $(0,20-7) \cdot 10^2$ Бк/кг, для Брянської – $(3-130) \cdot 10^3$ Бк/кг. Рівень забруднення ґрунтів ^{137}Cs на досліджуваних ділянках Санкт-Петербурзької області складав $(0,2-9) \cdot 10^4$ Бк/м², Новгородської – $(0,2-5) \cdot 10^4$ Бк/м², Брянської – $(0,8-2) \cdot 10^6$ Бк/м².

Авторами проведено дослідження розподілу ^{137}Cs за фракціями ґрунту. Для цієї мети використано відібрані в районі „цезієвої” плями Брянської області проби характерних піскових і дерново-підзолистих ґрунтів. Дані, отримані в результаті досліджень, наведено у таблицях 6.5-6.6.

Основною складовою проб є фракція розміром $d \geq 7 \cdot 10^{-5}$ м, яка представлена кварцовим піском. Частка цієї фракції складає 65–80 мас%. Найвищу питому активність мають найменші фракції з розміром частинок $(0,02-1) \cdot 10^{-6}$ м. У найменшій фрак-

РОЗДІЛ 6

ції, яка виділена з найактивнішої за ^{137}Cs проби, поряд з ізотопами цезію виявлено ^{155}Eu , ^{144}Ce , ^{106}Ru , що свідчить про наявність у пробі паливної компоненти.

Питома активність цезію у піщовому ґрунті зменшується з глибиною, про що свідчать дані досліджень (таблиці 6.5), але є більшою, ніж у дерново-підзолистому ґрунті (таблиця 6.6).

Таблиця 6.5

Вміст ^{137}Cs у фракціях проби піщового ґрунту з глибини
0-0,02 м та 0,02-0,04 м

Розмір зерен фракції, 10^{-6}м	Вміст фракції, мас%	Питома активність фракції за ^{137}Cs (на грудень 1992 р.), 10^3Бк/кг	Вміст ^{137}Cs у фракції, %
0-0,02 м			
Рослинні залишки	11,0	290±30	31,1
Кварцовий пісок $d \geq 70$	82,4	42±4	33,8
$70 \geq d \geq 40$	3,4	460±46	15,2
$40 \geq d \geq 10$	1,5	260±26	3,8
$10 \geq d \geq 6$	1,0	460±46	4,5
$6 \geq d \geq 1$	0,1	750±75	1,1
$1 \geq d \geq 0,08$	0,2	1000±50	2,3
$0,08 \geq d \geq 0,02$	0,4	2000±200	8,2
0,02-0,04 м			
Кварцовий пісок $d \geq 90$	90,2	3,8±0,4	35,7
$90 \geq d \geq 30$	6,8	38±4	25,3
$30 \geq d \geq 8$	1,5	110±10	17,4
$8 \geq d \geq 1$	0,6	190±20	8,9
$d < 1$	0,9	182±20	12,7

РОЗДІЛ 6

Таблиця 6.6

Вміст ^{137}Cs у фракціях проб дерново-підзолистого ґрунту
(бувше орне поле, глибина відбору 0-0,02 м)

Розмір зерен фракції, 10^{-6} м	Вміст фракції, мас%	Питома активність фракції за ^{137}Cs (на грудень 1992 р.), 10^3 Бк/кг	Вміст ^{137}Cs у фракції, %
Рослинні залишки	5,7	44±4	11,0
Кварцовий пісок $d \geq 100$	65,6	2,5±0,2	7,0
$100 \geq d \geq 60$	5,2	41±4	8,6
$60 \geq d \geq 5$	18,6	65±6	52,3
$5 \geq d \geq 2$	2,6	64±6	7,4
$2 \geq d \geq 1$	1,6	92±9	6,4
$1 \geq d \geq 0,08$	0,5	160±16	3,3
$0,08 \geq d \geq 0,02$	0,2	460±46	4,0

У зв'язку з наявністю у пробах ґрунтів ізотопів цезію повстає питання вивчення вертикальної міграції цезію у ґрунтових розрізах у залежності від ландшафтно-геохімічних зон, визначення форм знаходження його у ґрунтах, ступеня вилуговування з проб ґрунту.

У дослідженнях [57] для вивчення вертикальної міграції цезію в ґрунті вибрано ділянки, які відрізняються ґрунтами і ландшафтно-геохімічними характеристиками.

Аналіз досліджень показав, що, не дивлячись на різні рівні забруднення, для однотипних ґрунтів у першому наближенні розподіл ^{137}Cs за глибиною носить подібний характер, і спостерігається напівлогарифмічна залежність зниження забруднення з глибиною. На цілих ділянках найрізкіше зниження вмісту ^{137}Cs з глибиною спостерігається для піскових ґрунтів. Рівно-

РОЗДІЛ 6

мірніший спад концентрації ^{137}Cs у шарах торфового і дерново-підзолистого ґрунтів. На оброблюваних полях проходить усереднення вмісту ^{137}Cs у шарі 0-0,2 м.

Результати вивчення вертикального розподілу ^{137}Cs показали, що на осінь 1992 року основна кількість цезію (до 80-90 %) на цілих ділянках розміщена у верхніх шарах ґрунту, які не перевищують 0,06 м. В залежності від типу ґрунтів розповсюдження ^{137}Cs дійшло до глибини 0,15-0,24 м. На цій глибині проникло близько 0,3-1 % ^{137}Cs від загального його вмісту у розрізі. На оброблюваних ділянках розповсюдження цезію дійшло до глибини 0,25-0,3 м, а вміст його на цих глибинах складає 0,02-0,3 % від вмісту у розрізі.

Наявність цезію у глибинних горизонтах є наслідком процесів вилуговування ^{137}Cs з випадань і переходом у рухомі водорозчинні форми з наступною міграцією за профілем ґрунту.

Оскільки основна частина ^{137}Cs знаходиться у міцно зв'язаній формі у верхніх 0,06 м ґрунту (98 % в дерново-підзолистому, 97 % в торфі, 92 % у піщовому ґрунті), то автори роботи [58] провели дослідження з метою виявлення складової ґрунту, яка (мінеральна чи органічна) зв'язує ^{137}Cs . Результати досліджень показали, з органічною компонентою ґрунту зв'язано не більше, ніж 3-10 % ^{137}Cs . Основна частина ^{137}Cs (90 %) зв'язана з мінеральною складовою ґрунту, яка як було встановлено являє собою суміш кварцу, ортоклазу і глинистих мінералів. Проведена оцінка показала, що хоча глинисті мінерали складають тільки 5-7 мас% в мінеральній складовій ґрунту, вони містять 45-50 % від всієї кількості ^{137}Cs .

В результаті процесу розкладу органічних речовин ^{137}Cs переходить у рухомий стан. При цьому, як відомо з [76], основна його частина зв'язується з мінеральною компонентою ґрунту, а інша -- може мігрувати за профілем ґрунту. В результаті роз-

РОЗДІЛ 6

кладення органічної компоненти ґрунту змінюються співвідношення між внеском у поглинання цезію органічною і мінеральною складовими ґрунту на користь мінеральної. При цьому вирішальну роль у поглинанні ^{137}Cs мінеральною частиною ґрунту має ізоморфне заміщення іонів у кристалічній гратці глинистих мінералів.

Кількість можливих до міграції форм ^{137}Cs (водорозчинна та обмінна) в поверхневих пробах ґрунту складає кілька відсотків. Тому проникнення у нижчі горизонти великої кількості ^{137}Cs неможливе, оскільки ^{137}Cs міцно зв'язаний з мінеральною складовою ґрунту, яка представлена більш або менш стійкими мінералами [58].

Дослідження вертикальної міграції радіонуклідів у ґрунтах і розподілу їх у системі „тверда фаза ґрунту-порові розчини” проведено авторами [75]. Об'єктом досліджень були проби необроблюваних органічних і мінеральних ґрунтів, які відбирались у 1994-1995 роках на території реперних ділянок. Опис цих ділянок подано у розділі 4.

Вертикальну міграцію радіонуклідів можна оцінити з їх виносу з однакових частин ґрунтових профілів.

В усіх типах ґрунтів ^{90}Sr є наймобільнішим радіонуклідом. Це приводить до максимального потрапляння його у порові розчини і, відповідно, значення коефіцієнтів розподілу між твердою фазою ґрунту і поровим розчином для ^{90}Sr є мінімальними.

На 1995 рік для дерново-підзолистого сипучого піщового ґрунту в (0-0,05)-метровому шарі відмічено тільки 34 % від сумарного вмісту ^{90}Sr у ґрунтовому профілі, 66 % радіоізоотопу перемістилось у глибші шари. Винос ^{90}Sr з (0-0,1)-метрового шару складає 62 %. У даному типі ґрунту швидкість міграції ^{90}Sr є максимальною (у порівнянні з іншими досліджуваними типами ґрунтів). Така поведінка стронцію у дерново-підзо-

РОЗДІЛ 6

листому сипучому пісковому ґрунті може бути пов'язана з низькою сорбційною здатністю ґрунту (незначна іонообмінна ємність, малий вміст мінеральних і гумусних речовин, які закріплюють стронцій), значним запасом обмінної форми стронцію, а також з сипучою структурою і низькою вологоємністю ґрунту, що забезпечує промивний характер ґрунту. В інших типах ґрунтів винос радіостронцію за межі (0-0,05)-метрового шару не перевищує 48,5 %, а поза (0-0,1)-метровий шар – 12 %.

За інтенсивністю вертикального переносу ^{90}Sr досліджуваних ґрунти можуть бути розміщені в наступному ряді:

дерново-підзолистий пісковий → *заплавний дерновий* → *торфово-глієвий* → *сильно мінералізований торфовий*.

(Ряд збільшення коефіцієнтів розподілу стронцію між ґрунтом і поровим розчином такий самий, див. табл. 4.2).

Прослідковується певний вплив режиму зволоження і ступеня обводнення ґрунтів на інтенсивність міграційних процесів. Мінімальна рухливість радіостронцію спостерігається в осушеному торфовому ґрунті суходольного луку. Більш мобільний ^{90}Sr в торфово-глієвому і заплавно-дерновому ґрунтах.

Результати досліджень вертикальної міграції ^{137}Cs , $^{239,240}\text{Pu}$ і ^{241}Am показують малу швидкість міграції цих радіонуклідів у всіх типах досліджуваних ґрунтів. Одночасно слід відзначити, що у всіх типах ґрунтів ^{241}Am мігрує швидше, ніж $^{239,240}\text{Pu}$.

Максимальна інтенсивність міграції ^{137}Cs , $^{239,240}\text{Pu}$ і ^{241}Am з (0-0,1)-метрового шару спостерігалась для заплавно-дернового ґрунту. Тут має вплив ступінь зволоження ґрунту. Винос ^{137}Cs з 0,10-метрового шару не перевищує 8,8 %, а

РОЗДІЛ 6

$^{239,240}\text{Pu}$ – 2,4 % і ^{241}Am – 5,2 % (для 0,05-метрового шару відмічено відповідно такий винос 16,5 %; 8 %; 24,9 %).

Швидкість вертикального перерозподілу трансуранових елементів співвимірна зі швидкістю міграції радіоцезію. Основна кількість ^{137}Cs , $^{239,240}\text{Pu}$ і ^{241}Am розмішена в (0–0,05)-метровому шарі ґрунту.

За швидкістю спадання міграції радіонуклідів ґрунти складають наступні ряди:

^{137}Cs : *заплавний дерновий ґрунт* → *торфово-глієвий* → *дерново-підзолистий пісковий* ≡ *сильно мінералізований торфовий*.

$^{239,240}\text{Pu}$: *заплавний дерновий ґрунт* → *торфово-глієвий* ≡ *сильно мінералізований торфовий* → *дерново-підзолистий пісковий*.

^{241}Am : *заплавний дерновий ґрунт* → *торфово-глієвий* → *дерново-підзолистий пісковий* → *сильно мінералізований торфовий*.

6.4. Експериментальне моделювання у дослідженні вертикальної міграції радіонуклідів

Дослідження перерозподілу радіонуклідів за профілем ґрунту авторами робіт [38-40, 67] проводились на експериментальних полігонах методами експериментального моделювання. В результаті досліджень показано специфіку поведінки радіонуклідів у залежності від типу випадань (конденсаційні і паливні частинки), від фізико-хімічних властивостей та вологості ґрунтів.

РОЗДІЛ 6

Експериментальні ділянки для спостереження за вертикальною міграцією радіонуклідів у ґрунтах вибирали з урахуванням таких факторів:

- ландшафтно-геохімічні умови (ґрунтово-хімічні і ґрунтово-фізичні властивості, механічний і мінералогічний склад ґрунтів);
- типи угідь (старозорані ґрунти, ґрунти з природною будовою профілю);
- фізико-хімічні властивості випадань (співвідношення паливної і конденсаційної компонент);
- густина забруднення території довгоживучими радіонуклідами.

Вивчення вертикального розподілу радіонуклідів у ґрунтах 14-ти експериментальних ділянок проводилось з 1987 року.

Протягом 1986-1988 років незалежно від співвідношення паливної і конденсаційної компонент значення параметрів переносу різних радіонуклідів (^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{144}Ce та інших) були близькими, що пов'язано з механічним переносом цих радіонуклідів у складі паливних частинок. З 1989 року диференціація розподілу радіонуклідів різних хімічних елементів за профілем ґрунтів збільшилась, проявився вплив хімічних властивостей елементів і фізико-хімічних особливостей ґрунтів.

Значення параметрів переносу для ^{137}Cs розраховували як з використанням однокомпонентної квазидифузійної моделі переносу (визначено коефіцієнт міграції, а саме коефіцієнт квазидифузії – M , $[\text{m}^2/\text{c}]$) так і з використанням конвективно-дифузійної моделі (визначено коефіцієнт дифузії D , $[\text{m}^2/\text{c}]$ і швидкість направлено переносу v_k , $[\text{m}/\text{c}]$). Для ^{90}Sr і $^{239,240}\text{Pu}$ значення параметрів переносу розраховано за конвективно-дифузійною моделлю.

Парамери вертикального переносу ^{137}Cs , ^{90}Sr , $^{239,240}\text{Pu}$ у профілі ґрунтів експериментальних ділянок подано в таблицях

РОЗДІЛ 6

6.7 і 6.8. Експериментальні ділянки вибрано за наступними характеристиками: типом ґрунту та дернини; густиною забруднення σ_{137} по ^{137}Cs ; відношенням паливної компоненти (ПК) у випаданнях до конденсаційної (КК) – ПК/КК; розміщенням відносно ЧАЕС. В таблицях 6.7 та 6.8 введено позначення експериментальних ділянок:

- П1: дерново-підзолистий ґрунт (природний луг), дернина сипуча, слабо виражена, місцями відсутня; $\sigma_{137} = 20\text{--}30 \text{ МБк/м}^2$; ПК/КК ≈ 1 ; 3-4 км на захід від ЧАЕС.
- П2: дерново-підзолистий пісковий ґрунт (старозораний), дернина в стадії формування; $\sigma_{137} \approx 3,7 \text{ МБк/м}^2$; ПК/КК $\approx 0,5$; 12 км на захід від ЧАЕС.
- П3: дерново-луговий ґрунт (луг, окультурений перед аварією), дернина сильна; $\sigma_{137} \approx 3,7 \text{ МБк/м}^2$; ПК/КК ≈ 1 ; 23 км на захід від ЧАЕС.
- П4: торфово-підзолистий оглеєний ґрунт (старозораний), дернина у стадії формування; $\sigma_{137} \approx 5,5 \text{ МБк/м}^2$; ПК/КК ≈ 1 ; 4 км на північ від ЧАЕС.
- П7: дерново-підзолистий супісковий ґрунт (старозораний), дернина щільна – 1,5-2 см; $\sigma_{137} \approx 3,7 \text{ МБк/м}^2$; ПК/КК ≈ 1 ; 6 км на південь від ЧАЕС.

Аналіз динаміки переносу ^{137}Cs показав, що для більшості експериментальних ділянок у перші два роки після аварії значення параметрів переносу вищі, ніж у наступні роки. Інтенсивність вертикального розподілу цезію в ґрунтовому профілі суттєво залежить від фізико-хімічних і водно-фізичних властивостей ґрунту. Так, мінімальні значення коефіцієнту квазидифузії $M = (3,0\text{--}5,0) \cdot 10^{-13} \text{ м}^2/\text{с}$ відмічено для автоморфних мінеральних ґрунтів. Суттєво більші значення коефіцієнту квазидифузії отримано для органогенних ґрунтів – $M = (1,0\text{--}3,0) \cdot 10^{-12} \text{ м}^2/\text{с}$ і більше. Межі змін параметрів міграції у профілях ґрунтів експериментальних ділянок, які характеризуються

РОЗДІЛ 6

контрастними властивостями ґрунтів і фізико-хімічними характеристиками випадань, у 1991-1994 роках складають: $D = (3,3-9,5) \cdot 10^{-13} \text{ м}^2/\text{с}$, $v_k = (1,3-16,5) \cdot 10^{-11} \text{ м/с}$, $M = (4,5-12,5) \cdot 10^{-13} \text{ м}^2/\text{с}$.

Таблиця 6.7

Динаміка параметрів вертикального переносу ^{137}Cs у профілі ґрунтів експериментальних ділянок

Ділянка	Дата	$D \cdot 10^{13}$, $\text{м}^2/\text{с}$	$v_k \cdot 10^{11}$, м/с	$M \cdot 10^{13}$, $\text{м}^2/\text{с}$
П1	Серпень 1988	6,0	4,0	7,6
	Листопад 1990	3,7	1,5	4,6
	Липень 1992	3,7	1,3	4,5
	Червень 1993	4,9	1,6	6,3
П2	Липень 1987	6,1	4,0	9,0
	Листопад 1990	3,9	1,9	5,0
	Листопад 1991	2,1	1,8	2,7
	Липень 1992	2,5	4,7	4,6
	Червень 1993	1,8	3,9	3,7
П3	Липень 1987	8,0	11,0	19,0
	Серпень 1988	6,0	13,0	30,0
	Липень 1992	8,0	16,0	-
	Червень 1993	6,4	4,9	12,0
П4	Вересень 1987	5,3	1,1	8,4
	Листопад 1990	4,5	2,5	4,3
	Липень 1992	3,4	4,0	4,5
	Червень 1993	4,9	1,6	6,0
П7	Вересень 1987	10,0	5,4	14,0
	Листопад 1990	4,4	2,3	5,4
	Липень 1992	4,4	0,7	5,6
	Червень 1993	5,1	2,2	7,3

РОЗДІЛ 6

Таблиця 6.8

Параметри вертикального переносу ^{90}Sr і $^{239,240}\text{Pu}$ в профілі ґрунтів експериментальних ділянок

Ділянка	^{90}Sr		$^{239,240}\text{Pu}$	
	$D \cdot 10^{13}, \text{м}^2/\text{с}$	$v_k \cdot 10^{11}, \text{м}/\text{с}$	$D \cdot 10^{13}, \text{м}^2/\text{с}$	$v_k \cdot 10^{11}, \text{м}/\text{с}$
П1	0,6	0,1	0,4	0,1
П2	0,7	0,2	0,6	0,3
П3	1,3	1,7	0,5	1,6
П4	1,9	1,9	0,4	0,2
П7	2,4	1,5	0,5	0,1

У профілі автоморфних ґрунтів при однорідному ґрунтово-рослинному покриві (вирівняність поверхні, потужність дернини, висота рослинного покриву, вологість та інше) варіації параметрів переносу ^{137}Cs не є великими, а у випадку відмінностей цих властивостей ґрунтово-рослинного покриву спостерігаються достатньо великі зміни параметрів переносу (в 3-6 разів).

Аналіз експериментальних даних показав, що розподіл ^{137}Cs у мінеральних автоморфних ґрунтах з близькими фізико-хімічними властивостями і механічним складом має практично однаковий характер. На таких експериментальних ділянках запас ^{137}Cs у шарі (0-0,02) м в 1994 році складав 80-90 %. Порівняння розподілу ^{137}Cs у ґрунтових профілях ділянок, які характеризуються різним співвідношенням паливної і конденсаційної компоненти, не показало суттєвих відмінностей у характері міграції цезію. Так при відношенні паливної компоненти до конденсаційної 1; 0,5; 0,2 запас ^{137}Cs у шарі (0-0,02) м складав на 1993 рік 94; 88; 90 % відповідно. Цей факт пояснюється високою швидкістю сорбції ^{137}Cs мінеральними ґрунтами, отже

РОЗДІЛ 6

більша його частина переходить у сорбований стан і участі у вертикальній міграції не приймає. Швидкість сорбції цього радіонукліду твердою фазою ґрунту суттєво вища від швидкості вилугування з матриці паливних частинок. Таким чином з точки зору рухливості паливну компоненту і сорбовану форми ^{137}Cs можна вважати однаковими.

В цілому для різних типів ґрунтів, які характеризуються різним співвідношенням форм випадань, найбільшу рухливість мають ізотопи стронцію у порівнянні з ізотопами цезію та плутонію, що пояснюється меншою сорбційною здатністю ґрунтів по відношенню до стронцію.

Характер розподілу ^{90}Sr , $^{239,240}\text{Pu}$ в профілі ґрунтів, що характеризуються різним початковим співвідношенням паливної і конденсаційної компонент показав можливість міграції цих радіонуклідів у складі дрібнодисперсних частинок.

Аналіз експериментальних даних і результатів досліджень дозволяє виділити серед властивостей ґрунтів, які визначають інтенсивність вертикального переносу ^{137}Cs у ґрунтах, наявність ґрунтової вологи і рухомого калію. Так, між інтенсивністю дифузійного переносу ^{137}Cs і вмістом рухомого калію у ґрунті виявлена така залежність:

$$V_D = 0,2287 \cdot \exp(-0,24 \cdot C_K), \quad (6.4)$$

де V_D – інтенсивність квазидифузійного переносу ^{137}Cs , C_K – вміст у ґрунті рухомого калію.

Результати спостережень за вертикальним розподілом ^{137}Cs у профілі різних типів ґрунтів на різних слідах викиду ЧАЕС і модельних експериментів дають можливість систематизувати ґрунти Українського Полісся з точки зору інтенсивності вертикального розподілу в них радіонукліду (таблиця 6.9).

РОЗДІЛ 6

Найбільш критичними з них з точки зору міграційної рухливості ^{137}Cs є гідроморфні органігенні ґрунти Полісся [39].

Таблиця 6.9

Міграційна здатність ^{137}Cs у типових ґрунтах
Українського Полісся

Ґрунти	Механічний склад	$M \cdot 10^{12}$ $\text{м}^2/\text{с}$	$D \cdot 10^{12}$ $\text{м}^2/\text{с}$	$\nu_k \cdot 10^{10}$ $\text{м}/\text{с}$
Органічні гідроморфні ґрунти (торфово-болотні, торфові і ін.)		>2,0	0,5-1,2	0,3-1,0
Лугові глеєві і глеюваті, лугові і дерново-карбонатні, дерново-глеєві і глеєваті	Піскові	1,5-2,0	0,3-0,8	0,3-1,7
Дерново глеєві і глеєваті	Супіскові, суглинисті	1,0-1,5	0,8-1,0	0,2-0,5
Дерново-підзолисті, дерново-підзолисті глеєві, слабо-гумусовані піски	Піскові	0,4-1,0	0,3-0,7	0,3-0,5
Дерново-підзолисті, сірі опідзолені	Супіскові, суглинисті	<0,4	<0,4	0,1-0,3

Аналіз прогнозних оцінок перерозподілу ^{137}Cs у профілі ґрунтів (таблиця 6.10) показав, що інтенсивність переносу радіонукліду досить низька. Значення ефективних періодів напівочищення 0,05-метрових горизонтів природних луґів, які сформовані на гідроморфних мінеральних ґрунтах, від ^{137}Cs складає 20-25 років; для луґів, які сформовані на органігенних ґрунтах – 8-12 років. Періоди напівочищення від ^{90}Sr 0,05-метрового го-

РОЗДІЛ 6

ризонту природних лугів, які сформовані на автоморфних мінеральних ґрунтах легкого механічного складу (піскових), складає 6-8 років, важчого механічного складу (суглинисті) – 10-15 років, а сформованих на органігених ґрунтах – 22-24 роки.

Таблиця 6.10

Ефективний період напівочищення верхніх горизонтів ґрунтів від ^{137}Cs

Ґрунт	Механічний склад	Період напівочищення верхніх горизонтів ґрунту, роки (середні значення і діапазон значень)	
		0-0,02 м	0-0,05 м
Органічні гідроморфні ґрунти (торфово-болотні, торфові і ін.)		5,5±0,8 (4,0 – 9,0)	14,9±1,7 (11,2 – 21,6)
Лугові глеєві і глеюваті, лугові і дерново-карбонатні, дерново-глеєві і глеєваті	Піскові	5,1±1,3 (3,2 – 11,0)	12,7±2,7 (8,3 – 24,3)
Дерново глеєві і глеєваті	Супіскові, суглинисті	6,8±0,4 (5,6 – 7,9)	17,8±0,8 (15,7 – 20,3)
Дерново-підзолисті, дерново-підзолисті глеєві, слабогумусовані піски	Піскові	8,3±0,7 (6,7 – 11)	20,3±1,1 (17,5 – 24,3)
Дерново-підзолисті, сірі опідзолені	Супіскові, суглинисті	11,1±0,5 (10,0–12,7)	24,4±0,3 (23,0 – 26,0)

Ефективні періоди напівочищення орних горизонтів сільськогосподарських угідь від ^{90}Sr складає для органігених ґрунтів 22-25 років, для мінеральних – 12-15 років. Таке ж очи-

РОЗДІЛ 6

щення від ^{137}Cs для органічних ґрунтів складає 15-20 років, а для мінеральних – 20-25 років.

Таким чином, швидкість природного очищення верхніх горизонтів ґрунтів від радіоізоотопів цезію співвимірна з періодом піврозпаду цього радіонукліду і швидкого природного самоочищення верхніх горизонтів ґрунту очікувати не можна. Зниження інтенсивності переходу ^{137}Cs у рослини може бути пов'язане тільки з його закріпленням у твердій фазі ґрунту.

Для вивчення впливу вологості на дифузійний перенос радіонуклідів ^{90}Sr , ^{137}Cs і ^{239}Pu у модельних експериментах використано деякі типові ґрунти Українського Полісся, властивості яких є контрастними [40, 67].

Експерименти проводили при вологості ґрунту 30, 60, 100 % від повної вологості (ПВС). Направлений перенос паливних частинок і радіонуклідів у вихідній водорозчинній формі вивчали у лабораторних умовах у колонках з висотою ґрунтового шару 0,15 м.

Результати проведених дослідів з вивчення дифузійного переносу ^{90}Sr , ^{137}Cs і ^{239}Pu , які наведено у таблиці 6.11, показують, що на їх перенос суттєвий вплив мають фізико-хімічні властивості ґрунтів, їхня вологість і властивості самих радіонуклідів.

Зростання вологості ґрунтів приводить до збільшення значення коефіцієнту дифузії всіх досліджуваних радіонуклідів. Коефіцієнт дифузії ^{239}Pu для досліджуваних ґрунтів має найменші значення і коливається в межах $(0,07-0,2) \cdot 10^{-12} \text{ м}^2/\text{с}$. При зростанні вологості дерново-підзолистого супісоквого ґрунту від 30 до 100 % значення коефіцієнту дифузії ^{239}Pu зростає у 2 рази.

У роботі [75] досліджено вплив води на зміну перерозподілу ^{137}Cs між твердою і рідкою фазами ґрунту. У всіх різновидностях торфових ґрунтів зменшення ступеня зволоження

РОЗДІЛ 6

грунтів приводить до зменшення його частки у рідкій фазі ґрунту. В мінеральних ґрунтах зменшення вологості мало впливає на вміст радіоізоотопу у поровому розчині.

Таблиця 6.11

Коефіцієнти дифузії ^{90}Sr , ^{137}Cs і ^{239}Pu у різних типах ґрунтів у залежності від вологості

Ґрунт	Радіонуклід	$D \cdot 10^{12}, \text{м}^2/\text{с},$ при вологості ґрунту		
		30, %	60, %	100, %
П	^{90}Sr	20,0±1,0	26,0±3,0	35,0±5,0
ДПС	^{90}Sr	9,0±1,0	16,0±3,0	15,0±1,0
ТБ	^{90}Sr	0,6±0,1	3,7±0,2	13,0±1,0
П	^{137}Cs	0,50±0,04	0,70±0,15	0,9±0,4
ДПС	^{137}Cs	0,8±0,1	1,0±0,1	1,7±0,5
ДПСґ	^{137}Cs	не визнач.	не визнач.	0,28±0,08
ЧРСґ	^{137}Cs	0,27±0,1	0,63±0,2	не визнач.
ТБ	^{137}Cs	1,7±0,3	7,9±3,0	31,65±5,0
ДСП	^{239}Pu	0,081±0,02	0,077±0,023	0,19±0,03
ЧРСґ	^{239}Pu	0,067±0,022	0,069±0,007	не визнач.
ДПСґ	^{239}Pu	не визнач.	не визнач.	0,086±0,02

П - слабкозадернований слабогумусований пісок; ДПС - дерново-слабокпідзолистий супіщковий; ДПСґ - дерново-підзолистий суглинний; ТБ - торфово-болотний; ЧРСґ - чорнозем відновлений суглинний

Рідка фаза ґрунтів на територіях, які забруднені радіонуклідами, являє собою джерело біологічно доступних і міграційно-здатних форм радіонуклідів. У зв'язку з цим проведено дослідження динаміки розподілу відносного вмісту ^{90}Sr у рідкій фазі ґрунтів зони відчуження (30-кілометрової зони ЧАЕС) протягом 1987-1994 років [4]. За об'єкт дослідження вибрано ді-

РОЗДІЛ 6

лянки з дерново-підзолистим пісковим ґрунтом у лісових ценозах, які розміщені на різній відстані від джерела забруднення, а тому відрізняються за густиною забруднення. Результати досліджень представлено у таблиці 6.12.

Таблиця 6.12

Динаміка розподілу відносного вмісту ^{90}Sr у рідкій фазі ґрунтів, %

Ділянка	рік				
	1987	1988	1990	1993	1994
1	0,23	1,0	0,36	0,5	0,46
2	0,67	2,3	7,6	8,9	7,2
3	3,5	3,1	13,8	14,2	12,5

1: 6,0 км на захід від ЧАЕС, мішаний ліс; 2: 6,5 км на південний-схід від ЧАЕС, сосняк; 3: 28,5 км на південь від ЧАЕС, мішаний ліс

Дослідження багаторічної динаміки відносного вмісту ^{90}Sr у рідкій фазі дерново-підзолистих піскових ґрунтів у районах, які забруднені переважно паливною компонентою, показали, що у перші роки після аварії вміст радіонукліду у рідкій фазі збільшується, а в наступний період стабілізується на рівні 0,5-14 %. Отримані дані свідчать про інтенсивний перехід радіонукліду з частинок випадань у ґрунтовий розчин у початковий момент і міграцію стронцію за ґрунтовим профілем.

Крім цього відбувається сорбція стронцію у нижньому гумусованому підгоризонті лісової підстилки і у верхньому, підстилочному, шарі мінеральної товщі. В початковий момент часу після аварії прослідковується чітка залежність вмісту водорозчинних форм ^{90}Sr у ґрунті від типу радіоактивних випадань. В наступний період система „тверда фаза-рідка фаза” наближається до рівноваги щодо розподілу радіонукліду між фазами, і

РОЗДІЛ 6

вміст ^{90}Sr у ґрунтовому розчині визначається комплексом фізичних властивостей і фізико-хімічних параметрів ґрунтів.

Зазначимо, що у ґрунтах усіх ділянок вміст стронцію у рідкій фазі значно змінювався з глибиною. Це також свідчить про залучення радіонуклідів у ґрунтові процеси.

6.5. Перенос радіонуклідів ґрунтовими водами

На основі досліджень з фазового розподілу активності і форм знаходження ізотопів цезію, стронцію, урану та плутонію в зразках води з об'єкту „Укриття” на дрібнодисперсній твердій фазі, колоїдних частинках і у розчиненому стані у роботі [90, 91] запропоновано враховувати новий механізм переносу радіонуклідів (основний механізм переносу розчинених радіонуклідів вважається іонний) з поверхневих шарів ґрунту в ґрунтові води.

Для дослідження відібрано зразки води 1996 і 1999 років з приміщень об'єкту „Укриття”, які відображають характер забруднень води радіонуклідами в цьому об'єкті. Результати досліджень представлено у таблиці 6.13.

На основі досліджень отримано дані про фазовий розподіл активностей і форм знаходження радіонуклідів у пробах води з внутрішніх приміщень об'єкту „Укриття”. Наведено дані про суттєву роль твердої фази з розміром частинок (0,1-1) $\mu\text{м}$ і колоїдних частинок в механізмі переносу радіонуклідів водою з об'єкту „Укриття” у поверхневі шари ґрунту і ґрунтові води. Про це свідчить значення концентрацій і сумарної частки радіонуклідів цезію, стронцію, урану і плутонію, які зв'язані з найбільш рухомою частиною мікрочастинок розміром від 0,1 до 0,5-1 $\mu\text{м}$ і на колоїдних частинках.

В роботі показано, що поряд з переміщенням радіонуклідів у іонній формі суттєвий внесок у міграцію радіонуклідів дає перенос радіонуклідів, адсорбованих на мікрочастинках розміром від 0,1 до 0,5-1 $\mu\text{м}$ і на колоїдних частинках. Дані про

РОЗДІЛ 6

міграцію радіонуклідів з об'єкту „Укриття” вказують на швидку міграцію радіоелементів з поверхневих шарів піскових ґрунтів у ґрунтові води.

Таблиця 6.13

Фазовий розподіл і форми знаходження радіонуклідів у воді з об'єкту „Укриття”, (% активності вихідної води за радіонуклідом)

№ проби води рік	Ізотоп	Активність води, $Bк/м^3$	Фаза				
			грубодисперсна тверда		колоїдна	іонодисперсна	
			розмір частинки > 1 $мкм$	розмір частинки 0,1- 1 $мкм$	розмір частинки 0,01- 0,1 $мкм$	катионна форма	аніонна форма
1	2	3	4	5	6	7	8
1 1996	^{90}Sr	$9,3 \cdot 10^7$	4,0	1,9	3,2	92,1	0
	U	1312*	0,2	0,4	0,7	84,9	-
	^{239}Pu	$94 \cdot 10^3$	16,0	48,8	23,6	-	-
	^{137}Cs	$2,3 \cdot 10^{10}$	0,8	0,5	2,3	86,2	0
4 1996	^{90}Sr	$2,8 \cdot 10^8$	32,5	1,1	1,7	62,9	3,7
	U	154453*	0,7	0,1	0,3	98,2	0,3
	^{239}Pu	$4,23 \cdot 10^6$	90,6	0,4	1,8	0,5	4,7
	^{137}Cs	$7,1 \cdot 10^{10}$	0,5	0,2	1,8	85,1	0,1
5 1996	^{90}Sr	$9,5 \cdot 10^8$	0,8	-	0,6	20,7	1,5
	U	72796*	0,3	0,3	0,0	92,8	6,7
	^{239}Pu	$3,61 \cdot 10^7$	91,9	0,6	0,1	3,0	4,2
	^{137}Cs	$3,0 \cdot 10^{11}$	2,5	0,5	1,6	81	0,2

РОЗДІЛ 6

Продовження таблиці 6.13

1	2	3	4	5	6	7	8
1 1999	^{90}Sr	$5,0 \cdot 10^9$	0,2	3,3	3,9	92,6	-
	U	803*	1,2	3,1	2,7	93,4	
	^{239}Pu	$7,0 \cdot 10^4$	58,6	41,4	0	0	0
	^{137}Cs	$3,5 \cdot 10^9$	0,4	0,8	2,3	96,6	-
2 1999	^{90}Sr	$1,6 \cdot 10^{10}$	-	30,6***	9,2	60,1	-
	U	97000*	-	0,9***	0,1	99	
	^{239}Pu	$7,0 \cdot 10^4$	-	97,7***	2,3	0	0
	^{137}Cs	$7,6 \cdot 10^{10}$	-	0,3***	0,5	99,2	-
3 1999	^{90}Sr	$6,5 \cdot 10^9$	0,8	13,3	29,0	56,8	-
	U	27,6**	6,4	6,4	0,3	86,8	
	^{239}Pu	$3,32 \cdot 10^5$	23,4	76,2	0,4	0	0
	^{137}Cs	$4,9 \cdot 10^{10}$	0,5	0,5	0,4	98,8	-

* - концентрація ізотопу, $\text{мкг}/\text{дм}^3$; ** - концентрація ізотопу, $\text{мг}/\text{дм}^3$; *** - розмір частинки $> 0,1(0,5) \text{ мкм}$.

Слід зазначити, що при складанні прогнозу радіоактивного забруднення ґрунтових вод важливо знати швидкість проникнення радіонуклідів углиб ґрунту.

Для вивчення переносу радіонуклідів з ґрунтовою вологою проведено серію лабораторних експериментів з імітацією дво- та чотирирічних опадів для різних типів ґрунтів [40].

При дослідженні переносу радіонуклідів з ґрунтовою вологою найінтенсивніший перенос ^{137}Cs спостерігався у торфво-болотних ґрунтах при імітації чотирирічної кількості опадів. У цьому випадку радіонуклід був перенесений на глибину 0,1 м. У 2-сантиметровому шарі для даного типу ґрунту при імітації дво- та чотирирічної кількості опадів запас ^{137}Cs складав 78,2 і 58,2 % відповідно. Для дерново-підзолистих піскових і дерново-підзолистих супіскових ґрунтів інтенсивність переносу радіо-

РОЗДІЛ 6

нукліду вологою приблизно однакова. Для супіскового ґрунту запас ^{137}Cs у 2-сантиметровому шарі при імітації дво- та чотирирічних опадів складає 99 і 96,1 %, що свідчить про властивість ^{137}Cs до незворотної сорбції мінеральними ґрунтами.

При аналізі результатів дослідження переносу ^{90}Sr у ґрунтах виявлено, що найбільша швидкість переносу радіонукліду при імітації чотирирічної кількості опадів спостерігається у піскових ґрунтах. В цьому випадку радіонуклід розподілився вздовж всієї глибини ґрунтової колонки (0,15 м). Розподіл за вертикаллю характеризується чітким максимумом на глибині 0,05 м. В колонці з супісковим ґрунтом інтенсивність також велика, але розподіл у цьому випадку наближається до експоненціального. Запас ^{90}Sr після промивання колонок у шарі (0–0,02) м складає 67 %. В колонці з торфово-болотним ґрунтом розподіл радіонукліду також наближається до експоненціального, але інтенсивність переносу суттєво менша, ніж у мінеральних ґрунтах. Запас ^{90}Sr у верхньому 2-сантиметровому шарі складає 91 %.

З метою вивчення вертикальної міграції ^{90}Sr і ^{137}Cs з фільтраційним потоком авторами роботи [47, 50] проведено лабораторне моделювання – експерименти з штучного промивання ґрунтових колонок. Для експериментів відібрано проби алювіального дернового легкоуглинистого ґрунту в колонки 0,15-метрової довжини, заповнені ґрунтом на 0,1 м. При промиванні проводилась імітація річної норми опадів з можливістю змінної швидкості поступлення води. В експериментах час промивання був 14 і 53 доби.

Результати дослідів вертикального розподілу ^{90}Sr у колонках до і після промивання приблизно рівним об'ємом води представлено в таблиці 6.14.

В проведених експериментах спостерігається значна міграція рухомих форм ^{90}Sr вглиб алювіального дернового лег-

РОЗДІЛ 6

косуглинистого ґрунту, але разом з тим показано, що річна норма опадів вимиває з 10-сантиметрового шару до 0,3 % загального запасу стронцію. Відмічено залежність вимивання стронцію від тривалості проведення експерименту. Загальна кількість стронцію, що вийшла з елюатом за 53 доби промивання на порядок вища, ніж при промиванні протягом 14 діб.

Таблиця 6.14

Вертикальний розподіл ^{90}Sr за профілем колонок з алювіальним дерновим легкосуглинистим ґрунтом до і після промивання

Шар, 10^{-2} м	Запас у шарі, %		
	до промивання	після промивання протягом 14 діб 2800 <i>мл</i> води	після промивання протягом 53 діб 2600 <i>мл</i> води
0 – 1	94,85	88,40	83,02
1 – 2	4,80	8,50	8,23
2 – 3	0,24	1,27	3,93
3 – 4	0,08	0,46	1,14
4 – 5	0,01	0,52	0,75
5 – 6	0,01	0,36	0,60
6 – 7	0,01	0,24	0,41
7 – 8	-	0,14	0,92
8 – 9	0,01	0,08	0,28
9 – 10	-	-	0,13

В таких самих умовах експериментів не виявлено виходу ^{137}Cs з 0,1-метрового шару ґрунту при промиванні колонок річною нормою опадів, а також практично не спостерігається його перерозподілу за профілем ґрунту.

РОЗДІЛ 6

Ряд експериментів проведено для дослідження направлено переносу паливних частинок і порівняння їх з параметрами переносу радіонуклідів у водорозчинній формі [40].

Для оцінки параметрів переносу радіонуклідів застосовано двокомпонентну квазидифузійну модель переносу. Для проведення модельних експериментів на поверхню колонки разом з паливними частинками вносили радіоізотопи ^{137}Cs , які випали у конденсаційній формі. Ці дві форми випадань мають різні параметри переносу і добре описуються вибраною моделлю [40]. З врахуванням того, що разом з паливними частинками внесено біля 5 % активності ^{137}Cs у складі конденсаційної компоненти випадань, розраховано коефіцієнти квазидифузії цих двох форм у колонках з різними типами ґрунтів. Результати представлено у таблиці 6.15.

Таблиця 6.15

Коефіцієнти квазидифузії ^{137}Cs у формі паливних частинок (D_{nc}) і в конденсаційній формі (D_{kc})

Тип ґрунту	$D_{nc} \cdot 10^{14}, \text{м}^2/\text{с}$	$D_{kc} \cdot 10^{12}, \text{м}^2/\text{с}$
П	3,0	2,2
ДПС	4,0	2,6
ТБ	2,3	2,5

П - слабкоздернований слабогумусований пісок; ДПС - дерново-слабокпідолистий супісковий; ТБ - торфово-болотний

Показано, що інтенсивність переносу паливних частинок у профілі ґрунту набагато нижча від інтенсивності переносу радіонуклідів у вихідній водорозчинній формі. Максимальну різницю в інтенсивності переносу відмічено для дерново-підзолистих піскових ґрунтів. Різниця в інтенсивності переносу паливних частинок і радіонуклідів у водорозчинній формі для

РОЗДІЛ 6

дерново-підзолистих супіскових і торфво-болотних ґрунтів менша, але складає значну величину.

6.6. Радіоактивне забруднення території Полісся

Після розчинення паливних частинок радіостронцій актив-но вступає у міграційні процеси, і його радіологічна значимість у 30-кілометровій зоні стає визначальною. За 10 років після ава-рії забруднення рослинності ^{90}Sr у ближній зоні в десятки разів перевищує вміст у них ^{137}Cs . Винос радіонуклідів з 30-кіло-метрової зони з поверхневими водами і надходження їх у ґрун-тові води також пов'язано в основному зі ^{90}Sr , як найбільш мо-більним радіонуклідом.

Для визначення забруднення території 30-кілометрової зони радіостронцієм проведено репрезентаційний крупно маш-табний відбір проб за регулярною сіткою з кроком біля 1 км (в радіусі 36 км) [47]. В загальному використано регулярну сітку відбору проб з кроком 1,2 км. Для вузького західного сліду радіоактивних випадань, який характеризується високими граді-ентами густини забруднення території, крок відбору проб скла-дав 100-500 м. Відбір проб проводився за єдиною методикою на глибину до 0,3 м і в зв'язку з глибоким вертикальним пере-міщенням стронцію на піскових ґрунтах – до 1 м. При такій методиці відбору проб враховується неоднорідність радіоактив-них випадань за територією, вплив ландшафту і типів природ-них біоценозів.

У всіх відібраних пробах встановлено агрохімічні показ-ники, які визначають кінетику розчинення паливних частинок і перехід радіонуклідів у рослини. З використанням стандартних методів визначено тип ґрунту, вміст гумусу, pH водяної і соля-ної витяжок, гідролітичну кислотність, обмінний кальцій, рухо-мий калій і фосфор, механічний склад.

РОЗДІЛ 6

Аналіз даних з міграційної рухливості ^{90}Sr в ґрунтах зони відчуження [39-40, 47] показав, що через 10 років після аварії для більшості ґрунтових умов основний вміст радіостронцію (95 %) знаходиться у верхніх 10-20-сантиметрових шарах. Тільки у слабкогумусованих незадернованих пісках спостерігається велика вертикальна міграція стронцію і винос його з верхнього 30-сантиметрового шару може складати біля 20 %. За даними [47] частка таких ділянок складає менше 1 %.

На літо 2000 року за даними [49] 90 % ^{137}Cs знаходиться в 0,05-0,06-метровому шарі дерново-підзолистих супіскових ґрунтах, в 0,12-0,16-метровому шарі дерново-глеєвих ґрунтів, а в торфово-бологних ґрунтах – в 0,1-0,11-метровому шарі.

На основі експериментальних даних побудовано карти забруднення стронцієм і цезієм 30-кілометрової зони. Створено банк даних ґрунтових проб, відібраних у зоні відчуження.

Аналіз зони аварії на ЧАЕС [116] у ландшафтному і ландшафтногеохімічному відношенні дав змогу оцінити територію „слідів” з точки зору міграції радіонуклідів.

Поліські ландшафти зони відчуження і прилеглих до неї територій, включаючи і досить віддалені райони західного „сліду” радіонуклідного забруднення північної частини Житомирської і Рівненської областей і південного „сліду” до Києва, відзначаються переважанням інфільтрації над поверхневим стоком і прямим зливом за домінування кислих та кислих глеєвих геохімічних обстановок і слабкою захищеністю ландшафтно-геохімічними бар'єрами.

Кисла реакція ґрунтових розчинів, невисокий вміст гумусу в ґрунтах у поєднанні з чітко виявленою схильністю до переважання інфільтрації атмосферних опадів над поверхневим стоком обумовлюють порівняно високу рухливість радіонуклідів у системі „ґрунт-рослина” та підвищений ризик їхньої міграції у підземні води. Одночасно враховуючи ландшафтні чинники по-

РОЗДІЛ 6

рівняно невисокою є ймовірність надходження радіонуклідів до водойм шляхом прямого змиву.

Для районів поширення дальніх плям південного „сліду” на південь від Києва, для Овруцького кряжу характерне інше поєднання ландшафтної-геохімічних умов. Домінування нейтральних і слабколужних геохімічних обстановок сприяє повільнішому переходу радіонуклідів у рухливі форми. Крім цього високий вміст гумусу у верхніх ґрунтових горизонтах, що відзначаються великою потужністю і переважанням суглинкових ґрунтів на лесових суглинках з вищим, ніж у поліських дерново-підзолистих піскових ґрунтах, вмістом глинистих мінералів, обумовлює дуже високий ступінь захищеності лісостепових ландшафтів ландшафтно-геохімічними бар’єрами від вертикальної міграції радіонуклідів.

Тому слід сподіватися інтенсивнішого, ніж у Поліссі, вносу радіонуклідів з поверхневим стоком шляхом їх прямого змиву у водойми і акумуляції на шлейфах, у привершинних водозбірних пониженнях, на днищах ерозійних форм та в западинах.

РОЗДІЛ 7

**МАТЕМАТИЧНІ МОДЕЛІ МІГРАЦІЇ
РАДІОНУКЛІДІВ У ҐРУНТІ**

У радіоактивних випаданнях аварійного викиду ЧАЕС значна частина біологічно значимих радіонуклідів (^{90}Sr та ізотопи плутонію) знаходилась у матриці паливних частинок. З часом відбулася деструкція цих частинок, і радіоізотопи перейшли в поровий розчин та потрапили на скелет ґрунту. Для кількісної та якісної оцінок різних характеристик масопереносу радіоактивних частинок важливе значення має розробка математичних моделей переносу радіонуклідів у шарі ґрунту, які враховують водорозчинні форми і необмінно-сорбовані форми радіонуклідів. З використанням таких моделей можна отримати адекватні прогнозні оцінки переносу радіонуклідів у випадку різко-контрастних ґрунтів за фізико-хімічними і водно-фізичними властивостями, ґрунтів неоднорідних за глибиною профілю поширення радіонуклідів, а також за наявності різних фізико-хімічних форм радіонуклідів.

Оскільки горизонтальний перенос і змив радіонуклідів вздовж поверхні ґрунту згідно з дослідженнями [30] мають локальний вплив на перерозподіл радіонуклідів, то актуальнішими задачами є дослідження і прогнозування вертикальної міграції радіонуклідів з поверхні землі углиб ґрунту і міграції радіонуклідів з об'єкту „Укриття”.

РОЗДІЛ 7

У більшості моделей вкладом механічних процесів у міграцію радіонуклідів нехтують, що може бути виправданим при прогнозуванні переносу радіонуклідів на глибини десятків та більше сантиметрів. При моделюванні міграції радіонуклідів у верхніх кількох сантиметрах ґрунту, де активність флори і фауни максимальна, врахування біотурбації може бути суттєвим.

Методи математичного моделювання дають можливість проводити прогнозування міграції радіонуклідів у геологічних структурах. При цьому в кожному випадку в залежності від переважаючого способу міграції радіонуклідів необхідно використовувати фізико-математичні моделі, які адекватно враховують фізико-хімічні властивості радіонуклідів, геохімічні характеристики ґрунтів, ландшафтні особливості території та погодно-кліматичні умови.

Для того, щоб математична модель міграції радіонуклідів була зручною при практичному використанні, в рамках моделі повинна бути можливість оцінювати невідомі ефективні параметри на основі розподілу радіонуклідів у ґрунтах, який спостерігається в різних умовах, з допомогою загальноприйнятих методик. Число параметрів, а відповідно і число форм радіонуклідів, яке враховане у моделі, повинно бути зведене до можливості до мінімуму [42].

7.1. Вертикальна міграція радіонуклідів в експериментальних і теоретичних дослідженнях

При моделюванні вертикальної міграції радіонуклідів рух ґрунтової вологи (фільтраційний потік, капілярне переміщення і термовологоперенесення) часто можна врахувати як ефективний потік порового розчину зі швидкістю v .

Процес дифузії того чи іншого радіонукліду протікає як у ґрунтовому розчині (швидка дифузія), так і у твердій фазі –

РОЗДІЛ 7

частинках ґрунту та палива (повільна дифузія) і за певних умов цей процес можна характеризувати ефективним коефіцієнтом дифузії D_{ef} .

При моделюванні вертикальної міграції радіонуклідів у ґрунті автори праць [53, 54] виділяють п'ять різних форм їхнього знаходження у ґрунтах, а саме: радіонукліди, які входять у склад паливних частинок (величини, що їх характеризують означимо індексом 1); радіонукліди, які знаходяться у ґрунтового розчині в катіонній формі (стан 2'); радіонукліди, які зв'язані з твердою фазою ґрунту за механізмом іонно-обмінної сорбції (стан 2*); радіонукліди, які зв'язані з ґрунтом у незворотно-сорбованій формі (стан 3); радіонукліди, які входять до складу розчинних комплексних сполук (стан 4).

Концентрації радіонуклідів у цих станах позначаються C_1 , $C_{2'}$, C_{2*} , C_3 і C_4 , відповідно.

Між цими формами (точніше фізичними станами) у ґрунті проходять процеси трансформації, швидкості яких у лінійному наближенні характеризуються коефіцієнтами k_{ij} , де символи i та j – означають стан радіонукліду. Схема трансформації форм радіонуклідів, запропонована авторами роботи [53], наведена третьому розділі (рис.3.1).

Радіонукліди у станах 2' і 4 мігрують по профілю ґрунту з ґрунтовым розчином з різними швидкостями і цю міграцію описано конвективно-дифузійними рівняннями. Основними механізмами руху радіонуклідів у станах 1, 2*, 3 вважається просипання по порах та тріщинах і міграцію цих форм змодельовано конвективно-дисперсними рівняннями.

В кінцевому результаті розподіл концентрацій зазначених форм радіонуклідів у ґрунті описано наступною системою диференціальних рівнянь

РОЗДІЛ 7

$$\frac{\partial C_1}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left(D_1 \frac{\partial C_1}{\partial x} \right) - v_1 \frac{\partial C_1}{\partial x} - k_{12} C_1 - \lambda C_1, \quad (7.1)$$

$$\frac{\partial C_{2'}}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left(\frac{D_{2'}}{R} \frac{\partial C_{2'}}{\partial x} \right) - \frac{v}{R} \frac{\partial C_{2'}}{\partial x} + k_{12} C_1 - k_{23} C_{2'} - \lambda C_{2'}, \quad (7.2)$$

$$\frac{\partial C_3}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left(D_3 \frac{\partial C_3}{\partial x} \right) - v_3 \frac{\partial C_3}{\partial x} + k_{23} C_{2'} - \lambda C_3, \quad (7.3)$$

$$\frac{\partial C_4}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left(D_4 \frac{\partial C_4}{\partial x} \right) - v \frac{\partial C_4}{\partial x} + k_{24} C_{2'} - \lambda C_4, \quad (7.4)$$

де D_1 – коефіцієнт дифузії радіонукліду у паливній частинці; D_2 – коефіцієнт дифузії іонів радіонуклідів; D_3 – коефіцієнт дифузії у твердій частині ґрунту; D_4 – коефіцієнт дифузії комплексної сполуки радіонукліду в поровому розчині; v_1 – швидкість руху паливної частинки; v – швидкість руху ґрунтового розчину; v_3 – швидкість руху твердої частинки ґрунту; $R = 1 + \frac{K}{\theta}$ – так званий фактор адсорбційно-десорбційного сповільнення, θ – об'ємна частка води у ґрунті, K – константа іоно-обмінної рівноваги [19]; k_{12} – кінетичний коефіцієнт вилуговування; k_{23} – кінетичний коефіцієнт фіксації; k_{24} – кінетичний коефіцієнт комплексоутворення; λ – стала радіоактивного розпаду.

Оскільки приймається, що характерний час іоно-обмінної адсорбції суттєво менший часу дифузії, автори [53] задають зв'язок між розподілом обмінно-сорбованої форми радіонуклідів $C_{2'}$ і розподілом іонної форми у розчині $C_{2'}$ співвідношенням

$$C_{2'}(x) = K(x) C_{2'}(x) \quad (7.5)$$

РОЗДІЛ 7

Зазначимо, що в загальному випадку, при умові миттєвого встановлення рівноваги доцільно розглядати розподіл обмінної форми у цілому [111, 112], тобто $C_2 = C_{2'} + C_{2''}$.

Для початкового моменту часу вважається, що

$$C_1 = C_1^0 \delta(x-0), \quad C_2 = C_2^0 \delta(x-0), \quad C_3 = 0, \quad C_4 = 0, \quad (7.6)$$

$\delta(x)$ – дельта функція Дірака

В якості граничних умов прийнято

$$C_i|_{x=0, x \rightarrow \infty} = 0 \quad (7.7)$$

Тут C_1^0, C_2^0 – відомі значення концентрацій форм радіонуклідів C_1 та C_2 відповідно.

Параметри D_i, v_i, k_{ij} визначаються шляхом обробки експериментальних даних щодо вертикального розподілу загального запасу радіонуклідів і його різних фізико-хімічних форм у ґрунті.

Експериментальні дослідження вертикального розподілу радіонуклідів дають інформацію про параметри моделі, згідно з якою рівняння (7.1)-(7.5) можуть бути спрощені [53]. Так за цими даними $k_{ij} \gg \lambda$, тому членами рівнянь, які враховують радіоактивний розпад, для певних проміжків часу можна знехтувати. За результатами тих же досліджень встановлено такі співвідношення між міграційними параметрами різних форм радіонуклідів

$$v_1 < v_3 < v, \quad D_1, D_3 < D_2, D_4.$$

Зауважимо, що врахування в моделі руху необмінних форм радіонуклідів є суттєвим. З експериментальних даних

РОЗДІЛ 7

впливає, що необмінні форми радіонуклідів, зокрема, паливні частинки, мігрують вздовж профілю ґрунту. В 1986-1987 роках цей процес переважав над рухом обмінних форм навіть для ^{90}Sr . З 1988 року завдяки деструкції паливних частинок і збільшенню частки обмінної форми, міграція обмінної форми з фільтраційним потоком вологи стала переважаючою у процесі проникнення ^{90}Sr углиб ґрунту [53].

Математична модель вертикального поширення радіонуклідів (7.1)-(7.5), (7.6)-(7.7) розв'язувалась числовими методами [53].

Для оцінки кінетичних параметрів моделі k_{ij} – коефіцієнтів швидкості трансформації, в роботі зроблено ряд припущень.

Так, оскільки ^{90}Sr і ^{137}Cs є елементами зі слабкими комплексоутворюючими властивостями, то для основних типів ґрунтів зони аварії ЧАЕС, крім торфових і болотяних, можна знехтувати утворенням комплексних розчинних сполук, тобто покласти $k_{24} = 0$.

Крім цього у початковий період часу після аварії 90 % радіонуклідів містилося у 5-сантиметровому шарі ґрунту, який можна було вважати однорідним, тому всі трансформації розглядалися без врахування процесів переносу.

За таких припущень початкова модель – система рівнянь (7.1)-(7.5), (7.6)-(7.7) – приймає вигляд

$$\frac{dC_1}{dt} = -k_{12}C_1, \quad (7.8)$$

$$\frac{dC_2}{dt} = k_{12}C_1 - \frac{k_{23}}{R}C_2, \quad (7.9)$$

$$\frac{dC_3}{dt} = \frac{k_{23}}{R}C_2 \quad (7.10)$$

при початкових умовах

РОЗДІЛ 7

$$\begin{aligned}
 C_1 &= C_1^0, \quad C_2 = C_2^0, \quad C_3 = 0; \\
 C_1 + C_2 + C_3 &= C_0, \quad C_2 = C_2' + C_2'', \quad (7.11)
 \end{aligned}$$

де C_0 – сумарна концентрація всіх форм радіоактивного забруднення.

Проведені у 1986 році модельні експерименти показали, що швидкість фіксації ґрунтами ^{137}Cs суттєво більша, ніж швидкість його вилуговування з паливних частинок, тобто $k_{23} > k_{12}$. Експериментальні дослідження показують, що частка обмінних форм ^{137}Cs у ґрунті практично не змінюється з літа 1986 року по 1989 рік з точністю до похибки вимірювання. Тому можна прийняти, що $dC_2/dt = 0$, звідки згідно (7.9) випливає $k_{12}C_1 = k_{23}C_2/R$. Природно також припустити, що кінетичні коефіцієнти вилуговування різних радіонуклідів з паливних частинок однакові.

Таблиця 7.1

Значення кінетичних коефіцієнтів вилуговування k_{12} для ^{90}Sr і ^{137}Cs з паливних частинок та фіксації k_{23} для ^{137}Cs у різних типах ґрунтів 30-км зони ЧАЕС

Тип ґрунту	k_{12}	k_{23}
	с^{-1}	
Дерново-слабокідзолистий супісковий	$1,73 \cdot 10^{-8}$	$1,73 \cdot 10^{-7}$
Алювіальний дерновий кислий	$2,0 \cdot 10^{-8}$	$1,4 \cdot 10^{-7}$
Слабокідзолистий супісковий	$4,6 \cdot 10^{-9}$	-
Окультурений дерновослабокідзолистий супісковий	$4,1 \cdot 10^{-8}$	$1,73 \cdot 10^{-7}$

РОЗДІЛ 7

Таблиця 7.2

Значення параметрів моделі для ^{137}Cs і ^{90}Sr для окультуреного дерновопідзолистого супіскового ґрунту

^{137}Cs ($C_1^0 = 0,68; C_2^0 = 0,27; C_3^0 = 0,05$)	^{90}Sr ($C_1^0 = 0,85; C_2^0 = 0,15; C_3^0 = 0,0$)
$D_1 = 4,06 \cdot 10^{-13} \text{ м}^2/\text{с}$	$D_1 = 4,06 \cdot 10^{-13} \text{ м}^2/\text{с}$
$D_2 = 5,81 \cdot 10^{-13} \text{ м}^2/\text{с}$	$D_2 = 8,1 \cdot 10^{-13} \text{ м}^2/\text{с}$
$D_3 = 1,74 \cdot 10^{-13} \text{ м}^2/\text{с}$	
$v_1 = v_3 = 0$	$v_1 = v_3 = 0$
$v_2 = 3,48 \cdot 10^{-9} \text{ м/с}$	$v_2 = 3,48 \cdot 10^{-9} \text{ м/с}$
$k_{12} = 1,74 \cdot 10^{-9} \text{ с}^{-1}$	$k_{12} = 1,52 \cdot 10^{-9} \text{ с}^{-1}$
$k_{23} = 7,96 \cdot 10^{-9} \text{ с}^{-1}$	$k_{23} = 0$

В результаті аналізу експериментальних даних для основних типів ґрунтів знайдено параметр k_{12} (кінетичний коефіцієнт вилугування для ^{90}Sr і ^{137}Cs), а також k_{23} (кінетичний коефіцієнт фіксації ^{137}Cs), значення яких наведено у таблиці 7.1.

Числові дослідження міграції радіонуклідів за моделлю (7.1)-(7.7) проведено для окультуреного дерновопідзолистого супіскового ґрунту, використовуючи значення параметрів, які наведено у таблиці 7.2.

Автори роботи [42] вважають, що для прогнозування вертикальної міграції радіонуклідів чорнобильських випадань доцільно обмежитися чотирма формами переносу радіонуклідів: радіонукліди, що знаходяться в матриці паливних частинок, радіонукліди, що знаходяться у ґрунтовому розчині у вигляді вільних іонів і у вигляді комплексних сполук, та сорбована форма радіонуклідів. Вертикальний перенос радіонуклідів з паливними частинками можна апроксимувати квазидифузійним

РОЗДІЛ 7

процесом, а для опису рівноважного стану процесів сорбції-десорбції скористатися ізотермою Генрі.

Всі ці процеси в роботі [42] описано наступною системою диференціальних рівнянь

$$\begin{aligned} \frac{\partial C_1}{\partial t} &= \frac{\partial}{\partial x} \left[D \frac{\partial C_1}{\partial x} \right] - v \frac{\partial C_1}{\partial x} - (b+g)C_1 - \frac{bC_1}{K_p} + aC_4 - \lambda C_1, \\ \frac{\partial C_2}{\partial t} &= \frac{\partial}{\partial x} \left[D \frac{\partial C_2}{\partial x} \right] - v \frac{\partial C_2}{\partial x} + gC_1 - \lambda C_2, \\ \frac{\partial C_3}{\partial t} &= b \left(C_1 - \frac{C_3}{K_p} \right) - \lambda C_3, \\ \frac{\partial C_4}{\partial t} &= \frac{\partial}{\partial x} \left[D_4 \frac{\partial C_4}{\partial x} \right] - (a+\lambda)C_4, \end{aligned} \quad (7.13)$$

де C_1 – концентрація радіонукліду в ґрунті у вигляді вільних іонів; C_2 – концентрація радіонукліду в ґрунті у вигляді розчинних комплексних сполук; C_3 – концентрація сорбованих форм радіонукліду в ґрунті; C_4 – концентрація в ґрунті радіонукліду, що знаходиться у складі паливних частинок; D – ефективний коефіцієнт дифузії розчинних форм; $v(x, t)$ – ефективна швидкість конвективного переносу радіонукліду з ґрунтовою вологою; D_4 – ефективний коефіцієнт дифузії паливних частинок; b – коефіцієнт інтенсивності сорбції розчинних форм радіонуклідів у ґрунті; a – коефіцієнт інтенсивності деструкції паливних частинок; g – коефіцієнт інтенсивності комплексоутворення; λ – стала розпаду; K_p – коефіцієнт розподілу; x – просторова координата, t – момент часу.

РОЗДІЛ 7

Зазначимо, що всі коефіцієнти системи рівнянь (7.13), за винятком сталої розпаду, вважаються залежними від координати x та часу t .

Сумарна концентрація всіх форм радіонуклідів C , що розглядаються, приймається рівною

$$C(x, t) = C_1(x, t) + C_2(x, t) + C_3(x, t) + C_4(x, t).$$

Початкові умови, що відповідають миттєвому випаданню радіонуклідів на поверхню землі (дуже короткий проміжок часу в порівнянні з часом міграції), мають вигляд:

$$\begin{aligned} C_1|_{t=0} &= (1 - Q_0)C_0\delta(x - \varepsilon), \\ C_2|_{t=0} &= C_3|_{t=0} = 0, \\ C_4|_{t=0} &= Q_0C_0\delta(x - \varepsilon), \quad \varepsilon \rightarrow 0, \end{aligned} \quad (7.14)$$

де Q_0 – частка радіонукліду, який міститься у паливній компоненті на момент випадань, $C_0 \equiv const$ – сумарна поверхнева густина забруднення території радіонуклідом, $\delta(x)$ – дельта-функція Дірака.

Оскільки, в рамках вибраної моделі, радіоактивні випадання відбулися миттєво, то потік водорозчинної і паливної компонент з атмосфери у ґрунт при $t > 0$ буде рівний нулю і граничні умови у даному випадку мають вигляд:

$$\begin{aligned} \left[-D \frac{\partial C_1}{\partial x} + vC_1 \right]_{x=0} &= 0, \\ \left[-D \frac{\partial C_2}{\partial x} + vC_2 \right]_{x=0} &= 0, \end{aligned}$$

РОЗДІЛ 7

$$\left[-D_4 \frac{\partial C_4}{\partial x} \right]_{x=0} = 0,$$

$$C_1|_{x \rightarrow \infty} = C_2|_{x \rightarrow \infty} = C_3|_{x \rightarrow \infty} = C_4|_{x \rightarrow \infty} = 0. \quad (7.15)$$

З розглядуваної моделі випливають відомі в літературі часткові випадки, зокрема, випадання водорозчинних форм радіонуклідів ($Q_0 = 0$) в однорідному шарі без врахування сорбції ($b = 0$) і комплексоутворення ($g = 0$), а також з врахуванням тільки процесів сорбції, коли процеси десорбції незначні.

Зокрема, на основі цієї моделі кількісно проаналізовано міграцію в шарі радіоізоотопів цезію, стронцію і плутонію, які випали в результаті Чорнобильської аварії у вигляді паливних і розчинних компонент.

При проведенні спеціальних досліджень, як правило оцінюються тільки окремі параметри, наприклад, коефіцієнт розподілу, параметри, зв'язані з міграцією паливних частинок, тощо.

Значення ефективних параметрів D , v , b , D_4 , a , g оцінюються за результатами обробки експериментальних досліджень, які зроблені на основі вибраної для теоретичних досліджень моделі, наприклад методом найменших квадратів.

Як приклад теоретичного дослідження міграції радіонуклідів в роботі [42] наводяться результати розрахунку, отримані для експериментальної ділянки, розміщеної на відстані 12 км від ЧАЕС. Забруднення цієї ділянки були в основному представлені паливними частинками. В їх складі випало близько 100 % ^{90}Sr і $^{239,240}\text{Pu}$ та біля 80 % ^{137}Cs . Ґрунт даної ділянки – однорідний на глибину 0,2-0,25 м, дерново-підзолістий сушісковий.

РОЗДІЛ 7

Таблиця 7.3

Значення параметрів моделі [42] для різних радіонуклідів у дерново-підзолистому супіщовому ґрунті

Радіо- нуклід	$D, \text{м}^2/\text{с}$	$b, \text{с}^{-1}$	$g, \text{с}^{-1}$	K_p
^{90}Sr	$(9,51 \pm 2,2) \cdot 10^{-11}$	$(1,27 \pm 0,9) \cdot 10^{-8}$	$(7,6 \pm 3,8) \cdot 10^{-8}$	10
$^{239,240}\text{Pu}$	$(3,9 \pm 1,2) \cdot 10^{-13}$	$(2,76 \pm 0,8) \cdot 10^{-8}$	$(1,9 \pm 1,2) \cdot 10^{-9}$	550
^{137}Cs	$(3,61 \pm 0,2) \cdot 10^{-11}$	$(7,61 \pm 0,1) \cdot 10^{-7}$	$(1,84 \pm 0,1) \cdot 10^{-8}$	300

Для розрахунків параметрів для ^{90}Sr і $^{239,240}\text{Pu}$ використано дані спостережень за 1991 рік, а для ^{137}Cs – за 1990, 1992, 1993 роки. Оцінку параметрів проводили за умови, що величини ν , D_4 і a однакові для всіх типів радіонуклідів, а саме: $\nu = (2,73 \pm 0,06) \cdot 10^{-10} \text{ м/с}$, $D_4 = (1,9 \pm 0,6) \cdot 10^{-13} \text{ м}^2/\text{с}$, $a = (1,9 \pm 0,3) \cdot 10^{-9} \text{ с}^{-1}$. Значення інших параметрів (D, b, g, K_p) наведено у табл. 7.3.

Таблиця 7.4

Прогнозовані значення абсолютних часток різних форм радіонуклідів

Форма радіонукліду	^{90}Sr	$^{239,240}\text{Pu}$	^{137}Cs
Іонно-обмінна, C_1	0,62	0,04	0,035
Розчинна, C_2	0,008	0,02	0,003
Сорбована, C_3	0,072	0,64	0,721
Паливна, C_4	0,3	0,3	0,241

В таблиці 7.4 подано розраховані за моделлю (7.13)-(7.15) прогнозовані значення абсолютних часток різних форм радіонуклідів.

7.2. Дослідження вертикальної міграції радіонуклідів у могильнику

Для опису міграції радіонуклідів через захисні екрани могильника у роботі [3] запропоновано дифузійно-конвективну модель перенесення домішок. В моделі розглядається шар радіоактивних матеріалів поблизу поверхні ґрунту, оточений захисними екранами (екраном може бути і простий шар ґрунту). Допускається, що радіонукліди у ґрунті перебувають у п'ятьох фізико-хімічних формах: дрібнодисперсні паливні частинки з концентрацією C_1 ; вільні іони ґрунтового розчину (C_{2L}); іони, сорбовані на поверхні мінералів (C_{2S}); радіонукліди, що незворотно проникли у кристалічну ґратку мінералів (C_3); радіонукліди, які утворили розчинні органічні сполуки з гуміновими і фульвокислотами (C_4). Ці форми радіонуклідів трансформуються і переходять одна в одну. Запропонована модель описується системою диференціальних рівнянь

$$\begin{aligned} \frac{\partial C_1}{\partial t} &= \frac{\partial}{\partial x} \left(D_1 \frac{\partial C_1}{\partial x} \right) - k_{12} C_1 - \lambda C_1, \\ \frac{\partial C_{2L}}{\partial t} &= \frac{\partial}{\partial x} \left(D_{2L} \frac{\partial C_{2L}}{\partial x} \right) - u_{2L} \frac{\partial C_{2L}}{\partial x} + k_{12} C_1 - k_{24} C_{2L} - \\ &\quad - \beta (K_d C_{2L} - C_{2S}) - \lambda C_{2L}, \\ \frac{\partial C_{2S}}{\partial t} &= \frac{\partial}{\partial x} \left(D_{2S} \frac{\partial C_{2S}}{\partial x} \right) - k_{23} C_{2S} + \beta (K_d C_{2L} - C_{2S}) - \lambda C_{2S}, \\ \frac{\partial C_3}{\partial t} &= \frac{\partial}{\partial x} \left(D_3 \frac{\partial C_3}{\partial x} \right) + k_{23} C_{2S} - \lambda C_3, \\ \frac{\partial C_4}{\partial t} &= \frac{\partial}{\partial x} \left(D_4 \frac{\partial C_4}{\partial x} \right) - u_4 \frac{\partial C_4}{\partial x} + k_{24} C_{2L} - \lambda C_4, \end{aligned} \quad (7.16)$$

РОЗДІЛ 7

де $D_1, D_{2L}, D_{2S}, D_3, D_4$ – коефіцієнти дифузії радіонуклідів у матриці паливних частинок, у ґрунтовому розчині, сорбованих іонів на поверхні мінералів, незворотно фіксованих у кристалічній ґратці, у розчинних комплексних сполуках відповідно; u_{2L}, u_4 – швидкість конвективного перенесення радіонуклідів у ґрунтовому розчині та у формі розчинних комплексних сполук відповідно; k_{12}, k_{23}, k_{24} – кінетичний коефіцієнт вилугування, фіксації в кристалічній ґратці і комплексоутворення відповідно; K_d – коефіцієнт розподілу; β – постійна масоперенесення.

Система рівнянь (7.16) доповнена граничними

$$\left(J_i = -D_i \frac{\partial C_i}{\partial x} + u_i C_i \right) \Big|_{x=0}^{x=L} = 0, \quad i = 1, 2L, 2S, 3, 4 \quad (7.17)$$

та початковими умовами

$$\begin{aligned} C_1(x, t) \Big|_{t=0} &= C(x), \\ C_{2L}(x, t) = C_{2S}(x, t) = C_3(x, t) = C_4(x, t) \Big|_{t=0} &= 0. \end{aligned} \quad (7.18)$$

Тут J_i – дифузійний потік радіонуклідів у стані i , L – товщина шару.

В роботі проведено числове дослідження вертикальної міграції ^{137}Cs і ^{90}Sr в могильнику, в якому у початковий момент часу концентрація постійна $C(x) = 1 \text{ см}^{-1}$ (в умовних одиницях) і $C(x) = 0$ в межах екранів.

При розрахунках вибрані такі значення параметрів: $\beta = 1$ відповідно до рекомендацій МАГАТЕ (встановлення рівноваги

РОЗДІЛ 7

між формами C_{2L} і C_{2S} описується зовнішньо-дифузійною кінетикою), $K_d^{Cs} = 100$ і $K_d^{Sr} = 5$ [3].

При розрахунках прийнято для коефіцієнтів дифузії наступні значення – $D_1 = 4,2 \cdot 10^{-13} \text{ м}^2/\text{с}$, $D_{2L} = D_4 = 9,51 \cdot 10^{-11} \text{ м}^2/\text{с}$, $D_{2S} = 9,51 \cdot 10^{-12} \text{ м}^2/\text{с}$ і $D_3 = 1,74 \cdot 10^{-13} \text{ м}^2/\text{с}$; для швидкості конвективного перенесення $u_{2L} = u_4 = 3,17 \cdot 10^{-10} \text{ м/с}$.

Коефіцієнти швидкості трансформації форм для ^{137}Cs мають такі значення: $k_{12} = 3,17 \cdot 10^{-9} \text{ с}^{-1}$, $k_{23} = 7,0 \cdot 10^{-9} \text{ с}^{-1}$, $k_{24} = 1,59 \cdot 10^{-9} \text{ с}^{-1}$, а для ^{90}Sr відповідно $k_{12} = 1,53 \cdot 10^{-9} \text{ с}^{-1}$, $k_{23} = 3,17 \cdot 10^{-10} \text{ с}^{-1}$, $k_{24} = 1,59 \cdot 10^{-9} \text{ с}^{-1}$.

На основі виконаних розрахунків автори [3] стверджують, що кінетика процесів вилугування, сорбції та десорбції, незворотного проникнення в кристалічну ґратку мінералів та утворення сполук з органічними компонентами ґрунту суттєво впливає на міграцію радіонуклідів. Хоча значна частина радіонуклідів знаходиться в нерозчинній формі і не зазнає помітної міграції за профілем ґрунту, існує також певна частка (через 10 років для цезію менше 1 % і для стронцію порядку 10 %) розчинних форм радіонуклідів, що характеризуються більшою рухливістю.

7.3. Дослідження вертикальної міграції радіонуклідів у приповерхневих шарах

Одним з найважливіших показників радіаційної ситуації на забруднених територіях є вміст радіонуклідів у приповерхневих шарах ґрунту. Він впливає на ступінь забруднення повітря, поверхневого стоку з водозаборів у ріки та озера і проникнення радіонуклідів углиб ґрунту. Моделювання міграційних процесів радіонуклідів у приповерхневих шарах має деякі особливості у

РОЗДІЛ 7

зв'язку з впливом біологічних чинників, пов'язаних з життєдіяльністю ґрунтової фауни і рослин.

Автори роботи [19] на основі методів математичного моделювання та експериментальних досліджень на тестових полігонах проводять визначення емпіричних залежностей вмісту радіонуклідів від часу у приповерхневих шарах ґрунту 0-0,05 м.

Дослідження вертикального розподілу радіонуклідів проводились протягом 1986–1992 років для типових ґрунтів 30-кілометрової зони ЧАЕС: дерново-підзолистий супісковий (с.Стара Рудня), дерново-підзолистий, старозораний супісковий (с.Корогод), дерново-підзолистий старозораний легкосуглинистий (м.Чорнобиль), дерново-середньопідзолистий легкосуглинистий (с.Клівіни), алювіальний дерновий кислий супісковий (с.Бенівка і лівобережна заплава р. Прип'ять), алювіальний дерновий кислий легкосуглинистий (с.Рудня Ільїнецька). Відбір проб проводився головним чином на цілинних ґрунтах.

За період відбору проб у шарі 0-0,05 м частка ^{137}Cs зменшилася від 100 % у 1986 році до менше 10 % у 1992 році.

Для розрахунку зміни концентрації радіонуклідів у ґрунтах в результаті їхньої вертикальної міграції і радіоактивного розпаду автори роботи [19] використали наступне рівняння

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D_{ef} \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - u \frac{\partial C}{\partial x} - \lambda C, \quad (7.19)$$

де C – концентрація радіонуклідів; D_{ef} – ефективний коефіцієнт дифузії; u – ефективна швидкість конвективного переносу; λ – стала радіоактивного розпаду.

Для виведення залежності від часу частки радіонукліду, що знаходиться у поверхневому шарі ґрунту ($\Delta_{0,5}$), використо-

РОЗДІЛ 7

увались розв'язки рівняння (7.19) при одноразовому поступленні радіонукліду на поверхню ґрунту в момент часу $t = 0$. Тоді

$$C(x, t) = \frac{C_s}{\sqrt{\pi D_{ef} t}} \exp \left[-\frac{(x - ut)^2}{4 D_{ef} t} - \lambda t \right], \quad (7.20)$$

де C_s – густина поверхневого забруднення ґрунту ($\text{Бк}/\text{см}^2$).

При незначному внеску конвекції ($u \rightarrow 0$) у процес міграції радіонукліду з формули (7.20) маємо

$$C(x, t) = \frac{C_s}{\sqrt{\pi D_{ef} t}} \exp \left[-\frac{x^2}{4 D_{ef} t} - \lambda t \right]. \quad (7.21)$$

Функція $\Delta_{0,5}$ апроксимувалась наступним чином

$$\Delta_{0,5} = \frac{C(x, t)|_{x=0,25}}{2C_s},$$

де $C(0,25, t)$ – концентрація радіонукліду на глибині $2,5 \cdot 10^{-3}$ м в момент часу t , яка розрахована за розв'язками (7.20) або (7.21).

Параметри для цих розв'язків знаходились за експериментальними даними методом найменших квадратів.

Крім цих двох залежностей в роботі розглянуто та досліджено випадок експоненціальної залежності зміни концентрації радіонуклідів

$$\Delta_{0,5} = \exp(-kt), \quad (7.22)$$

де k – константа (с^{-1}).

РОЗДІЛ 7

Розраховані значення параметрів для ^{137}Cs за трьома залежностями подано у таблиці 7.5.

Таблиця 7.5

Параметри залежностей $\Delta_{0,5}$ (^{137}Cs)

Залежність	Параметри
(7.20)	$D_{ef} = (3,17 \pm 0,6) \cdot 10^{-13} \text{ м}^2/\text{с}; u = (8,9 \pm 0,63) \cdot 10^{-11} \text{ м/с}$
(7.21)	$D_{ef} = (5,1 \pm 0,63) \cdot 10^{-13} \text{ м}^2/\text{с}$
(7.22)	$k = (1,3 \pm 0,06) \cdot 10^{-8} \text{ с}^{-1}$

Ці значення ефективних коефіцієнтів дифузії для ^{137}Cs добре узгоджуються з експериментальними даними, отриманими для ґрунтів 30-кілометрової зони. Проведено порівняння отриманих значень ефективних коефіцієнтів дифузії з теоретичною оцінкою ефективного коефіцієнту дифузії D_e забруднюючої речовини в пористому сорбуючому середовищі за формулою Міллінгтона-Квірка [123]:

$$D_e = D_m \theta^{10/3} / n_s^2 R,$$

де D_m – коефіцієнт молекулярної або іонної дифузії ($\text{м}^2/\text{с}$); θ – об'ємна частка води у ґрунті; R – фактор адсорбційного сповільнення; n_s – пористість ґрунту.

Фактор адсорбційного сповільнення для ^{137}Cs у кислих ґрунтах приблизно рівний оберненій величині до частки вмісту водорозчинної форми. Так частка водорозчинної форми ^{137}Cs у ґрунтах 30-кілометрової зони в перші роки після аварії складала біля 0,5 %, а значить $R \approx 200$. Враховуючи, що усереднені значення θ і n_s рівні 0,25 і 0,5 відповідно, а $D_m \approx 1,0 \cdot 10^{-9} \text{ м}^2/\text{с}$,

РОЗДІЛ 7

отримуємо середнє значення для 30-кілометрової зони $D_e \approx 3,1 \cdot 10^{-13} \text{ м}^2/\text{с}$. Така оцінка ефективного коефіцієнту дифузії добре узгоджується зі значеннями D_{ef} , які отримані на основі залежностей (7.20) і (7.21).

В припущенні, що перенос радіонуклідів у ґрунті відбувається тільки у розчиненій формі, оцінка параметра u суттєво відрізняється від даних таблиці 7.5.

Швидкість конвективного переносу може бути оцінена за формулою

$$u = I_{inf} / n_s R,$$

де I_{inf} – середня швидкість інфільтрації дощової води (м/с).

В типових умовах 30-кілометрової зони ЧАЕС середньорічна швидкість інфільтрації складає $1,17 \cdot 10^{-9} \text{ м/с}$, і, відповідно конвективна складова u приймає значення $1,17 \cdot 10^{-11} \text{ м/с}$, що на порядок менше, ніж розраховане значення зміни частки радіонукліду в шарі $(0-0,5) \cdot 10^{-2} \text{ м}$. Це пояснюється тим, що в поверхневому шарі суттєвий вклад у вертикальну міграцію вносять механічні і біологічні процеси, які приводять в основному до конвективного переносу радіонуклідів.

Результати розрахунків і їхнє порівняння з експериментальними даними, показують, що в перші роки після аварії оптимальним типом часової залежності вмісту радіонуклідів у приповерхневому шарі була експоненціальна залежність.

Експоненціальну залежність з тою самою константою, що і для ^{137}Cs , можна використовувати також для прогнозування вмісту ^{134}Cs , ^{106}Ru і ^{144}Ce у 5-міліметровому шарі ґрунту. Такий висновок можна зробити з порівняння вертикального розподілу цих радіонуклідів у верхньому 5-міліметровому шарі ґрунту у пробах, відібраних у 1986 – 1990 роках.

7.4. Математичні моделі гетеродифузії у дослідженні міграції забруднень

Аналіз існуючих експериментальних даних показує, що в більшості випадків при кількісному описі процесів переносу радіонуклідів можна вважати, що в кожній довільно вибраній малій частині ґрунту завжди міститься крім частинок, які складають його базові компоненти (скелет і поровий розчин), макроскопічне число радіоактивних частинок одного сорту у трьох фізично різних станах. Ці стани відповідають їхньому знаходженню у конвективно рухомому поровому розчині, у зв'язаних з поверхнею твердих складових ґрунту адсорбованих шарах води та в об'ємі мінеральних складових скелету [20]. При цьому коефіцієнти дифузії частинок у поровому розчині є на декілька порядків більші, ніж у зв'язаних шарах води, а в об'ємі скелету частинки радіонуклідів практично не дифундують, тобто знаходяться в „пастках”. Квазірівноважний розподіл між цими різними станами істотно залежить від типу радіонуклідів і фізико-хімічних властивостей ґрунту.

Означимо концентрації радіонукліду у цих станах через C_i ($i = 1, 2, 3$). Для ізотропного середовища за відсутності макроскопічної фільтрації порового розчину та ізотермічних умов і нехтуванні процесами деформації середовища, концентрації C_i ($i = 1, 2, 3$) визначаються з такої системи рівнянь при відповідних початкових і граничних умовах [21]

$$\frac{\partial C_1}{\partial \tau} = D_1 \Delta C_1 + D_{12} \Delta C_2 - k_1 C_1 + k C_2,$$

$$\frac{\partial C_2}{\partial \tau} = D_{21} \Delta C_1 + D_2 \Delta C_2 + k_1 C_1 - (k + k_3) C_2 + k_2 C_3,$$

РОЗДІЛ 7

$$\frac{\partial C_3}{\partial \tau} = k_3 C_2 - k_2 C_3, \quad (7.23)$$

де D_1 – коефіцієнт дифузії радіонуклідів у поровому розчині, D_2 – коефіцієнт дифузії домішкових частинок в адсорбованій воді, D_{12} і D_{21} – перехресні коефіцієнти дифузії; k – коефіцієнт інтенсивності переходу частинок з адсорбованої води у поровий розчин, k_1 – коефіцієнт інтенсивності переходу радіонуклідів з розчину в адсорбовану воду, k_2 – коефіцієнт інтенсивності переходу зі скелегу в адсорбовану воду, k_3 – коефіцієнт інтенсивності зворотного переходу; $\Delta = \vec{\nabla} \cdot \vec{\nabla}$ – оператор Лапласа, $\vec{\nabla} = \vec{i} \partial / \partial x + \vec{j} \partial / \partial y + \vec{k} \partial / \partial z$ – оператор Гамільтона, $\vec{i}, \vec{j}, \vec{k}$ і x, y, z – одиничні орти і просторові координати прямокутної системи координат, τ – час.

Систему (7.23) перепишемо у безрозмірній формі, ввівши безрозмірні змінні $t = k\tau$ – безрозмірний час, $\xi = (k/D_1)^{1/2} x$, $\eta = (k/D_1)^{1/2} y$, $\zeta = (k/D_1)^{1/2} z$ – безрозмірні просторові координати. У введених безрозмірних змінних означимо $\Delta_\xi = \vec{\nabla}_\xi \cdot \vec{\nabla}_\xi$ – оператор Лапласа, $\vec{\nabla}_\xi = \vec{i} \partial / \partial \xi + \vec{j} \partial / \partial \eta + \vec{k} \partial / \partial \zeta$ – оператор Гамільтона, $d = D_2/D_1$, $d_1 = D_{12}/D_1$, $d_2 = D_{21}/D_1$, $a = k_1/k$, $a_1 = k_2/k$, $a_2 = k_3/k$ – безрозмірні коефіцієнти дифузії та процесів переходу частинок з одного стану в інший. Тоді

$$\frac{\partial C_1}{\partial t} = \Delta_\xi C_1 + d_1 \Delta_\xi C_2 - a C_1 + C_2,$$

РОЗДІЛ 7

$$\begin{aligned}\frac{\partial C_2}{\partial t} &= d_2 \Delta_{\xi} C_1 + d \Delta_{\xi} C_2 + a C_1 - (1 + a_2) C_2 + a_1 C_3, \\ \frac{\partial C_3}{\partial t} &= a_2 C_2 - a_1 C_3.\end{aligned}\tag{7.24}$$

Для дослідження вертикальної дифузії радіонуклідів у ґрунті з системи рівнянь (7.24) отримуються часткові випадки:

а) *модель гетеродифузії двома шляхами з урахуванням переходів частинок та пасток на одному з них*

$$\begin{aligned}\frac{\partial C_1}{\partial t} &= \frac{\partial^2 C_1}{\partial \xi^2} + d_1 \frac{\partial^2 C_2}{\partial \xi^2} - a C_1 + C_2, \\ \frac{\partial C_2}{\partial t} &= d_2 \frac{\partial^2 C_1}{\partial \xi^2} + d \frac{\partial^2 C_2}{\partial \xi^2} + a C_1 - (1 + a_2) C_2 + a_1 C_3, \\ \frac{\partial C_3}{\partial t} &= a_2 C_2 - a_1 C_3;\end{aligned}\tag{7.25}$$

б) *модель гетеродифузії двома шляхами (в умовах рівноваги між станами 2 і 3)*

$$\begin{aligned}\frac{\partial C_1}{\partial t} &= \frac{\partial^2 C_1}{\partial \xi^2} + d_1^e \frac{\partial^2 C_2^e}{\partial \xi^2} - a C_1 + a^e C_2^e, \\ \frac{\partial C_2^e}{\partial t} &= d_2 \frac{\partial^2 C_1}{\partial \xi^2} + d^e \frac{\partial^2 C_2^e}{\partial \xi^2} + a C_1 - a^e C_2^e;\end{aligned}\tag{7.26}$$

РОЗДІЛ 7

в) модель дифузії домішки в середовищі з ефективними характеристиками та пастками (в умовах рівноваги між станами 1 і 2)

$$\begin{aligned}\frac{\partial C_1^e}{\partial t} &= d_{12}^e \frac{\partial^2 C_1^e}{\partial \xi^2} - a_2^e C_1^e + a_1 C_3, \\ \frac{\partial C_3}{\partial t} &= a_2^e C_1^e - a_1 C_3;\end{aligned}\quad (7.27)$$

г) модель дифузії в середовищі з ефективними характеристиками (в умовах рівноваги між станами 1, 2 і 3)

$$\frac{\partial C_{ef}}{\partial t} = d_{ef} \frac{\partial^2 C_{ef}}{\partial \xi^2}.\quad (7.28)$$

При цьому в моделі гетеродифузії двома шляхами концентрації C_2 і C_3 у станах 2 і 3 визначаються з виразів

$$C_2 = a^e C_2^e, \quad C_3 = b a^e C_2^e;$$

у моделі дифузії домішки в середовищі з ефективними характеристиками та пастками – формулами

$$C_1 = (1+a)^{-1} C_1^e, \quad C_2 = a(1+a)^{-1} C_1^e;$$

у моделі дифузії в середовищі з ефективними характеристиками

$$C_1 = a_1^e C_{ef}, \quad C_2 = aa_1^e C_{ef}, \quad C_3 = baa_1^e C_{ef}.$$

У записаних рівняннях (7.25)-(7.28) $C_2^e = C_2 + C_3$ – сумарна концентрація радіонуклідів у слабков’язаному і зв’язаному станах, $d_1^e = d_1 a^e$ і $d^e = da^e$ – ефективні коефіцієнти дифузії, $a^e = (1+b)^{-1}$ – ефективний кінетичний коефіцієнт, $b = a_2/a_1$ – стала рівноваги щодо обміну частинок між станом 2 і 3; $C_1^e = C_1 + C_2$ – сумарна концентрація у поровому розчині і слабков’язаному стані, $d_{12}^e = [1 + d_2 + (d_1 + d)a](1+a)^{-1}$ – ефективний коефіцієнт дифузії в поровому розчині та адсорбованих шарах води, $a_2^e = a_2 a(1+a)^{-1}$ – ефективний кінетичний коефіцієнт в цьому випадку; $C_{ef} = C_1 + C_2 + C_3$ – сумарна концентрація частинок в ґрунті, $D_{ef} = [(1 + d_2) + (d_1 + d)a]a_1^e$ – ефективний коефіцієнт дифузії в середовищі в цілому, $a_1^e = [1 + a(1+b)]^{-1}$ – стала матеріалу.

Стала a визначається рівноважними значеннями концентрацій C_2^p і C_1^p , тобто $a = C_2^p / C_1^p$, а стала b – концентрацій C_2^p і C_3^p , а саме $b = C_3^p / C_2^p$.

Кількісний опис процесів масопереносу зводиться до розв’язання рівнянь (7.25)-(7.28) при відповідних умовах на концентрації C_i ($i = 1, 2, 3$) на границях середовища і в початковий момент часу. Ці умови наведено для випадку шару товщини ξ_0 .

РОЗДІЛ 7

Прийнято, що в початковий момент часу ($t = 0$) у шарі ґрунту відсутня забруднююча речовина, тобто

$$C_1|_{t=0} = C_2|_{t=0} = C_3|_{t=0} = 0. \quad (7.29)$$

З моменту $t > 0$ на поверхні $\xi = 0$ задано постійні значення концентрації C_1 і C_2 , на нижній границі шару $\xi = \xi_0$ домішкова речовина відсутня, а саме

$$\begin{aligned} C_1|_{\xi=0} &= \alpha C_0, \quad C_2|_{\xi=0} = (1 - \alpha)C_0; \\ C_1|_{\xi=\xi_0} &= C_2|_{\xi=\xi_0} = 0. \end{aligned} \quad (7.30)$$

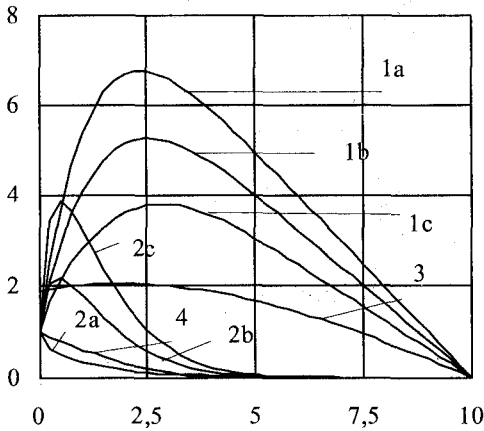
Тут C_0 – сумарна концентрація частинок на поверхні ґрунту, α – параметр задачі ($0 \leq \alpha \leq 1$), який задає частку радіонуклідів, що з поверхні потрапляють на швидкий шлях дифузії (у рідину). Цей параметр у більшості випадків невідомий і повинен визначатися з додаткових умов. Так, при $\alpha = 1$ всі частинки попадають у середовище з водним розчином.

Аналітичні розв'язки рівнянь (7.25)-(7.28) при крайових умовах (7.29)-(7.30) отримано методом інтегральних перетворень.

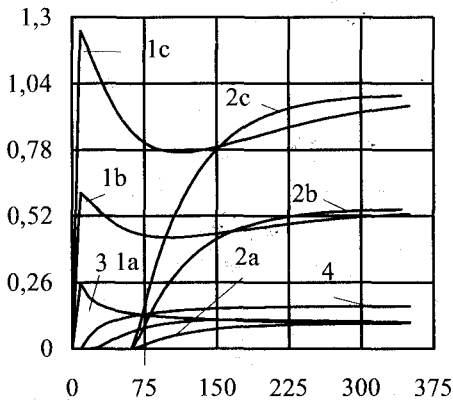
На рис.7.1-7.3 наведено розподіли сумарних концентрацій (а) та потоків (б) домішкової речовини для моделі: з двома шляхами міграції частинок та пастками (криві 1), гетеродифузії двома шляхами (криві 2), дифузії в середовищі з ефективними характеристиками та пастками (криві 3), дифузії в середовищі з ефективними характеристиками (криві 4).

РОЗДІЛ 7

При розрахунках прийнято такі значення характеристик середовища: $\xi_0 = 10$, $d_1 = d_2 = 0$, $a_1 = 0,01$, $a_2 = 0,001$ в момент часу $t = 10$.



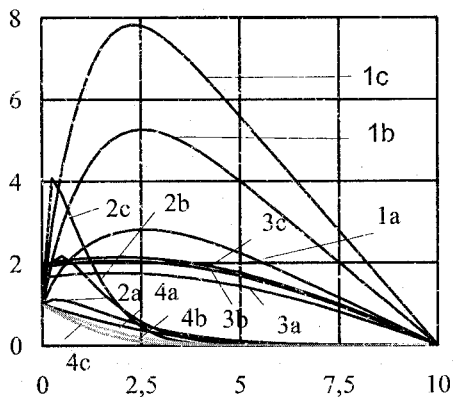
(a)



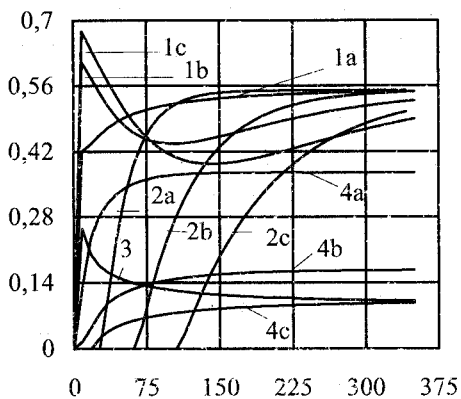
(б)

Рис.7.1 Порівняльні розподіли концентрацій та потоків для різних модельних випадків у залежності від коефіцієнта α

РОЗДІЛ 7



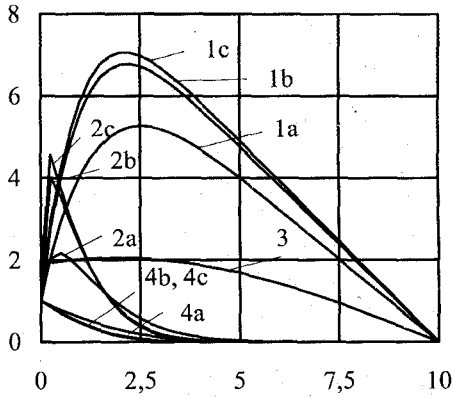
(a)



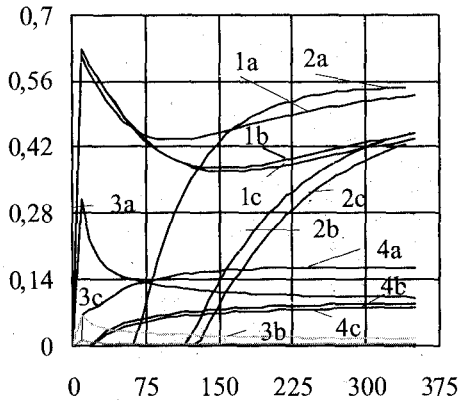
(б)

Рис.7.2. Порівняльні розподіли концентрацій та потоків для різних модельних випадків в залежності від коефіцієнта a .

РОЗДІЛ 7



(a)



(б)

Рис.7.3. Порівняльні розподіли концентрацій та потоків для різних модельних випадків в залежності від коефіцієнта d

РОЗДІЛ 7

На рис.7.1 наведено сумарні концентрації та потоки в залежності від коефіцієнта поверхневого розподілу домішкової речовини між водним поровим розчином та адсорбованою водою (криві а, б, с описують відповідні концентрації для $\alpha = 0; 0,5; 1$ при $d = 0,1, a = 10$). Рис.7.2 ілюструє розподіли концентрацій та потоків для різних значень сталої рівноваги a між станами 1 і 2: криві а, б, с відповідають значенням $a = 2; 10; 100$ при $\alpha = 0,5$. На рис.7.3 подано сумарні концентрації та сумарні потоки в залежності від відношення коефіцієнтів дифузії d , тут $d = 0,1; 0,01; 0,001$ (криві а, б, с відповідно) для $a = 10$.

На рис.7.1-7.3 (а) вздовж осі ординат відкладено відношення сумарної концентрації до її значення на поверхні шару $C(\xi, t)/C_0$, вздовж осі абсцис – безрозмірну координату ξ . На рис.7.1-7.3 (б) вздовж осі ординат відкладено величину потоку віднесеного до $C_0\xi_0$, а вздовж осі абсцис – безрозмірний час t .

Числові розрахунки показали, що наявність пасток сприяє накопиченню домішки в шарі ґрунту. Суттєвий вплив на профілі концентрації забруднення та сумарних потоків домішки має коефіцієнт поверхневого розподілу домішкової речовини між водним поровим розчином та адсорбованими шарами води. Коефіцієнти дифузії та інтенсивності процесів сорбції-десорбції впливають на значення концентрації та потоків, але не змінюють їх якісної поведінки.

7.5. Міграції радіонуклідів у насиченому водою пористому середовищі

В роботах [70, 85, 110] наведено математичні моделі міграції радіонуклідів у насиченому водою пористому середовищі. Подано їх розв'язки і результати модельних числових досліджень.

РОЗДІЛ 7

Крім міграції радіонуклідів, зумовленої дифузійними процесами у ґрунтах має місце переміщення радіонуклідів в іонній формі з ґрунтовим розчином і перенос радіонуклідів, адсорбованих на мікрочастинках, розміром 0,1-1 мкм та на колоїдних частинках [90, 91].

Для вивчення міграції радіонуклідів у насиченому водою водному пористому середовищі можна обмежитися двома станами домішкових речовин: розрізняються частинки, які знаходяться в конвективно рухомому поровому розчині ($i = 1$) і воді, що зв'язана зі скелетом матеріалу ($i = 2$) [20, 21].

Тоді за ізотермічних умов і сталого потоку порового розчину концентрації $C_i(\vec{r}, \tau)$ ($i = 1, 2$) знаходяться з наступної системи рівнянь [20, 21]

$$\begin{aligned} \frac{\partial c_1}{\partial t} + \vec{v} \cdot \vec{\nabla} c_1 &= \vec{\nabla} \cdot (D_{11} \vec{\nabla} c_1 + D_{12} \vec{\nabla} c_2) - \lambda_{11} c_1 + \lambda_{12} c_2, \\ \frac{\partial c_2}{\partial t} &= \vec{\nabla} \cdot (D_{21} \vec{\nabla} c_1 + D_{22} \vec{\nabla} c_2) + \lambda_{11} c_1 - \lambda_{12} c_2, \end{aligned} \quad (7.31)$$

де $c_i = C_i - C_i^0$ – відхилення концентрацій C_i від своїх значень C_i^0 у вихідному стані (приймається як рівноважний); \vec{v} – стала швидкість конвективного руху; D_{ij} – коефіцієнти дифузії ($i, j = 1, 2$); λ_{ij} – кінетичні коефіцієнти процесу переходу частинок з одного стану в інший; $\vec{\nabla}$ – оператор Гамільтона; \vec{r} – радіус-вектор вибраної точки простору, t – час; крапкою між величинами позначено їх скалярний добуток (згортку). Приймається, що тіло вкладене в тривимірний евклідів простір, який віднесений до прямокутної декартової системи координат.

Нехтуючи перехресними ефектами ($D_{12} = D_{21} = 0$) та вводячи у розгляд безрозмірні змінні $\xi = x(\lambda_{12} / D_{11})^{-1/2}$, $\tau = \lambda_{12} t$ і

РОЗДІЛ 7

величини $d = D_{22}/D_{11}$, $v\sqrt{\lambda_{12}/D_{11}} = b$, $a = \lambda_{11}/\lambda_{12}$, зі співвідношень (7.31) отримасмо безрозмірну форму рівнянь для визначення відхилення масових концентрацій частинок $c_i(\vec{r}, t)$ з одновимірному випадку

$$\begin{aligned} \frac{\partial c_i}{\partial \tau} + b \frac{\partial c_i}{\partial \xi} &= \frac{\partial^2 c_i}{\partial \xi^2} - a c_1 + c_2, \\ \frac{\partial c_2}{\partial \tau} &= d \frac{\partial^2 c_2}{\partial \xi^2} + a c_1 - c_2. \end{aligned} \quad (7.32)$$

Нехай $\xi \in [0, \xi_0]$, $\xi_0 = x_0(\lambda_{12}/D_{11})^{-1/2}$, x_0 – товщина шару, а граничні та початкові умови приймаються сталими, тобто

$$c_j(\tau, 0) = c_{j1}, \quad c_j(\tau, \xi_0) = c_{j2}; \quad c_j(0, \xi) = c_{j0}; \quad j = 1, 2. \quad (7.33)$$

Система рівнянь гетеродифузії (7.32) містить малий параметр d ($10^{-6} \leq d \leq 10^{-2}$) і при числовому розв'язанні задачі (7.32)-(7.33) виникають певні труднощі [85]. Тому розв'язок системи (7.32) будувався у вигляді комплексного ряду Фур'є

$$c_j(\tau, \xi) = \sum_{n=-\infty}^{\infty} c_{jn}(\tau) e^{n\pi i \xi / \xi_0}, \quad \xi \in (0, \xi_0). \quad (7.34)$$

Обчислення проводилися при узгоджених

$$c_{j0} = 1, \quad c_{j1} = 1, \quad c_{j2} = 0, \quad \frac{\partial c_{j1}}{\partial \xi} = \frac{\partial c_{j2}}{\partial \xi} = 0, \quad j = 1, 2$$

і неузгоджених початково-крайових умовах

РОЗДІЛ 7

$$c_{11} = 1, \quad c_{j1} = c_{j2} = \frac{\partial c_{j1}}{\partial \xi} = \frac{\partial c_{j2}}{\partial \xi} = c_{20} = 0, \quad j = 1, 2.$$

Коефіцієнти ряду (7.34) записано у вигляді:

$$\begin{aligned} c_{1n}(\tau) &= A_n e^{s_1(n)\tau} + B_n e^{s_2(n)\tau} + c_{1n}(n), \\ c_{2n}(\tau) &= [x_1(n) + \kappa_n] A_n e^{x_1(n)/\tau} + [x_2(n) + \kappa_n] B_n e^{x_2(n)/\tau} + \\ &\quad + \kappa_n c_{1nr}(n) - \delta_{1n}, \end{aligned}$$

де введено позначення

$$A_n = r[(x_2(n) + \kappa_n)c_{10n} - x_2(n)c_{1n}(n) - c_{20n} - \delta_1 \zeta_n],$$

$$B_n = r[c_{20n} - (x_1(n) + \kappa_n)c_{10n} + x_1(n)c_{1n}(n) + \delta_1 \zeta_n],$$

$$\zeta_n = \frac{1}{\mu_n \xi_0}, \quad \nu_n = \frac{1}{n\pi i}, \quad r = \frac{1}{x_2(n) - x_1(n)}, \quad c_{1nr}(n) = \frac{h_3(n)}{h_2(n)},$$

$$\mu_n = \frac{\xi_0}{n^2 \pi^2}, \quad x_1(n) = \frac{1}{2} \left[-h_1(n) + \sqrt{h_1^2(n) - 4h_2(n)} \right],$$

$$c_{j0n} = c_{j0} \nu_n (1 - (-1)^n), \quad j = 1, 2,$$

$$x_2(n) = \frac{1}{2} \left[-h_1(n) - \sqrt{h_1^2(n) - 4h_2(n)} \right],$$

$$h_1(n) = 1 + d\zeta_n + \kappa_n, \quad h_2(n) = [d\kappa_n + 1]\zeta_n + \frac{bn\pi i}{\xi_0},$$

$$\kappa_n = a + \frac{bn\pi i}{\xi_0} + \zeta_n, \quad h_3(n) = [\delta_1 + d(\delta_1 \zeta_n + \delta_2)] \zeta_n,$$

$$\delta_1 = [c_{11} - (-1)^n c_{12}] [\nu_n + b\mu_n] + \mu_n \left[(-1)^n \frac{\partial c_{12}}{\partial \xi} - \frac{\partial c_{11}}{\partial \xi} \right],$$

$$\delta_2 = \nu_n \left[c_{21} - (-1)^n c_{22} \right] + \mu_n \left[(-1)^n \frac{\partial c_{22}}{\partial \xi} - \frac{\partial c_{21}}{\partial \xi} \right].$$

На рис.7.4-7.7 наведено характерні результати обчислень при різних значеннях параметрів задачі.

Малий параметр d має незначний вплив на концентрацію $c_1(\tau, \xi)$, яка пов'язана з переміщенням домішкової речовини у поровому розчині.

Зростання параметра b (конвективної складової) приводить до зростання концентрації $c_1(\tau, \xi)$ в області шару. При цьому як величина проміжку зростання $[\xi_1, \xi_2]$ ($0 < \xi_1 < \xi_2 < \xi_0$), так і його віддаль від початку координат пропорційні до часу τ .

В моделі гетеродифузії істотно змінюється поведінка функції $c_2(\tau, \xi)$ в околі точки $\xi = 0$, як для узгоджених так і не узгоджених початкових та граничних умов. При цьому конвективна складова має значно більший вплив на відхилення концентрації $c_2(\tau, \xi)$, ніж на $c_1(\tau, \xi)$, особливо при великих часах.

Функції $c_1(\tau, \xi)$ та $c_2(\tau, \xi)$ для моделі гетеродифузії завжди мають максимум при великих a , а існування екстремумів при малих a залежить від узгодженості початкових та граничних умов. Зменшення параметру d веде до зростання максимального значення цих функцій. Таке зростання особливо значне при збільшенні параметрів τ та ξ . Так, при зміні параметрів (τ, b, d) від значень $(0,2; 0; 0,1)$ до $(2; 4; 0,001)$, максимум функції $c_2(\tau, \xi)$ зростає більше, ніж у п'ять разів при узгоджених початкових та граничних умовах. Відмітимо, що при d , прямуючому до нуля, значення аргументу ξ_n , при якому досягається максимум функцій $c_1(\tau, \xi)$ та $c_2(\tau, \xi)$, також прямує до нуля.

РОЗДІЛ 7

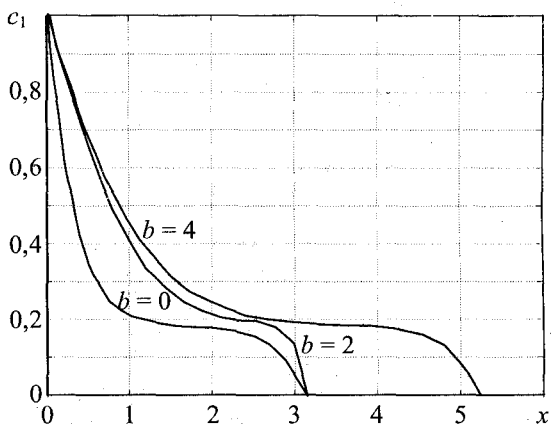


Рис.7.4. Залежність $c_1(\tau, \xi)$ від ξ при $a=10$, $d=0,1$, $\tau=2,0$ та різних значеннях b (початкові та граничні умови узгоджені).

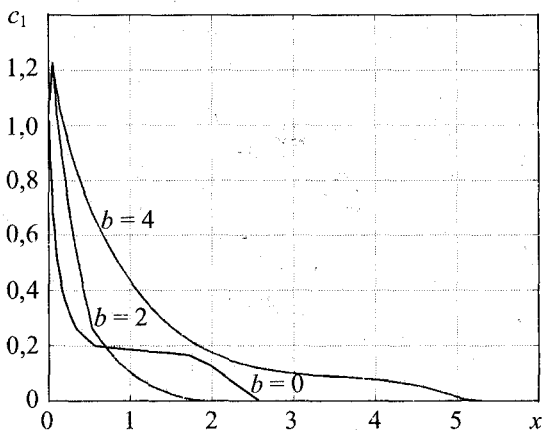


Рис.7.5. Залежність $c_1(\tau, \xi)$ від ξ при $a=10$, $d=0,1$, $\tau=2,0$ та різних значеннях b (початкові та граничні умови неузгоджені).

РОЗДІЛ 7

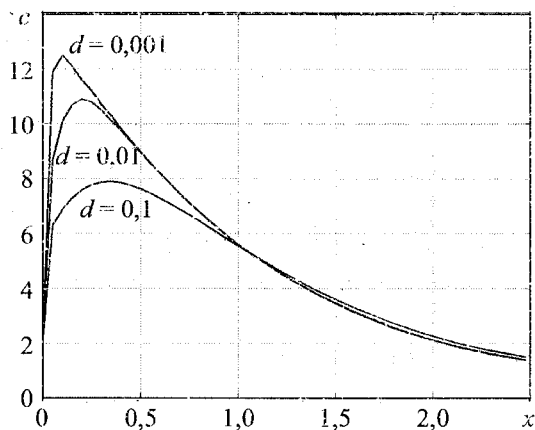


Рис.7.6. Залежність відхилення сумарної концентрації від ξ при $a=10$, $b=4$, $\tau=2$ і різних значеннях d (початкові та граничні умови узгоджені).

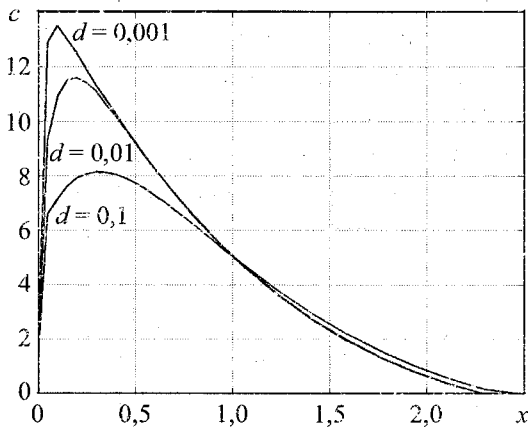


Рис.7.7. Залежність відхилення сумарної концентрації від ξ при $a=10$, $b=4$, $\tau=2$ і різних значеннях d (початкові та граничні умови неузгоджені).

РОЗДІЛ 7

Детальне дослідження та аналіз переміщення домішок при врахуванні різних шляхів міграції наведено в роботі [85].

Експериментальні дані показують, що значна частина цезію і стронцію зв'язана з найбільш рухливими мікрочастинками ґрунту. Це приводить до переносу радіоактивних забруднень у ґрунтові води з поверхневих шарів ґрунтів, яким властива мала сорбційність по відношенню до радіонуклідів [90, 91]. Для вивчення і прогнозування поведінки радіонуклідів у таких ґрунтах доцільно використовувати наведену у даній роботі математичну модель і часткові випадки, що впливають з неї.

ЛІТЕРАТУРА

1. Авдеев В.А., Бирюков Е.И., Кривохагский А.С., Сенифонов В.Н., Смирнова Е.А. Выщелачивание радионуклидов растворами различного состава из проб почвы, отобранных в районе Чернобыльской АЭС в 1986 г. // Радиохимия. – 1990. – Т.32, №2. – С. 59-64.
2. Авдеев В.А., Кривохагский А.С., Савоненков В.Г., Смирнова Е.А. Выщелачивание радионуклидов из частиц ядерного топлива и реакторного графита, выделенных из проб 30-километровой зоны Чернобыльской АЭС // Радиохимия. – 1990. – Т.32, №2. – С. 55-59.
3. Авраменко В.І., Кузьменко М.В., Сименюк І.В., Ситниченко А.І. Вертикальна міграція радіонуклідів у приповерхневих похованнях радіоактивних матеріалів // Доповіді АН України. – 1994. – №1. – С. 57-60.
4. Агапкина Г.И. Многолетняя динамика ^{90}Sr в жидкой фазе лесных почв в зоне отчуждения Чернобыльской АЭС // Почвоведение. – 1999. – №8. – С. 1009-1014.
5. Агеев В.А., Выричек С.А., Левшин Е.Б., Одинцов А.А., Осмоловская Н.К., Осташко В.В., Урин В.Н. Распределение трансурановых элементов в 30-километровой зоне ЧАЭС // Доповіді АН України. – 1994. – №1. – С. 60-66.
6. Батій В.Г. Розробка комп'ютерних моделей вимірвальних методик та приладів для підвищення безпеки на ядерно-радіаційних об'єктах // Проблеми безпеки атомних електростанцій і Чорнобиля. – 2010. – Вип.13. – С. 159-160.
7. Батій В.Г., Рубежанський Ю.І., Сізов А.О., Федорченко Д.В., Хажмурадов М.А. Досвід застосування математичного моделювання в роботах по забезпеченню радіаційної безпеки // Проблеми безпеки атомних електростанцій і Чорнобиля. – 2009. – Вип.11. – С. 93-103.

8. Бобовникова Ц.И., Махонько К.П., Сиверина А.А., Работнова Ф.А., Гутарева В.П., Волокитин А.А. Физико-химические формы радионуклидов в атмосферных выпадениях после аварии на Чернобыльской АЭС и их трансформация в почве // Атомная энергия. – 1991. – Т.71, №5. – С. 449-454.
9. Богатов С.А., Криницын А.П., Пазухин Э.М. Изотопы плутония в лавообразных топливосодержащих материалах разрушенного 4-го энергоблока ЧАЭС // Радиохимия. – 1999. – Т.41, №4. – С. 379-384.
10. Богданович Н.Г., Коновалов Э.Е., Старков О.В., Кочеткова Е.А., Грушичева Е.А., Шумская В.Д., Емельянов В.П., Мышковский М.П. Сорбционное выделение из жидких радиоактивных отходов цезия и стронция и их иммобилизация в геоцементы // Атомная энергия. – 1998. – Т.84, №1. – С. 16-20.
11. Бондаренко Г.Н., Кононенко Л.В. Кинетика мобилизации радионуклидов в почвах // Доповіді НАН України. – 1997. – №2. – С. 108-113.
12. Бондарь Ю.И., Шманай Г.С., Ярмолевич Т.Л. Исследование подвижности радионуклидов в почве и их потенциальной доступности растениям ионно-обменным методом // Почвоведение. – 1995. – №6. – С. 714-717.
13. Боровой А.А., Гагаринский А.Ю. Выброс радионуклидов из разрушенного блока Чернобыльской АЭС // Атомная энергия. – 2001. – Т.90, №2. – С. 137-145.
14. Боровой А.А., Галкин Б.Я., Драпчинский Л.В., Криницын А.П., Пазухин Э.М., Петров Б.Ф., Плещачевский Л.А., Чечеров К.П. Новообразованные продукты взаимодействия топлива с конструкционными материалами // Радиохимия. – 1991. – Т.33, №4. – С. 177-196.
15. Боровой А.А., Галкин Б.Я., Криницын А.П., Пазухин Э.М., Херувимов А.Н., Чечеров К.П., Андерсон Е.Б. Новообразованные продукты взаимодействия топлива с

- конструкционными материалами 4-го блока АЭС // Радиохимия. – 1991. – Т.33, вып.4. – С. 197-210.
16. Боровой А.А., Лагуненко А.С., Пазухин Э.М. Радиохимические и некоторые физико-химические характеристики образцов лавы и бетона из подреакторного помещения 304/3 4-го блока ЧАЭС. Их связь со сценарием аварии // Радиохимия. – 1999. – Т.41, №2. – С. 187-192.
 17. Булгаков А.А. Моделирование фиксации ^{137}Cs в почвах // Почвоведение. – 2009. – №6. – С. 726-732.
 18. Булгаков А.А., Коноплев А.В. Моделирование долговременной трансформации форм нахождения ^{90}Sr в почвах // Почвоведение. – 2005. – №7. – С. 825-831.
 19. Булгаков А.А., Коноплев А.В., Шкуратова И.Г. Динамика содержания ^{137}Cs в поверхностном слое почв 30-километровой зоны Чернобыльской атомной электростанции // Почвоведение. – 2000. – №9. – С. 1149-1152.
 20. Бурак Я.Й., Чапля Є.Я. Вихідні положення математичної моделі гетеродифузного переносу радіонуклідів у приповерхневих шарах землі // Доповіді АН України. – 1993. – №10. – С. 59-63.
 21. Бурак Я.Й., Чапля Є.Я., Чернуха О.Ю. Про вертикальну міграцію радіонуклідів у ґрунті // Доповіді НАН України. – 1995. – №10. – С. 34-37.
 22. Вакуловский С.М., Газиєв Я.И., Колесникова Л.В., Мартыненко В.П., Петренко Г.И., Тертышник Э.Г., Уваров А.Д. Содержание и вертикальная миграция ^{137}Cs в почве береговых зон двух озер Брянской области // Атомная энергия. – 2007. – Т.102, №5. – С.306-311.
 23. Гаргер Є.К., Кашпур В.О., Шинкаренко В.К. Дослідження радіоактивного аерозолі в приземному шарі на промисловому та будівельному майданчиках об'єкта „Укриття”, створення мобільного аерозольного комплексу для досліджень у зонах спостережень та санітарно-

- захисній зоні АЕС // Проблеми безпеки атомних електростанцій і Чорнобиля. – 2010. – Вип. 13. – С. 162-163.
24. Гаргер Є.К., Прістер Б.С., Талерко М.М. Розробка моделей і програмних продуктів розсіювання нестационарних викидів АЕС, процесів забруднення об'єктів навколишнього середовища // Проблеми безпеки атомних електростанцій і Чорнобиля. – 2010. – Вип. 13. – С. 160-161.
25. Глушак П.А., Захар'яш О.С., Мохняк С.М., Сов'як Є.М., Токарчук М.В. Теоретичний опис реакційно-електродифузійних процесів переносу іонів, електронів, молекул води у системі „водний розчин-ЛПВМ” // Проблеми безпеки атомних електростанцій і Чорнобиля. – 2008. – Вип.9. – С. 100-109.
26. Гончарук В.Є., Лянце Г.Т., Чапля Є.Я., Чернуха О.Ю. Фізико-математичне моделювання процесів переносу радіоактивних забруднень // Екологія довкілля та безпека життєдіяльності. – 2002. – №1. – С. 77-82.
27. Горяченкова Т.А., Казинская И.Е., Кузовкина Е.В., Новиков А.П., Мясоедов Б.Ф. Изучение связи радионуклидов с коллоидным веществом почвенных растворов // Радиохимия. – 2009. – Т.51, №2. – С. 178-186.
28. Давыдов Ю.П., Вороник Н.И., Торопов И.Г. К вопросу о состоянии радионуклидов Cs, Sr, Se в водных системах Беларуси // Радиохимия. – 1997. – Т.38, №2. – С. 191-192.
29. Долін В.В., Бондаренко Г.М., Соботович Е.В. Дифузійний механізм міграції ^{137}Cs і ^{90}Sr паливних випадань ЧАЕС // Доповіді АН УРСР Сер.Б. Геол., хім. та біол. науки. – 1992. – №12. – С. 49-54.
30. Дубасов Ю.В., Кривохатский А.С., Савоненков В.Г., Смирнова Е.А. Состояние и поведение частиц диспергированного топлива, выброшенного из 4-го блока Чернобыльской АЭС // Радиохимия. – 1991. – Т. 33, №1. – С. 96-100.

31. Дубасов Ю.В., Кривохатский А.С., Савоненков В.Г., Сквородкин Н.В. Фракционирование радионуклидов в выпадениях ближней зоны ЧАЭС // Радиохимия. – 1991. – Т. 33, №4. – С. 168-177.
32. Дубасов Ю.В., Кривохатский А.С., Савоненков В.Г., Смирнова Е.А. Разновидности топливных частиц в выпадениях ближней зоны Чернобыльской АЭС // Радиохимия. – 1992. – Т.34, №5. – С.102-103.
33. Дубасов Ю.В., Савоненков В.Г., Смирнова Е.К. Систематизация радиосактивных продуктов аварии на Чернобыльской АЭС // Радиохимия. – 1996. – Т. 38, №2. – С. 101-116.
34. Дунаева А.Н., Мироненко М.В. Сорбция цезия некоторыми глинистыми минералами // Геохимия. – 2000. – №2. – С. 213-221.
35. Жидков О.В. Вивчення фізичних механізмів дії внутрішніх і структурних чинників, відповідальних за процеси деградації паливовмісних матеріалів об'єкта „Укриття” в період його переведення на екологічно безпечну систему // Проблеми безпеки атомних електростанцій і Чорнобиля. – 2010. – Вип. 13. – С. 155-156.
36. Иванов А.А., Юдина Н.В., Ильина А.А., Ломовский О.И. Особенности состава и свойств гуминовых кислот торффов при механохимической обработке // Вестник ТПУ. – 2008. – Вып. 4(78). – С. 38-41.
37. Иванов Ю.А., Кашпаров В.А. Поведение в почве радионуклидов, представленных различными компонентами аврийного выброса ЧАЭС // Радиохимия. – 1992. – Т. 34, №5. – С. 112-124.
38. Иванов Ю.А., Кашпаров В.А. Мобильность радионуклидов выброса ЧАЭС в почвах // Доклады АН Украины. – 1994. – №1. – С. 105-109.
39. Иванов Ю.А., Кашпаров В.А., Левчук С.Е., Зварич С.И. Вертикальный перенос радионуклидов выброса ЧАЭС в

- почвах. I. Долговременная динамика перераспределения радионуклидов в профиле почв *in situ* // Радиохимия. – 1996. – Т.38, №3. – С. 264-271.
40. Иванов Ю.А., Кашпаров В.А., Левчук С.Е., Зварич С.И. Вертикальный перенос радионуклидов выброса ЧАЭС в почвах. II. Экспериментальное моделирование вертикального переноса радионуклидов в профиле почвы // Радиохимия. – 1996. – Т.38, №3. – С. 272-277.
41. Иванов Ю.А., Кашпаров В.А., Орещич Л.А., Бондарь П.Ф., Нечепоренко О.В., Агапкина Г.И. Физико-химические формы выпадений выброса ЧАЭС и их трансформация в почвах // Радиозоологические и экономико-правовые аспекты землепользования после аварии на Чернобыльской АЭС (Матер. научн. конф., Киев, 27-30 марта 1991 г.). – Киев: СОПС УССР АН УССР, 1991. – Ч.II. – С. 234-237.
42. Иванов Ю.А., Кашпаров В.А., Хомутинин Ю.В., Левчук С.Е. Вертикальный перенос радионуклидов выброса ЧАЭС в почвах. III. Математическое моделирование вертикального переноса радионуклидов в почвах // Радиохимия. – 1996. – Т.38, №3. – С. 278-284.
43. Ивашкевич Л.С., Бондарь Ю.И. Влияние основных химических свойств на закрепление радионуклидов в почве // Радиохимия. – 2008. – Т.50, №1. – С. 87-90.
44. Кашпаров В.А., Зварич С.И., Процак В.П., Журба М.А. Кинетика растворения чернобыльских топливных частиц. II. Растворение топливных частиц в естественных условиях в почве // Радиохимия. – 2000. – Т.42, №6. – С. 542-549.
45. Кашпаров В.А., Иванов Ю.А., Зварич С.И., Процак В.П., Хомутинин Ю.В., Пазухин Э.М. Определение скорости растворения чернобыльских топливных частиц в естественных условиях // Радиохимия. – 1997. – Т.39, №1. – С. 71-76.

46. Кашпаров В.А., Иванов Ю.А., Хомутинин Ю.В., Пазухин Э.М. Оценка эффективной температуры и времени отжига топливных частиц, выброшенных из чернобыльского реактора во время аварии // Радиохимия. – 1996. – Т.38, №1. – С. 91-96.
47. Кашпаров В.А., Лундин С.М., Хомутинин Ю.В., Каминский С.П., Левчук С.Е., Процак В.П., Кадыгроб А.М., Зварич С.И., Ковтун М.В., Журба М.А., Лапшин В.П. Загрязнение ^{90}Sr территории ближней зоны аварии на ЧАЭС // Радиохимия. – 2000. – Т.42, №6. – С. 550- 559.
48. Кашпаров В.А., Процак В.П., Перес Ж.-М., Ахамдаш Н., Йощенко В.И., Зварич С.И., Пазухин Э.М. Кинетика растворения чернобыльских топливных частиц. I. Растворение топливных частиц разного генезиса в модельных экспериментах // Радиохимия. – 2000. – Т.42, №6. – С. 533-541.
49. Квасникова Е.В., Стукин Е.Д., Титкин Г.И., Жукова О.М., Самонов А.Е., Борисенко Е.Н., Шагалова С.Д. Трансформация радиоактивного загрязнения почв Брянско-Белорусского Полесья // Метеорология и гидрология. – 2002. – №1. – С. 46-58.
50. Коноплев А.В., Борзилов В.А., Бобовникова Ц.И., Вирченко Е.П., Попов В.Е., Кутняков И.В., Чумичев В.Б. Распределение радионуклидов, выпавших в результате аварии на Чернобыльской атомной электростанции, в системе “почва – вода” // Метеорология и гидрология. – 1988. – №12. – С. 63-74.
51. Коноплев А.В., Булгаков А.А. Обменный коэффициент распределения ^{90}Sr и ^{137}Cs в системе почва – вода // Атомная энергия. – 2000. – Т.88, №2. – С. 152-158.
52. Коноплев А.В., Булгаков А.А. Трансформация форм нахождения ^{90}Sr и ^{137}Cs в почве и донных отложениях // Атомная энергия. – 2000. – Т.88, №1. – С. 55-60.

53. Коноплев А.В., Голубенков А.В. Моделирование вертикальной миграции радионуклидов в почве (по результатам ядерной аварии) // Метеорология и гидрология. – 1991. – №10. – С. 62-68.
54. Коноплев А.В., Копылова Л.П., Бобовникова Ц.И., Булгаков А.А., Сиверина А.А. Распределение ^{90}Sr и ^{137}Cs в системе донные отложения – вода водоемов ближней зоны Чернобыльской АЭС // Метеорология и гидрология. – 1992. – №1. – С. 35-42.
55. Корнилович Б.Ю., Пшинко Г.Н., Спасенова Л.Н. Влияние гуминовых кислот на сорбцию ^{137}Cs минеральными компонентами почв // Радиохимия. – 2000. – Т.42, №1. – С. 92-96.
56. Коробова Е.М., Чижикова Н.П. Распределение и подвижность радиоцезия в связи с минералогическим составом илистой фракции и свойствами почв поймы р.Ипать // Почвоведение. – 2007. - №10. – С.1190-1204.
57. Кривохатский А.С., Рогозин Ю.М., Смирнова Е.А., Брызгалова Р.В., Авдеев В.А., Трифонов В.А. Чернобыльский след аварийного выброса 4-го блока ЧАЭС в некоторых районах Ленинградской, Новгородской и Брянской областей. Сообщение I // Радиохимия. – 1994. – Т.36, №2. – С. 186-189.
58. Кривохатский А.С., Рогозин Ю.М., Смирнова Е.А., Брызгалова Р.В., Авдеев В.А., Трифонов В.А. Чернобыльский след аварийного выброса 4-го блока ЧАЭС в некоторых районах Ленинградской, Новгородской и Брянской областей. Сообщение II // Радиохимия. – 1994. – Т.36, №2. – С. 190-192.
59. Кривохатский А.С., Савоненков В.Г., Смирнова Е.А., Авдеев В.А., Костров В.Н., Цовбун Я.М. Выщелачивание радионуклидов из двух видов топлесодержащих частиц выпадений ближней зоны ЧАЭС // Радиохимия. – 1994. – Т.36, №1. – С. 76-81.

60. Кривохатский А.С., Смирнова Е.А., Рогозин Ю.М., Савоненков В.Г., Бирюков Е.И., Авдеев В.А., Куков А.А., Селифанов В.Н. Радионуклиды в почве 30-километровой зоны Чернобыльской АЭС // Радиохимия. – 1991. – Т.33, №1. – С. 101-107.
61. Кривохатский А.С., Смирнова Е.А., Савоненков В.Г., Авдеев В.А., Демьянова Т.А., Александров Б.М., Александрук В.М., Сагайдаченко Е.Ю., Васильев В.И. Выщелачивание радионуклидов из частиц ядерного топлива и реакторного графита, выделенных из проб 30-километровой зоны Чернобыльской АЭС // Радиохимия. – 1992. – Т.34, №5. – С. 92-101.
62. Кривохатский А.С., Смирнова Е.А., Брызгалова Р.В., Рогозин Ю.М. Исследование переноса плутония через пористые среды (силикатный песок) // Радиохимия. – 1994. – Т.36, №5. – С. 466-470.
63. Криницын А.П., Симановская И.Я., Стихарь О.Л. Исследование взаимодействия воды с конструкционными и топливосодержащими материалами в помещениях объекта „Укрытие” // Радиохимия. – 1998. – Т.40, №3. – С. 279-288.
64. Круглов С.В., Анисимов В.С., Анисимова Л.Н., Алексин Р.М. Показатели специфической сорбционной способности почв и минеральных сорбентов в отношении ^{137}Cs // Почвоведение. – 2008. – №6. – С. 693-703.
65. Круглов С.В., Васильева Н.А., Куринов А.Д., Алексин Р.М. Распределение радионуклидов чернобыльских выпадений по фракциям гранулометрического состава дерново-подзолистых почв // Почвоведение. – 1995. – №5. – С. 551-557.
66. Кучеренко М., Войціцький В. Америцій-241 перейшов у наступ // Надзвичайна ситуація. – 2002. – №5. – С.41.

67. Лощилов Н.А., Иванов Ю.А., Кашпаров В.А., Левчук С.Е., Бондарь П.Ф. Вертикальный перенос радионуклидов выброса ЧАЭС в почвах и методы его прогнозирования // Радиозоологические и экономико-правовые аспекты землепользования после аварии на Чернобыльской АЭС (Матер. научн. конф., Кисв, 27-30 марта 1991 г.). – Киев: СОПС УССР АН УССР, 1991. – Ч.II. – С. 165-170.
68. Лощилов Н.А., Кашпаров В.А., Юдин Е.Б., Процак В.П. Фракционирование радионуклидов в чернобыльских топливных горячих частицах // Радиохимия. – 1992. – Т.34, №5. – С. 125-133.
69. Лянце Г.Т. Форми знаходження і механізми міграції радіонуклідів у ґрунті // Моделювання та інформаційні технології. – 2002. – Вип.15. – С. 75-84.
70. Лянце Г.Т., П'янило Я.Д., Чапля Є.Я. Форми знаходження і фізико-математичне моделювання вертикальної міграції радіонуклідів // Вісник Українського державного університету водного господарства та природокористування. Ч.6. – Рівне, 2002. – Вип.5(18). – С. 118-126.
71. Мелихов И.В., Бердонос С.С., Знаменская И.В., Бердоносова Д.Г. Кинитическая модель сорбции радионуклидов // Радиохимия. – 2008. – Т.50, №4. – С.338-344.
72. Милютин В.В., Гелис В.М., Леонов И.Б. Исследование кинетики сорбции радионуклидов цезия и стронция сорбентами различных классов // Радиохимия. – 1998. – Т.40, №5. – С. 418-420.
73. Милютин В.В., Гелис В.М., Некрасова Н.А., Кононенко О.А., Везенцев А.И., Воловичева Н.А., Королькова С.В. Сорбция радионуклидов Cs, Sr, U и Pu на природных и модифицированных глинах // Радиохимия. – 2012. – Т.54, №1. – С. 71-74.

74. Новиков А.П., Павлоцкая Ф.И., Горяченкова Т.А., Казинская И.Е., Барсукова К.В., Кузовкина Е.В., Лавринович Е.А., Мясоедов Б.Ф. Миграционное поведение радионуклидов в экосистемах грунтовая вода – суглинистый материал, представленный образцами, взятыми из скважины вблизи оз. Карачай (Производственное объединение "Маяк") // Радиохимия. – 1996. – Т.38, №4. – С. 361-364.
75. Овсянникова С.В., Соколик Г.А., Эйсмонт Е.А., Кильчицкая С.Л., Кимленко И.М., Жукович Н.В., Рубинчик С.Я. Почвенные поровые растворы в процессах миграции ^{137}Cs , ^{90}Sr , $^{239,240}\text{Pu}$ и ^{241}Am // Геохимия. – 2000. – №2. – С. 222-234.
76. Павлоцкая Ф.И. Миграция радиоактивных продуктов глобальных выпадений в почвах. – М.: Атомиздат, 1974. – 215 с.
77. Павлоцкая Ф.И. Формы нахождения и миграция искусственных радионуклидов в почве. – М.: Атомиздат, 1979. – 215 с.
78. Павлоцкая Ф.И., Новиков А.П., Горяченкова Т.А., Казинская И.Е., Емельянов В.В., Кузовкина Е.В., Барсукова К.В., Лавринович Е.А., Коровайков П.А., Мясоедов Б.Ф. Формы нахождения радионуклидов в воде и донных отложениях некоторых промышленных водоемов ПО "Маяк" // Радиохимия. – 1998. – Т.40, №5. – С. 462-467.
79. Пазухин Э.М. Лавообразные топлевосодержащие массы 4-го блока Чернобыльской АЭС: топография, физико-химические свойства, сценарий образования // Радиохимия. – 1994. – Т.36, №2. – С. 97-113.
80. Пазухін Е.М., Меленевський О.Е., Огородников Б.І., Краснов В.О., Лагуненко О.С., Одинцов О.О., Хан В.С. Дослідження впливу змін властивостей паливовмісних матеріалів об'єкту „Укриття” на його ядерну, радіаційну

- та радіоекологічну безпеку // Проблеми безпеки атомних електростанцій і Чорнобиля. – 2010. – Вип. 13. – С. 154-155.
81. Панасюк Н.И., Алферов А.М., Подберезный С.С., Левин Г.В., Литвин И.А. Оценка параметров радиоактивного загрязнения грунтов в районе объекта "Укрытие". // Проблеми безпеки атомних електростанцій і Чорнобиля. – 2009. – Вип. 11. – С. 115-119.
82. Попов В.Е., Кутняков И.В., Жирнов В.П., Вирченко Е.П., Сиверина А.А., Бобовникова Ц.И. Вертикальное распределение ^{90}Sr и ^{137}Cs в аллювиальных дерновых почвах ближней зоны Чернобыльской АЭС // Почвоведение. – 1994. – №1. – С. 40-44.
83. Прозоров Л.Б., Комарова Н.И., Молчанова Т.В., Смирнов Д.И., Хорозова О.Д. Выщелачивание цезия-137 из загрязненных грунтов различными реагентами // Радиохимия. – 1997. – Т.39, №3. – С. 284-288.
84. Прохоров В.М. Миграция радиоактивных загрязнений в почвах. Физико-химические механизмы и моделирование. – М.: Энергоиздат, 1981. – 98 с.
85. П'янило Я.Д., Чапля Є.Я. Дослідження математичних моделей конвективного гетеродифузного масопереносу // Моделювання та інформаційні технології. – 2002. – Вип.15. – С. 103-111.
86. Ратников А.Н., Жигарева Т.Л., Попова Г.И., Петров К.В., Лисинский Б.Г. Миграция ^{137}Cs в почвенном покрове сельскохозяйственных угодий некоторых областей, загрязненных радиоактивными веществами в результате аварии на ЧАЭС // Радиозэкологические и экономико-правовые аспекты землепользования после аварии на Чернобыльской АЭС (Матер. научн. конф., Киев, 27-30 марта 1991 г.). – Киев: СОПС УССР АН УССР, 1991. – Ч.1. – С. 176.

87. Ратько А.И., Панасюгин А.С. Сорбция ^{137}Cs и ^{90}Sr модифицированными сорбентами на основе клиноптилолита // Радиохимия. – 1996. – Т.38, №1. – С. 66-68.
88. Рогозин Ю.М., Смирнова Е.А., Савоненков В.Г., Кривохатский А.С., Авдеев В.А., Сагайдаченко Е.Ю. Выщелачивание радионуклидов из некоторых новообразованных продуктов, извлеченных из реакторной зоны 4-го блока Чернобыльской АЭС // Радиохимия. – 1991. – Т.33, №4. – С. 160-167.
89. Рогозин Ю.М., Смирнова Е.А., Савоненков В.Г., Кривохатский А.С., Авдеев В.А., Сагайдаченко Е.Ю. Выщелачивание радионуклидов из техногенных новообразований, извлеченных из развала 4-го блока ЧАЭС // Радиохимия. – 1993. – Т.35, №1. – С. 166-171.
90. Руденко Л.И., Хан В.Е. Механизм миграции радионуклидов из объекта „Укрытие” в грунтовые воды // Доповіді АН УРСР. Сер.Б. – 2001. – №4. – С.193-197.
91. Руденко Л.И., Хан В.Е. Механизм миграции радионуклидов из промплощадки объекта „Укрытие” в грунтовые воды // Доповіді АН УРСР. Сер.Б. – 2001. – №5. – С. 192-195.
92. Савоненков В.Г., Кривохатский А.С., Дубасов Ю.А., Пазухин Э.М. Радиоактивные техногенные новообразования из развала 4-го блока Чернобыльской АЭС // Радиохимия. – 1991. – Т.33, №4. – С. 140-149.
93. Соботович Э.В., Ольховик Ю.А., Головкин Н.В., Коромысличенко Т.И. Вымывание как метод определения состава миграционных форм ^{137}Cs и ^{90}Sr в донных отложениях // Атомная энергия. – 1992. – Т.72, №1. – С. 69-72.
94. Соботович Е.В., Ольховик Ю.О., Коромисліченко Т.І., Соколик Г.А. Порівняльна характеристика міграційної здатності радіонуклідів у донних відкладах водоймищ

- ближньої зони Чорнобильської АЕС // Доповіді АН УРСР. Сер.Б. – 1990. – № 8. – С. 12-16.
95. Степина И.А., Попов В.Е. Зависимость обменной доли селективно сорбированного ^{137}Cs в почвах и природных сорбентах от концентрации K^+ и NH_4^+ // Почвоведение. – 2011. – №6. – С. 713-718.
 96. Сущик Ю.Я., Шраменко І.Ф., Пушкарьов О.В., Кононенко Л.В., Бондаренко Г.М., Манічев В.Й. ^{137}Cs у гранулометричних фракціях ґрунтів Народицького району // Доповіді НАН України. – 1999. – №7. – С. 184-188.
 97. Токарчук М., Жаліло А., Чапля Є., Чернуха О. Кінетика переносу радіонуклідів у склоподібних радіоактивно збуджених матеріалах // Фізико-математичне моделювання та інформаційні технології. – 2005. – Вип. 2. – С. 87-99.
 98. Токарчук М., Чапля Є., Чернуха О., Гончарук В. Математичні моделі міграції радіонуклідів у лавоподібних паливомістких матеріалах // Машинознавство. – 2006. – №2. – С. 23-29.
 99. Токарчук М., Чапля Є. Фізико-математичне моделювання та дослідження процесу перенесення радіонуклідів у радіаційно збуджених склоподібних матеріалах // 6-й Міжнар. Симпозіум українських інженерів-механіків у Львові. Тези доповідей, Львів, 2003. – С. 14.
 100. Токоревський В.В., Лобач Г.О., Кріп І.М., Шимчук Т.В., Токарчук М.В. Фероціанідні сорбенти на глинистій мат-риці у процесах сорбції радіонуклідів // Проблеми без-пеки атомних електростанцій і Чорнобиля. – 2008. – Вип. 9. – С. 120-124.
 101. Толковый словарь по почвоведению. – М.: Наука, 1975. – 286 с.

102. Фесенко С.В., Санжарова Н.И., Алексахин Р.М., Спиридонов С.И. Изменение биологической доступности ^{137}Cs после аварии на ЧАЭС // Почвоведение. – 1995. – №4. – С.508-513.
103. Фирсова Л.П. Сорбция цезия в почвах, обработанных антидефляционными реагентами // Радиохимия. – 1999. – Т.41, №3. – С. 272-275
104. Фирсова Л.П. Влияние антидефляционных реагентов на подвижность ^{144}Ce в почвогрунтах // Радиохимия. – 1999. – Т.41, №3. – С. 276-278.
105. Фирсова Л.П. Сорбция стронция в почвогрунтах, содержащих битум или полиэлектролитные комплексы в качестве антидефляционных добавок // Радиохимия. – 1999. – Т.41, №3. – С. 279-282.
106. Фирсова Л.П. Влияние антидефляционных реагентов на подвижность радиоцезия в почвогрунтах // Радиохимия. – 1999. – Т.41, №5. – С. 477-480.
107. Фрид А.С. Анализ процессов сорбции и миграции веществ в почве с помощью математических моделей. // Почвоведение. – 2012. – №9. – С.953-961.
108. Чалиян К.Н., Чиркст Д.Э. Деактивация почвогрунта Гурьевской области, зараженного радионуклидом ^{137}Cs в результате проведения подземных ядерных взрывов // Радиохимия. – 1998. – Т.40, №4. – С. 372-373.
109. Чапля С.Я., Гончарук В.С., Кондрат В.Ф., Лянце Г.Т., П'янило Я.Д., Чернуха О.Ю. Можливості математичного моделювання для оцінки і прогнозу поширення забруднень у довкіллі // Матер. Першої міжнар. наук.-практ. конф. „Безпека життєдіяльності людини як умова сталого розвитку сучасного суспільства”. – Львів, 2005. – С. 251-255.
110. Чапля С.Я., П'янило Я.Д., П'янило Г.М., Рикалюк І.І. Дослідження впливу конвективного руху та ефектів

- взаємопереходу частинок на процес вертикальної дифузії. – Львів, 1996. – 50 с. – (Препрінт НАН України. ЦММ ІППММ, №1, 1996).
111. Чапля С.Я., Чернуха О.Ю. Кінетика переносу домішок при локальній зміні стану частинок (1. Модельні представлення, гетеродифузія двома шляхами). – Львів, 1993. – 44 с. – (Препрінт АН України. Центр математичного моделювання ІППММ; №3-93).
 112. Чапля С.Я., Чернуха О.Ю. Кінетика переносу домішок при локальній зміні стану частинок (2. Гетеродифузія двома шляхами у тілі з пастками). – Львів, 1993. – 38 с. – (Препрінт АН України. Центр математичного моделювання ІППММ; №5-93).
 113. Чиркст Д.Э., Чалиян К.Н., Чалиян А.Г. Дезактивація ґрунтів, забруднених радіонуклідами цезія, в результаті аварії на ЧАЭС // Радиохімія. – 1994. – Т.36, №5. – С. 462-465.
 114. Чиркст Д.Э., Чалиян К.Н., Чалиян А.Г. Рекультивация ґрунту, контаминированного цезием-137 и стронцием-90 в результате аварии на ЧАЭС // Радиохімія. – 1996. – Т.38, №6. – С. 558-562.
 115. Чиркст Д.Э., Чалиян К.Н., Чалиян А.Г., Андреева Н.Р. Кинетика десорбции радионуклидов ^{137}Cs и ^{90}Sr с ґрунтів, забруднених в результаті аварії на ЧАЭС // Радиохімія. – 1996. – Т.38, №1. – С. 88-90.
 116. Чернобыльская катастрофа / Під ред. В.Г.Бар'яхтара. – Київ: Наукова думка, 1996. – 576 с.
 117. Чувелева Э.А., Фирсова Л.А., Милютин В.В., Гелис В.М., Умаков С.И. Изучение прочности связывания изотопов цезия и стронция в илах радиоактивно забруднених водосмол // Радиохімія. – 1996. – Т.38, №6. – С. 554-557.
 118. Юхновський І.Р., Кобрин О.Є., Токаревський В.В., Токарчук М.В. Проблеми взаємодії води з паливоміст-

- кими масами в об'єкті „Укриття” ЧАЕС // Журнал фізичних досліджень. – 1997. –Т.1.- Ч.2. – С.169-180.
119. Bozhenko B., Chernucka O. Advective diffusion of admixture in a medium with traps // *Zeszyty naukowe Politechniki Opolskiej, Ser. Matematyka*. – 2001. – Nr.17. – S.5-15.
 120. Bulgakov A.A., Konoplev A.V. Diffusion modeling of radiocaesium fixation by soils. // *Rad. Protection Dos.* – 1996. v.64, 1/2. – p. 11-13.
 121. Demchuk V., Victorova N., Morozov V., Ganzha E. Migration and transformation of fuel particles in soil-water in near zone NPP // *Proc. Int. Symp. Radioecology: Chem. Speciation – Hot Particles, October 1992*.
 122. Konoplev A.V., Bulgakov A.A. Modelling of the transformation of speciation processes of Chernobyl origin ^{137}Cs and ^{90}Sr in the soil and in bottom sediments. // In: *Proc. Intern. Symp. of Environmental Impact of Radioactive Releases*. Vienna: IAEA. – 1995. – p.311-321.
 123. Millington R.J., Quirk J.M. Permeability of porous solids // *Trans. Farady Soc.* – 1961. – Vol.57. – S.1200-1207.
 124. Savula Ya.H., Koukharskyj V.M., Chapla Ye.Ya. Numerical analysis of advection-diffusion in the continuum with thin canal // *Numerical Heat Transfer, Part A*. – 1998. – S.341-351.

ЗМІСТ

Передмова	3
Розділ 1. ХАРАКТЕРИСТИКА ОСНОВНИХ РАДІОАКТИВНИХ ПРОДУКТІВ УТВОРЕНИХ ВНАСЛІДОК АВАРІЇ НА ЧАЕС	5
1.1. Систематизація радіоактивних забруднень Чорнобильської катастрофи.....	5
1.2. Характеристика аерозольно-конденсаційних і паливних частинок.....	8
1.3. Паливовмісні скломаси.....	16
1.4. Територіальний розподіл забруднення.....	25
Розділ 2. МІГРАЦІЙНІ ВЛАСТИВОСТІ ГРУНТІВ І РАДІОНУКЛІДІВ	29
2.1. Чинники, що зумовлюють мобільність радіонуклідів у геосфері.....	29
2.2. Вплив ґрунтів на міграцію радіонуклідів.....	33
2.3. Фізико-хімічні властивості радіонуклідів.....	40
2.4. Підземні води.....	45
Розділ 3. ФІЗИКО-ХІМІЧНІ ФОРМИ РАДІОНУКЛІДІВ	48
3.1. Класифікація форм радіонуклідів у ґрунті.....	48
3.2. Форми знаходження радіонуклідів у різних типах ґрунтів.....	53
3.3. Форми знаходження радіонуклідів у донних відкладах і воді.....	63
3.4. Коефіцієнти трансформації форм радіонуклідів.....	70
Розділ 4. ВИЛУГОВУВАННЯ РАДІОНУКЛІДІВ З РАДІОАКТИВНИХ ВИПАДАНЬ ТА ЇХ ДЕСТРУКЦІЯ	75
4.1. Лабораторні дослідження вилуговування	

радіонуклідів.....	76
4.2. Вилуговування радіонуклідів з паливних частинок	90
4.3. Вилуговування радіонуклідів із лавоподібних скломас.....	93
4.4. Гранулометричний склад ґрунту і швидкість вилуговування радіонуклідів.....	100
4.5. Деструкція паливних частинок і коефіцієнти швидкості вилуговування (модельні експерименти).....	103
4.6. Вплив кислотності ґрунтів та ступеня окислення частинок на швидкість їх розчинення.....	108
4.7. Оцінка швидкості розчинення паливних частинок у природних умовах.....	116
Розділ 5. ПРОЦЕСИ АДСОРБЦІЇ РАДІОНУКЛІДІВ.....	120
5.1. Коефіцієнт розподілу K_p	120
5.2. Ефективний та обмінний коефіцієнти розподілу радіонуклідів у різних типах ґрунтів.....	121
5.3. Коефіцієнт селективності.....	126
5.4. Коефіцієнт розподілу і сорбенти	132
5.5. Коефіцієнт дифузії і сорбенти.....	136
5.6. Проблема повторного забруднення території радіонуклідами.....	140
5.7. Десорбція радіонуклідів.....	144
Розділ 6. МІГРАЦІЯ РАДІОНУКЛІДІВ.....	150
6.1. Чинники міграційного процесу радіонуклідів.....	150
6.2. Поверхневий змив радіонуклідів.....	154
6.3. Кількісні закономірності вертикальної міграції.....	156
6.4. Експериментальне моделювання у дослідженні вертикальної міграції радіонуклідів.....	168
6.5. Перенос радіонуклідів ґрунтовими водами.....	179
6.6. Радіоактивне забруднення території Полісся.....	185
Розділ 7. МАТЕМАТИЧНІ МОДЕЛІ МІГРАЦІЇ	

РАДІОНУКЛІДІВ У ГРУНТІ.....	188
7.1. Вертикальна міграція радіонуклідів в експериментальних і теоретичних дослідженнях.....	189
7.2. Дослідження вертикальної міграції радіонуклідів у могильнику.....	200
7.3. Дослідження вертикальної міграції радіонуклідів у приповерхневих шарах.....	202
7.4. Математичні моделі гетеродифузії у дослідженні міграції забруднень.....	207
7.5. Міграції радіонуклідів у насиченому водою пористому середовищі.....	216
ЛІТЕРАТУРА.....	224

НАУКОВЕ ВИДАННЯ

ГОНЧАРУК Володимир Євтихіївч
ЛЯНЦЕ Ганна Теофілівна
ЧАПЛІЯ Євген Ярославович
ЧЕРНУХА Ольга Юріївна

**МАТЕМАТИЧНІ МОДЕЛІ ТА
ЕКСПЕРИМЕНТАЛЬНІ ДАНІ ПРО ПОШИРЕННЯ
РАДІОНУКЛІДІВ У ҐРУНТАХ**

МОНОГРАФІЯ

Здано у видавництво 17.07.2014

Підписано до друку 07.08.2014. Формат 60×84/16
Папір офсетний. Гарнітура Таймс. Цифровий друк.

Умовн. друк. арк. 14,18. Обл.-вид. арк. 13,47

Наклад 300 прим.

Видавець і виготовлювач

ТзОВ «Растр-7»

79005, м. Львів, вул. Кн. Романа 9/1

Тел./факс: (032) 235 52 05, 261-46-11

e-mail: rastr-sim@mail.ru

www.rastr-7.com.ua

Свідоцтво суб'єкта видавничої справи

ЛВ №22 від 19.11.2002 р.