

ЕКОЛОГІЧНА БЕЗПЕКА

УДК 631.95: 632.12

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

ЧИННИКИ ПРОЦЕСУ МІГРАЦІЇ РАДІОНУКЛІДІВ У ҐРУНТІ

***Анотація.** В роботі проаналізовано чинники процесу міграції радіонуклідів у різних типах ґрунтів внаслідок радіоактивного забруднення після аварії на Чорнобильській АЕС. Показано, що міграція радіонуклідів у ландшафті розвивається на тлі 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.*

***Ключові слова:** радіонуклід, ґрунт, потік фільтрації, дифузія, фактор, гідрографічна мережа.*

Вступ

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

Аналіз чинників міграції радіонуклідів у ґрунті

Внаслідок вітрової ерозії підстилаючої поверхні ґрунту, змиву радіоактивних речовин з рослинності атмосферними 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, гідролути, оксиди і гідроксиди заліза.

У 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 [1–7]. 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 [8]. Конвективна 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 [9].

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 [5]. 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.

Для встановлення оцінки внеску конвективного і дифузійного переносу іонів радіонуклідів у їхньому переміщенні у ґрунті швидкість конвективного переносу V іонів у ґрунті можна оцінити за формулою [5]

$$V \approx v / \gamma K_p, \quad (1)$$

де v – середня швидкість потоку води; γ – густина ґрунтового розчину; K_p – коефіцієнт розподілу.

Середня швидкість потоку води 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 води.

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 поширеним процесом, оскільки у ґрунті завжди наявні градієнти концентрації складових елементів. Тому, незважаючи на порівняно невелику швидкість дифузійних процесів, вони часто відіграють основну роль у міграції, зокрема, радіоактивних забруднень.

Щоб оцінити вклад дифузійної міграції можна застосувати наближену формулу переміщення x частинок домішки [5]

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

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 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 води і дифузії. 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 вздовж кореневої системи значного впливу на міграцію не має, оскільки радіонукліди із 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.

Поверхневий змив радіонуклідів

В якості кількісної характеристики поверхневого змиву можна використовувати коефіцієнт змиву K , який описує частину запасу радіонуклідів на водозборі, яка надійшла з поверхневим стоком у водойму [10]. Коефіцієнт змиву K для водорозчинної форми радіонуклідів визначається із співвідношення:

$$K = A_p h / (A_0 H), \quad (3)$$

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

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 [1]. В конкретних геоморфологічних умовах при наявності областей збору і вносу 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 табл. 1 наведено дані про горизонтальне переміщення паливних частинок на відносно невеликій відстані [1]. Концентрація церію, яка відображає вміст паливних частинок у піщових ґрунтах, змінюється від області зносу до області накопичення у 4–60 разів.

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 [1].

Таблиця 1 – Концентрація ^{144}Ce на ділянках локального переносу паливних частинок

Місце відбору проб (на 26.04.1986)	Концентрація ^{144}Ce 10^{-4} , <i>Бк/кг</i>		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

Кількісні закономірності вертикальної міграції радіонуклідів

Дослідження вертикального розподілу радіонуклідів у ґрунтах 30-кілометрової зони ЧАЕС проводились багатьма науковими школами. Зокрема, перенос трансуранових елементів досліджувався на ґрунтових полігонах, які розміщені на відстані 5–14,5 км від станції і охоплюють такі типи ґрунтів: торфово-болотний, на низинних торфах потужністю більше ніж 0,5 м; дерново-луговий пісковий опідзолений; дерново-луговий пісковий, глєєватий; дерново-підзолистий пісковий, дерново-слабопідзолистий малогумусний пісковий [11]. Кожен тип ґрунту представлений трьома полігонами, які відрізняються ландшафтом і ступенем забруднення. В табл. 2 наведено дані вертикального розподілу форм радіонуклідів залежно від типу ґрунту.

Таблиця 2 – Розподіл форм ^{90}Sr , ^{239}Pu , ^{241}Am у різних типах ґрунтів (%)

Шар ґрунту, 10^{-2} м	Форма	торф’яник			глєєватий ґрунт			пісковий ґрунт		
		^{90}Sr	^{239}Pu	^{241}Am	^{90}Sr	^{239}Pu	^{241}Am	^{90}Sr	^{239}Pu	^{241}Am
1	Водорозчинна	0,59	0,36	0,48	4,48	0,77	0,55	4,07	3,89	0,27
	Обмінна	48,4	0,77	2,4	26,7	4,11	7,94	52,9	5,95	5,8
	Кислоторозчинна	24,8	1,14	43,2	15,2	4,51	46,0	29,7	5,85	73,4
	Твердий залишок	26,1	97,7	53,9	53,6	90,6	45,5	13,3	84,9	20,5
2	Водорозчинна	0,54	0,47	0,32	4,25	0,58	0,3	3,5	0,58	0,12
	Обмінна	46,1	0,94	3,45	36,5	3,1	6,7	55,1	3,65	7,74
	Кислоторозчинна	37,7	1,27	47,1	27,2	3,7	56,4	27,5	3,01	65,6
	Твердий залишок	15,6	97,4	48,9	32,1	92,6	36,6	13,9	92,8	26,9
3	Водорозчинна	0,8	0,52	0,19	3,77	0,48	0,18	1,29	0,66	0,16
	Обмінна	42,9	1,01	3,12	52,2	5,27	8,56	58,2	3,54	6,92
	Кислоторозчинна	38,6	1,17	53,3	26,8	4,13	53,0	30,4	3,83	66,4
	Твердий залишок	17,6	97,3	43,4	17,2	90,1	38,2	10,1	91,9	26,5
4	Водорозчинна	0,8	0,41	0,11	2,67	0,62	0,14	0,81	0,29	0,08
	Обмінна	46,4	0,68	5,6	48,2	4,85	6,69	74,7	4,17	6,14
	Кислоторозчинна	37,3	1,72	61,1	28,6	2,84	53,2	18,6	6,36	73,9
	Твердий залишок	15,1	97,0	33,3	20,5	91,7	39,9	5,91	89,2	19,9
5	Водорозчинна	0,5	0,5	0,15	2,91	0,88	0,15	0,74	0,17	0,07
	Обмінна	46,6	1,5	3,55	58,5	6,37	7,57	61,6	3,28	5,7
	Кислоторозчинна	39,5	4,0	52,0	26,2	3,38	53,7	31,2	3,57	74,3
	Твердий залишок	13,4	94,0	44,3	12,5	89,4	38,5	6,51	93,0	20,0
6	Водорозчинна	0,5	1,1	-	2,18	1,44	0,13	0,68	0,28	0,09
	Обмінна	45,6	2,3	6,2	40,8	6,9	9,03	64,6	1,73	7,9
	Кислоторозчинна	37,9	3,4	42,9	19,9	2,69	52,5	28,6	3,9	76,1
	Твердий залишок	16,0	93,2	50,9	37,0	89,0	38,4	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 вилугування стронцію і його значна міграція у глибинні горизонти. Проникнення активності в оглеєні ґрунтові горизонти обмежене і складає десять частки відсотка для стронцію і соті частки відсотка – для плутонію та америцію.

За результатами досліджень щодо знаходження різних форм ^{90}Sr і ^{137}Cs за глибиною профілю в алювіально-дернових ґрунтах [12] зроблено висновки, що на серпень 1991 р. 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 глеєвих 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 шарі 0–0,3 м є величиною постійною.

Для вивчення міграції ^{137}Cs за ґрунтовим профілем проводились дослідження на ділянках з різними елементами рельєфу. 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.***

У ґрунтах затоплюваних заплав максимум концентрації забруднення (близько 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 ґрунтах 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 тріщин і пор), а також високою сорбційною здатністю нижчих шарів ґрунтового профілю.

Аналіз досліджень вертикальної міграції цезію на ділянках, які відрізняються ґрунтами і ландшафтно-геохімічними характеристиками [13], показав, що, незважаючи на різні рівні забруднення, для однотипних ґрунтів розподіл ^{137}Cs за глибиною носить подібний характер, і спостерігається напівлогарифмічна залежність зниження забруднення з глибиною. На цілинних

ділянках найрізкіше зниження вмісту ^{137}Cs з глибиною спостерігається для піскових ґрунтів. Рівномірніший 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 цілинних ділянках розміщена у верхніх шарах ґрунту, які не перевищують 0,06 м. В залежності від типу ґрунтів поширення ^{137}Cs дійшло до глибини 0,15–0,24 м. На ці глибини 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 міцнозв'язаній формі у верхніх 0,06 м шарах ґрунту (98% в дерново-підзолистому, 97% в торфі, 92% у піщовому ґрунті), то автори роботи [14] провели дослідження з метою виявлення складової ґрунту, яка (мінеральна чи органічна) зв'язує ^{137}Cs . Результати досліджень показали, що 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 виявила, що хоча глинисті мінерали складають тільки 5–7% 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 [15], основна його частина зв'язується з мінеральною компонентою ґрунту, а інша – може мігрувати за профілем ґрунту. В результаті розкладення органічної компоненти ґрунту змінюються співвідношення між внеском у поглинання цезію органічною і мінеральною складовими ґрунту на користь мінеральної. Тут вирішальну роль у поглинанні ^{137}Cs мінеральною частиною ґрунту відіграє ізоморфне заміщення іонів у кристалічній ґратці глинистих мінералів. Кількість можливих форм міграції ^{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 міцнозв'язаний з мінеральною складовою ґрунту, яка представлена більш або менш стійкими мінералами [14].

Дослідження вертикальної міграції радіонуклідів у ґрунтах і розподілу їх у системі „тверда фаза ґрунту – порові розчини” проведено у роботі [16]. Об'єктом досліджень були проби необроблюваних органічних і мінеральних ґрунтів, які відбирались у 1994–1995 роках на території реперних ділянок.

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 піскового ґрунту в (0–0,05)-метровому шарі відмічено тільки 34% від сумарного вмісту ^{90}Sr у ґрунтовому профілі, 66% радіоізотопу 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 типами ґрунтів). Така поведінка стронцію у дерново-підзолистому 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 із сипучою структурою і низькою вологоємністю ґрунту, що забезпечує промивний характер ґрунту [17–19]. 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 досліджувані ґрунти можуть бути розміщені в наступному ряді:

дерново-підзолистий пісковий → заплавний дерновий → торфово-глеєвий → сильно мінералізований торфований.

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%, $^{239,240}\text{Pu}$ – 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 розміщена в (0–0,05)-метровому шарі ґрунту.

За швидкістю спадання міграції радіонуклідів ґрунти складають наступні ряди:

^{137}Cs : **заплавний дерновий ґрунт → торфово-глеєвий → дерново-підзолистий пісковий ≡ сильно мінералізований торфований;**

$^{239,240}\text{Pu}$: **заплавний дерновий ґрунт → торфово-глеєвий ≡ сильно мінералізований торфований → дерново-підзолистий пісковий;**

^{241}Am : **заплавний дерновий ґрунт → торфово-глеєвий → дерново-підзолистий пісковий → сильно мінералізований торфований.**

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 розчині, у зв'язаних з поверхнею твердих складових ґрунту адсорбованих шарах води та в об'ємі мінеральних складових скелету [20]. Коефіцієнти дифузії частинок у розчині є на декілька порядків більші, ніж у зв'язаних шарах води, а в об'ємі скелету радіонукліди практично не

дифундують. Квазірівноважний розподіл між цими різними станами істотно залежить від типу радіонуклідів і фізико-хімічних властивостей ґрунту.

Для ізотропного середовища за відсутності макроскопічної фільтрації порового розчину та ізотермічних умов і нехтуванні процесами деформації середовища, концентрації радіоактивних частинок у цих станах C_i ($i = 1, 2, 3$) визначаються з такої системи рівнянь за відповідних початкових і граничних умов [20]:

$$\begin{aligned} \frac{\partial C_1(\vec{r}, \tau)}{\partial \tau} &= D_1 \Delta C_1(\vec{r}, \tau) + D_{12} \Delta C_2(\vec{r}, \tau) - k_1 C_1(\vec{r}, \tau) + k C_2(\vec{r}, \tau), \\ \frac{\partial C_2(\vec{r}, \tau)}{\partial \tau} &= D_{21} \Delta C_1(\vec{r}, \tau) + D_2 \Delta C_2(\vec{r}, \tau) + k_1 C_1(\vec{r}, \tau) - (k + k_3) C_2(\vec{r}, \tau) + k_2 C_3(\vec{r}, \tau), \\ \frac{\partial C_3(\vec{r}, \tau)}{\partial \tau} &= k_3 C_2(\vec{r}, \tau) - k_2 C_3(\vec{r}, \tau), \end{aligned} \quad (4)$$

де D_1 – коефіцієнт дифузії радіонуклідів у поровому розчині, D_2 – коефіцієнт дифузії 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 і k_3 – коефіцієнти інтенсивності переходу зі скелету в адсорбовану воду і зворотного переходу; Δ – оператор Лапласа, \vec{r} – радіус-вектор біжучої точки, τ – час.

Аналіз розв'язків крайових задач на основі системи рівнянь (4) показав, що наявність пасток сприяє накопиченню домішки в шарі ґрунту, проте цей механізм задіюється з часом. Суттєвий вплив на профілі концентрації забруднення та сумарних потоків домішки має коефіцієнт поверхневого розподілу радіонуклідів 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.

Висновки

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 дерново-підзолистих супіскових і торфово-болотних ґрунтів менша, але складає значну величину.

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-глеєвому і заплавно-дерновому ґрунтах. Результати досліджень вертикальної міграції ^{137}Cs , $^{239,240}\text{Pu}$ і

²⁴¹Am показують малу швидкість міграції цих радіонуклідів у всіх типах досліджуваних ґрунтів. Одночасно слід відзначити, що у всіх типах ґрунтів ²⁴¹Am мігрує швидше, ніж ^{239,240}Pu.

СПИСОК ЛІТЕРАТУРИ

1. 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.
2. Дубасов Ю.В., Савоненков В.Г., Смирнова Е.К. Систематизация радиоактивных продуктов аварии на Чернобыльской АЭС // Радиохимия. – 1996. – Т. 38, №2. – С. 101–116.
3. Иванов Ю.А., Каспаров В.А. Поведение в почве радионуклидов, представленных различными компонентами аврийного выброса ЧАЭС // Радиохимия. – 1992. – Т. 34, №5. – С. 112–124.
4. Ивашкевич Л.С., Бондарь Ю.И. Влияние основных химических свойств на закрепление радионуклидов в почве // Радиохимия. – 2008. – Т.50, №1. – С. 87–90.
5. Прохоров В.М. Миграция радиоактивных загрязнений в почвах. Физико-химические механизмы и моделирование. – М.: Энергоиздат, 1981. – 98 с.
6. Фрид А.С. Анализ процессов сорбции и миграции веществ в почве с помощью математических моделей // Почвоведение. – 2012. – №9. – С. 953–961.
7. Гончарук В.Є., Лянце Г.Т., Чапля Є.Я., Чернуха О.Ю. Математичні моделі та експериментальні дані про поширення радіонуклідів у ґрунтах. – Львів: «Растр-7», 2014. – 244 с.
8. Пазухин Э.М. Лавообразные топливосодержащие массы 4-го блока Чернобыльской АЭС: топография, физико-химические свойства, сценарий образования // Радиохимия. – 1994. – Т. 36, №2. – С. 97–113.
9. Авдеев В.А., Бирюков Е.И., Кривохатский А.С., Селиванов 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.
10. Чернобыльська катастрофа / Під ред. В.Г. Бар'яхтара. – Київ: Наук. думка, 1996. – 576 с.
11. Агеев В.А., Выричек С.А., Левшин Е.Б., Одинцов А.А., Осмоловская Н.К., Остапо В.В., Урин В.Н. Распределение трансурановых элементов в 30-километровой зоне ЧАЭС // Доповіді АН України. – 1994. – №1. – С. 60–66.
12. Попов В.Е., Кутняков И.В., Жирнов В.П., Вирченко Е.П., Северина А.А., Бобовникова Ц.И. Вертикальное распределение ⁹⁰Sr и ¹³⁷Cs в аллювиальных дерновых почвах ближней зоны Чернобыльской АЭС // Почвоведение. – 1994. – №1. – С. 40–44.
13. 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.
14. 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.
15. Павлоцкая Ф.И. Миграция радиоактивных продуктов глобальных выпадений в почвах. – М.: Атомиздат, 1974. – 215 с.
16. 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 ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr, ^{239,240}Pu и ²⁴¹Am // Геохимия. – 2000. – №2. – С. 222–234.

17. Собо́тович С.В., Ольховик Ю.А., Коромисличенко 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.
18. Шесто́палов В.М., Богуславский А.С., Онищенко И.П., Кухаренко Д.Е., Панасюк Н.И. Радиогидрохимический состав подземных вод района объекта "Укрытие" // [Зб. наук. пр. Укр. держ. геологорозв. ін-ту](#). – 2008. – №2. – С. 72–85.
19. Шесто́палов В.М., Лялько В.И., Ситников А.Б. и др. Водобмен в гидрогеологических структурах и Чернобыльская катастрофа : В 2 ч. – Киев: Ин-т геол. наук НАН Украины, 2001. – 636 с.
20. Чапля С.Я., Чернуха О.Ю. Фізико-математичне моделювання гетеродифузного масопереносу. – Львів: СПОЛОМ, 2003. – 128 с.

Стаття надійшла до редакції 19.06.2017