

Л. С. Пірнач, С. В. Тодосієнко

Експериментальні дослідження процесів обміну радіонуклідів у системі ґрунт — вода в умовах тривалого затоплення річкової заплави

(Представлено академіком НАН України В. І. Старостенком)

Наведено результати визначення радіоактивного забруднення ^{137}Cs й ^{90}Sr заплавної території р. Брагінка (зона впливу ЧАЕС). Експериментально досліджено розподіл радіонуклідів по вертикальному профілю ґрунтів, фізико-хімічні форми, а також вимивання ^{137}Cs й ^{90}Sr в умовах тривалого затоплення поверхні ґрунту.

Дослідження кінетики обміну радіонуклідів у системі ґрунт — вода є важливим напрямом у розв'язанні завдань прогнозування змиву радіоактивності із забруднених водозбірних та заплавних територій. Упродовж 1992–1993 рр. в УкрНДГМІ було виконано серію експериментів на монолітах ґрунтів, відібраних у заплаві р. Прип'ять, з метою виявлення кількості ^{137}Cs й ^{90}Sr , здатних перейти у воду в умовах тривалого затоплення заплави, та оцінки деяких параметрів цього процесу [1]. На підставі цих даних виконано параметризацію моделі змиву радіонуклідів із заплавних територій [2–4], яка використовувалася протягом останнього десятиліття без істотної зміни значень вхідних у неї параметрів.

Однак за цей час фізико-хімічні умови водно-ґрунтового комплексу могли помітно змінитися, наприклад в результаті фіксації, вимивання, заглиблення радіонуклідів тощо, що могло спричинити істотні варіації заданих у моделі вхідних даних. Для коректування зазначеної моделі необхідно було провести нові експериментальні роботи по вивченню характеристик міграції радіонуклідів в умовах існуючого стану водно-ґрунтової системи. Тому в рамках сумісного українсько-білоруського проекту в УкрНДГМІ були проведені дослідження, які включали:

- польові роботи з відбору проб ґрунту і води;
- експериментальне вивчення вимивання ^{137}Cs й ^{90}Sr , а також їх катіонів-аналогів в умовах тривалого затоплення заплави;
- визначання стану радіоактивного забруднення ґрунтів ^{137}Cs й ^{90}Sr та форм їх знаходження.

Польові роботи. За об'єкт дослідження було обрано заплавну територію р. Брагінка в межиріччі річок Дніпро та Прип'ять (Гомельська область) з рівнями залишкового поверхневого забруднення в результаті Чорнобильської аварії 1986 р. у межах 100–150 кБк/м² за вмістом ^{137}Cs й ^{90}Sr у поверхневому 10-сантиметровому шарі ґрунту. Улітку 2006 р. на цій місцевості спільно з білоруськими колегами було проведено експедицію та виконано польові роботи, в ході яких для експериментального дослідження кінетики вимивання радіонуклідів із ґрунтів в умовах затоплення було відібрано природну воду р. Брагінка (близько 100 л) та три ґрунтових моноліти діаметром ~ 39 см. Моноліти відбирали в місцях з найбільш характерними типами ґрунтів (з різними після аварії режимами обводнення): луговий дерновий (ЛД), торфово-болотний (ТБ) та дерново-підзолистий (ДП). Два перших моноліти ґрунтів відібрані на відкритих ділянках, третій — у хвойному лісі.

З метою вивчення вертикального розподілу та форм знаходження радіонуклідів у ґрунтах за допомогою спеціального пробовідбирача (площа перерізу 20 см²) у безпосередній близькості рівномірно навколо кожного з монолітів було відібрано по три ґрунтові колонки та виконано їх пошаровий поділ.

Моноліти вміщали в спеціальні експериментальні місткості, які разом з водою та пошаровими зразками колонок ґрунтів доставляли в лабораторію відділу радіаційного моніторингу природного середовища УкрНДГМІ для проведення подальших робіт.

Лабораторні дослідження. В ході експерименту кінетику обміну радіонуклідів у системі ґрунт — вода в умовах затоплення заправи вивчали таким чином: у місткості з монолітами (після гідроізоляції бічних поверхонь) заливали природну воду р. Брагінка (12–10 см над поверхнею). Симулювалося тривале стояння води на заправі без додавання та заміни води. Через послідовно зростаючі інтервали часу з поверхневого шару води (після ретельного перемішування та відстоювання) відбирали аліквоти, в яких (після фільтрування через мембранний фільтр 0,45 мкм) визначали контрольні концентрації ¹³⁷Cs й ⁹⁰Sr, а також вміст NH₄⁺, K⁺, Ca²⁺ — основних конкурентів цих радіонуклідів за центри сорбції ґрунту [5].

Одночасно з експериментом на монолітах проводили роботу із зразками ґрунтових колонок. В усіх шарах колонок (45 проб) вимірювали ¹³⁷Cs, що дало змогу отримати детальний розподіл по вертикальному профілю ґрунту.

Після аналізу вмісту ¹³⁷Cs проби трьох колонок ґрунту, відібраного навколо кожного з монолітів, були об'єднані за принципом належності до верхнього контактного шару ґрунту (близько 2 см), який безпосередньо бере участь у вторинному забрудненні заправних стоків [1], або шару залишку загального запасу активності (від 2 см до ~ 10–15 см).

З об'єднаних зразків брали по дві повторності проб ґрунту, в яких визначали (за методикою, описаною в [6]) ⁹⁰Sr, а також по дві повторності — для дослідження розподілу радіонуклідів і катіонів між формами знаходження.

Розподіл ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr та катіонів між фізико-хімічними формами досліджували методом послідовних екстракцій [5, 7] — спочатку дистильованою водою (водорозчинна форма), потім розчином 1 моль/л ацетату амонію, що імітує вплив ґрунтових солей (обмінно-сорбована форма).

Аналіз та інтерпретація результатів експериментів. Згідно з результатами аналізу, залежність вмісту катіонів NH₄⁺, K⁺ й Ca²⁺ та радіонуклідів у воді від тривалості її контакту з ґрунтом монолітів, наведена в табл. 1. Для амонію відзначалось збільшення об'ємної концентрації від початку до кінця експерименту в 17–33 рази залежно від типу ґрунту. Причому для монолітів ЛД і ДП це зростання відбувалося фактично лінійно ($R^2 = 0,85–0,98$). Такий ефект пов'язаний з деструкцією і мінералізацією органічної речовини, яка містить азот, бактеріями-амоніфікаторами. А зміна в ґрунті реакції середовища в напрямі відновного процесу через дефіцит кисню, що виник внаслідок заливання ґрунту водою, перешкоджає бактеріальному окисненню амонію до нітритів і нітратів.

Для води над монолітом ДП, де вимивання ¹³⁷Cs було найбільш помітним, виявлено лінійну кореляцію ($R^2 = 0,91$) між його концентрацією та вмістом амонію.

Об'ємна активність ⁹⁰Sr більш ніж на порядок перевищує вміст ¹³⁷Cs. Наприкінці експерименту вона зростає у 19 разів для ДП та у 3–4 рази для інших монолітів. Для води над монолітами ДП і ЛД встановлена кореляція ($R^2 = 0,7$) за експоненціальною залежністю між концентраціями амонію та ⁹⁰Sr.

Максимальний вихід радіонуклідів у воді спостерігався для моноліту ДП. Це може бути пов'язане як з природою ґрунту, так і з тією обставиною, що зазначений моноліт був відіб-

Таблиця 1. Кінетика вмісту радіонуклідів та катіонів-аналогів у воді над монолітами

Тривалість, доба	Вміст катіона, мг/л									Вміст радіонуклідів, Бк/м ³					
	NH ₄ ⁺			K ⁺			Ca ²⁺			¹³⁷ Cs			⁹⁰ Sr		
	Тип ґрунту моноліту														
	ЛД	ТБ	ДП	ЛД	ТБ	ДП	ЛД	ТБ	ДП	ЛД	ТБ	ДП	ЛД	ТБ	ДП
0*	0,85 ± 0,03			4,55 ± 0,35			19,25 ± 8,75			0,00			736 ± 142		
0,04	0,58	0,88	0,88	8,4	11,9	8,4	21,0	43,4	56,0	—	—	—	553	823	1882
0,13	0,58	0,58	1,17	18,2	7,7	9,8	44,1	24,5	42,0	0,0	0,0	90,0	909	667	1660
0,38	0,58	1,46	1,46	15,4	11,9	13,3	33,6	44,8	44,1	—	—	—	1246	1127	2657
1,00	0,88	1,75	2,05	24,5	11,2	15,4	44,8	38,5	43,4	250	370	190	1224	—	3129
2,29	1,46	1,40	4,10	30,8	20,3	12,6	45,5	56,0	38,5	—	—	—	1982	1422	6127
6,00	5,26	23,40	9,95	37,8	16,8	11,2	42,0	43,4	46,2	340	426	470	1181	939	4934
10,00	6,43	15,70	7,02	39,2	21,7	13,3	39,9	56,0	35,0	—	—	—	2679	2050	6314
15,00	11,70	28,80	15,20	61,6	5,6	10,5	48,3	16,1	25,2	290	470	590	3282	1727	5264
21,00	17,55	24,60	14,60	56,0	29,4	14,7	40,6	105	29,4	—	—	—	2077	1750	11100
28,00	19,30	22,20	15,60	11,2	91,0	23,8	9,8	44,8	67,2	170	330	493	3099	715	9772

* Дві повторності аналізу природної річкової води перед початком експерименту.

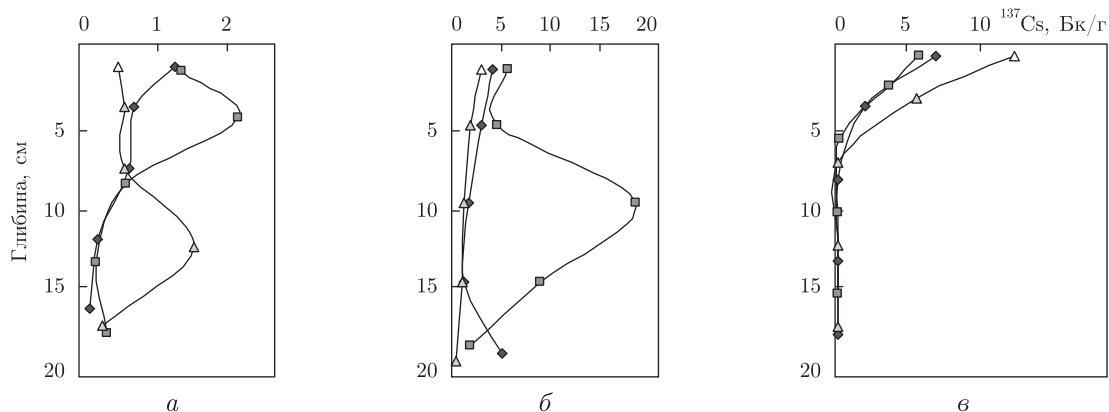


Рис. 1. Пошаровий розподіл ^{137}Cs у ґрунті **ЛД** (а), **ТБ** (б) та **ДП** (в)

раний з лісної місцевості, яка після аварії на ЧАЕС зазнавала меншого обводнення під час повеней, тому вимивання радіонуклідів на цьому місті було не таким інтенсивним.

Паралельно з кінетичним експериментом на монолітах проведено роботу по вивченню стану радіоактивного забруднення та визначанню форм знаходження радіонуклідів у досліджених ґрунтах.

Пошаровий розподіл ^{137}Cs по вертикальному профілю в трьох колонках ґрунту, відібраного навколо кожного з монолітів, ілюструє рис. 1. Тільки проба **ДП**, яку відбирали в лісистій місцевості, в усіх колонках вказує на рівномірне зменшення питомої активності з глибиною.

У колонках навколо монолітів, відібраних на відкритих місцевостях, такої системності не спостерігалось. Певно це було спричинено якимось зовнішнім втручанням, що призвело до порушення початкової вертикальної структури. Сплеск ^{137}Cs в одній з колонок **ТБ** імовірно спричинений наявністю гарячих частинок. У дослідженнях [1] подібного явища виявлено не було: в 90% випадків основний запас радіонуклідів знаходили у верхньому 2–3-сантиметровому шарі ґрунту. Результати обчислень поверхневого забруднення ^{137}Cs у верхньому (10–12 см) шарі ґрунту (середнього по трьох колонках) для **ЛД** – 124 кБк/м², **ТБ** – 172 кБк/м², **ДП** – 183 кБк/м²; ^{90}Sr у верхньому (5–15 см) шарі ґрунту (середнє двох повторностей після об'єднання колонок) – для **ТБ** – 11 кБк/м², для інших – ~ 6 кБк/м².

Розподіл питомої активності радіонуклідів між контактним шаром та шаром залишку загального запасу активності наведено в табл. 2. У контактному шарі ґрунту експеримен-

Таблиця 2. Дослідження активності в ґрунтах після перерозподілу проб на контактний шар (К) і шар залишку запасу (З)

Тип ґрунту	Втрата від прожарювання, %	Питома активність, Бк/г	
		^{90}Sr	^{137}Cs
ЛД К	$5,5 \pm 0,03$	$0,067 \pm 0,005$	$0,652 \pm 0,053$
ЛД З	$1,9 \pm 0,08$	$0,060 \pm 0,007$	$0,910 \pm 0,104$
ТБ К	$74,6 \pm 0,64$	$0,427 \pm 0,026$	$3,629 \pm 0,066$
ТБ З	$71,3 \pm 0,13$	$0,729 \pm 0,022$	$2,811 \pm 0,043$
ДП К	$41,4 \pm 0,70$	$0,659 \pm 0,013$	$10,025 \pm 0,642$
ДП З	$4,5 \pm 0,18$	$0,088 \pm 0,001$	$4,264 \pm 0,201$

Примітка. Тут і в табл. 3 наведено середні значення двох повторностей визначень та абсолютне відхилення від середнього.

Таблиця 3. Водорозчинна (В) та іонообмінна (О) форми радіонуклідів та катіонів у зразках контактного шару ґрунту

Тип ґрунту	Частка загальної активності в ґрунті, %				Концентрація, мг/г сухої маси				K_c^{ex}	
	^{137}Cs		^{90}Sr		K^+		Ca^{2+}		Cs/K	Sr/Ca
	В	О	В	О	В	О	В	О		
ЛД	0,57	2,60	3,71	14,13	0,17	0,29	0,12	0,33	2,70	1,37
ТВ	0,08	0,28	1,90	8,95	0,36	0,36	0,35	1,37	3,50	1,21
ДП	0,10	1,37	3,19	11,44	0,17	0,24	0,15	0,39	9,70	1,39

тально досліджено форми знаходження ^{137}Cs , ^{90}Sr та катіонів-аналогів (табл. 3). Сумарний вміст радіонуклідів у водорозчинній та обмінній формах не перевищує 3,2% загальної активності проби для ^{137}Cs і становить 11–18% для ^{90}Sr . При цьому обмінно-сорбована фракція перевищує водорозчинну в 3–10 разів для ^{137}Cs і в 4–5 разів для ^{90}Sr .

Рівновага розподілу у водно-ґрунтовій системі іонів двох видів характеризується коефіцієнтом селективності K_c^{ex} . Обчислені, згідно з експериментальними даними, методом, описаним у [1], значення коефіцієнта селективності демонструє табл. 3. У контактному шарі ґрунту K_c^{ex} для пари Cs/K знаходився в діапазоні від 3,5 до 7 залежно від типу моноліту. Парний коефіцієнт селективності Sr й Ca (для всіх типів монолітів не перевищує 1,4) є типовим для заплавлених ґрунтів і вказує на відсутність істотної вибіркової в фізико-хімічній поведінці цих катіонів.

Таким чином, серією експериментальних вимірювань доведено, що внаслідок міцної фіксації ^{137}Cs у заплавлених ґрунтах 98% його запасу знаходиться у необхідному сорбованому стані. Вимивання ^{137}Cs у воду практично не спостерігається навіть при тривалому затопленні, і практично єдиним істотним джерелом вторинного забруднення поверхневих вод є ^{90}Sr .

Отримані дані, представлені у табл. 1–3, можна використовувати для обчислення параметрів математичних моделей масообміну та змиву радіонуклідів із заплавлених територій: коефіцієнта розподілу радіонуклідів у водно-ґрунтовій системі, коефіцієнта рідкого змиву [8], концентрації радіонуклідів, проникаючих у воду за певний час її взаємодії з забрудненим ґрунтом тощо.

Значення коефіцієнтів селективності обміну пар Cs/K та Sr/Ca, що визначені експериментально, пропонується застосовувати для прогнозу коефіцієнтів розподілу радіонуклідів внаслідок зміни хімічного складу водно-ґрунтового комплексу.

1. Лаптев Г. В., Войцехович О. В. Экспериментальные исследования вымывания радионуклидов из пойменных почв р. Припяти в условиях их затопления // Тр. УкрНИГМИ. – 1993. – Вып. 245. – С. 127–143.
2. Железняк М. И., Маргвелашвили Н. Ю. Численное моделирование влияния паводков на перенос Чернобыльских радионуклидов в растворе и на взвесах в Киевском водохранилище // Вычисл. технологии. – 1997. – 2, № 2. – С. 55–62.
3. Zheleznyak M. The mathematical modeling of radionuclide transport by surface water flow from the vicinity of the Chornobyl nuclear power plant // J. Condens. matter Phys. – 1997. – 2. – P. 37–50.
4. Koziy L., Maderich V., Margvelashvili N., Zheleznyak M. Three-dimensional model of radionuclide dispersion in the estuaries and shelf seas // J. Environ. Model. and Software. – 1998. – 13, No 5./6. – P. 413–420.
5. Пирнач Л. С., Лаптев Г. В. Исследование влияния свойств компонентов водно-грунтовой системы на процессы адсорбции-десорбции ^{137}Cs и ^{90}Sr в совместном присутствии на иллите // Тр. УкрНИГМИ. – 1994. – Вып. 246. – С. 119–132.

6. *Инструкции* и методические указания по оценке радиационной обстановки на загрязненной территории. – Москва: Госкомгидромет СССР, 1989. – 118 с.
7. Павлоцкая Ф. И. Миграция радиоактивных продуктов глобальных выпадений в почвах. – Москва, Атомиздат, 1974. – 216 с.
8. Борзилов В. А., Коноплев А. В., Ревина С. К. и др. Экспериментальное исследование смыва радионуклидов, выпавших на почву в результате аварии на Чернобыльской АЭС // *Метеорология и гидрология*. – 1988. – № 11. – С. 43–53.

*Український науково-дослідний
гідрометеорологічний інститут, Київ*

Надійшло до редакції 24.06.2010

L. S. Pirnach, S. V. Todosienko

Experimental researches of radionuclide exchange processes in the ground — water system for the long-term flooding of a fluvial plain

The results of the determination of radioactive pollution by ^{137}Cs and ^{90}Sr for the inundated territory of the Braginka river (Chornobyl zone) are presented. The radionuclide distribution on a vertical profile of soil, physical-chemical forms, and the wash-out of ^{137}Cs and ^{90}Sr under conditions of the long-term flooding of a soil surface are experimentally investigated.