

Настоящая работа выполнена в рамках гранта ФЦП «Государственная поддержка интеграции высшего образования и фундаментальной науки на 1997—2000 годы».

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Koch H., Motz J. Bremsstrahlung cross-section formulas and related data. — Rev. Mod. Phys., 1959, v. 31, p. 920—938.
2. Балашов А.П., Костин Д.В. К оценке радиационного повреждения МДП-структур при облучении быстрыми электронами. Ульяновск: Изд-во СВНЦ, 1996, с. 26—36.
3. Dhaliwal A., Powar M., Singh M. External bremsstrahlung spectra of Al, Cu, Sn and Pb targets excited by ^{32}P beta particles. — Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B., 1990, v. 47, p. 370—374.
4. Бета- и антинейтринное излучение радиоактивных ядер. Справочник под ред. П.М. Рубцова. М.: Энергоатомиздат, 1989. 800 с.

Поступила в Редакцию 25.02.98

УДК 539.12.08

КИНЕТИКА ВЫЩЕЛАЧИВАНИЯ ^{90}Sr ИЗ ТОПЛИВНЫХ ЧАСТИЦ В ПОЧВЕ БЛИЖНЕЙ ЗОНЫ ЧЕРНОБЫЛЬСКОЙ АЭС

Коноплев А.В., Булгаков А.А. (НПО «Тайфун»)

Ключевым процессом трансформации форм нахождения радионуклидов в природных средах в первые годы после аварии на Чернобыльской АЭС было их выщелачивание из топливных частиц [1]. Выход радионуклидов из топливных частиц происходит в результате их диффузии из объема частицы на поверхность с последующим переходом в раствор и при растворении топливной матрицы [2]. Последнее было экспериментально подтверждено наличием урана в водной вытяжке из почвы (чернозема в районе Чернобыльской АЭС), находящейся в контакте с горячими частицами в течение 290 сут [3]. Целью настоящей работы является исследование кинетики выщелачивания ^{90}Sr из топливных частиц в почве ближней зоны Чернобыльской АЭС.

Расчет доли ^{90}Sr в составе топливных частиц. Топливные частицы не растворяются в нейтральных растворах солей, вследствие чего доля подвижных форм радионуклидов (обменной + водорастворимой) в почве ближней зоны Чернобыльской АЭС была в первые годы после аварии заметно ниже, чем в аналогичной почве, в которую радионуклиды поступали в растворимом состоянии [4—6]. Это различие может быть применено для количественной оценки доли радионуклида, находящегося в почве в составе топливных частиц. Для этой цели предпочтительнее использовать данные о формах нахождения ^{90}Sr . Сорбционное равновесие радиостронция в почве достигается за несколько суток [7], поэтому его формы нахождения вне топливных частиц можно считать равновесными. Кроме того, стационарная доля обменного радиостронция в большинстве почв близка к 100% и слабо зависит от свойств почвы [8].

Доля находящегося в составе топливных частиц ^{90}Sr в различных пунктах загрязненной зоны может быть рассчитана по формуле $F_t = 1 - \alpha_t/\alpha_\infty$, где F_t — доля ^{90}Sr в составе топливных частиц в почве в момент времени t ; α_t , α_∞ — доля обменного ^{90}Sr в момент времени t и в равновесии соответственно.

Долю обменной формы радионуклида в данный момент времени (α_t) определяли методом экстракции 1N раствором ацетата аммония при соотношении фаз 1:8 и времени экстракции 1 сут. Равновесную долю обменной формы ^{90}Sr (α_∞) можно найти тремя способами. Наиболее точным, по-видимому, является внесение в исследуемую почву

радионуклида-трассера, например, ^{85}Sr в виде раствора и определение соотношения форм его нахождения после установления равновесия. Другой способ определения α_∞ состоит в его аппроксимации стационарной долей обменной формы ^{90}Sr в нижних слоях данной почвы, в которых нет топливных частиц, обладающих низкой миграционной способностью [1, 9]. Приведенные в табл. 1 значения α_∞ использовали при расчете F_t в указанных пунктах.

Т а б л и ц а 1. Равновесная доля обменных форм ^{90}Sr в почве 30-км зоны АЭС, определенная по соотношению форм в нижних слоях почвы

Пункт	Почва	Слой, см	Год	α_∞ , %
с. Корогод	Дерново-слабоподзолистая	3—5	1988	87 ± 2
	>>	3—5	1989	88 ± 2
с. Беневка	Аллювиальная дерновая кислая	3—5	1988	80 ± 6
	>>	4—10	1989	90 ± 4
	Аллювиальная луговая кислая	4—10	1989	87 ± 7
	Дерново-подзолистая	4—10	1991	79 ± 10
г. Чернобыль	>>	3—5	1988	85 ± 5
Пойма р. Припяти	Аллювиальная дерновая кислая	5—10	1991	74 ± 10
г. Копачи	Болотная торфяно-глеевая	8—12	1989	55 ± 10
	>>	8—10	1989	78 ± 5
	Аллювиальная луговая кислая	8—12	1989	89 ± 8
	Аллювиальная дерновая кислая	8—12	1989	88 ± 11

Для первых лет после аварии, когда величина α_t далека от равновесной, удовлетворительная точность может быть достигнута с учетом экспертной оценки α_∞ . Например, для наиболее распространенной в загрязненном районе дерново-подзолистой почвы, как и для другой кислой почвы с невысоким содержанием органического вещества, α_∞ находится в пределах от 70 до 90% [8]. Таким образом, использование для этих видов почвы в качестве экспертной оценки $\alpha_\infty = 0,8$ не приведет при расчете F_t к ошибке более чем 10% на начальном этапе после аварии в 30-км зоне, где $F_t > 0,5$.

Кинетика выщелачивания радионуклидов из топливных частиц. Моделирование процессов, приводящих к выходу радионуклидов из горячих частиц, затруднено неоднородностью размеров, форм и химической природы последних. В связи с этим представляется целесообразным использовать для прогнозирования интегральные параметры, характеризующие скорость выщелачивания радионуклидов из топливных частиц в различных районах загрязненной зоны. Такими параметрами могут быть константа скорости первого порядка k_1 (сут^{-1}) или скорость растворения топливной матрицы ν ($\text{г}/(\text{сут} \cdot \text{см}^2)$). В процессе разрушения и растворения топливных частиц происходит уменьшение их размеров и возрастание относительного содержания радионуклидов в составе наиболее устойчивых частиц. Первый процесс приводит к возрастанию константы скорости первого порядка, второй — к уменьшению. На предположении о взаимной компенсации этих процессов и основывается описание скорости выщелачивания радионуклидов из топливных частиц. В этом случае уменьшение со временем доли радионуклидов, находящейся в составе частиц, описывается следующими уравнениями:

$$\frac{dF_t}{dt} = -k_1 F_t$$

и соответственно

$$F_t = F_0 \exp(-k_1 t),$$

где F_t, F_0 — доля радионуклидов в топливных частицах в момент времени t и в исходных выпадениях соответственно; t — время, прошедшее после аварии.

Если частицы имеют приблизительно одинаковый размер и устойчивость к растворению, скорость выщелачивания будет со временем возрастать из-за увеличения отношения площади поверхности частиц к их массе. В этом случае предпочтительнее использовать в качестве параметра скорость растворения, нормированную на площадь поверхности частиц v .

По определению

$$v = -\frac{1}{S} \frac{dP_t}{dt},$$

где P_t — масса частицы в момент времени t ; S — площадь поверхности частицы. Предполагая, что радионуклид распределен равномерно в объеме частицы, и принимая во внимание, что

$$\frac{dP_t}{dt} = \rho S \frac{dR_t}{dt}$$

и

$$\left(\frac{F_t}{F_0}\right)^{1/3} = \frac{R_t}{R_0},$$

где R_t, R_0 — текущий и начальный радиус частицы соответственно; ρ — плотность топливной матрицы; F_0 — начальная доля радионуклида в составе топливных частиц, получим

$$\left(\frac{F_t}{F_0}\right)^{1/3} = 1 - \left(\frac{v}{\rho R_0}\right) t. \quad (1)$$

Таким образом, если частицы можно характеризовать одним эффективным размером и считать скорость растворения урановой матрицы с единицы поверхности постоянной для данных условий, зависимость $(F_t/F_0)^{1/3}$ от времени должна быть линейной. Аналогом константы скорости в этом случае является нормированная скорость растворения $w = v/\rho R_0$.

В случае же описания выщелачивания радионуклидов кинетикой первого порядка зависимость $\ln(F_t)$ от времени должна быть линейной в соответствии с уравнением

$$\ln(F_t) = \ln(F_0) - kt. \quad (2)$$

Результаты и обсуждение. Возможность применения этих моделей для прогнозирования выщелачивания радионуклидов проверяли путем сравнения экспериментальной и теоретической кривой изменения содержания ^{90}Sr в топливных частицах со временем. Для этого использовали данные об изменении содержания обменного ^{90}Sr в 1987—1991 гг. в почве в районе с. Беневки и на экспериментальной площадке возле с. Корогоды. Содержание обменного ^{90}Sr в исходных выпадениях в районе с. Ко-

рогоды считалось равным его содержанию в выпадениях на планшеты метеостанции Чернобыля — 10% [10], в районе с. Беневки оно принималось равным 5% [11].

В полулогарифмическом масштабе зависимость доли ^{90}Sr в топливных частицах от времени должна быть прямолинейной, если выщелачивание происходит со скоростью, описываемой уравнением (2). Если же справедливо уравнение (1), то прямолинейной должна быть зависимость от времени отношения $(F_t/F_0)^{1/3}$. Результаты регрессионного анализа изменения F_t/F_0 во времени в соответствии с уравнениями (1), (2) показали удовлетворительное соответствие экспериментальной и теоретической зависимостей [12]. При этом уравнение (1) дает немного лучшее соответствие результатов расчета и экспериментальных данных. Коэффициенты корреляции, как правило, для уравнения (1) выше. В пользу этого уравнения свидетельствует также совпадение констант скорости растворения, рассчитанных по изменению форм нахождения ^{90}Sr в почве и определенных в лабораторном эксперименте при воздействии растворов, имитирующих природные водные среды, на топливные частицы, выделенные из почвы в ближней зоне Чернобыльской АЭС. В лабораторных условиях была получена скорость $5,7 \cdot 10^{-6} - 1,6 \cdot 10^{-4} \text{ г}/(\text{см}^2 \cdot \text{сут})$ [13], по изменению форм нахождения ^{90}Sr для частиц размером 10 мкм $(0,1 - 1)10^{-5} \text{ г}/(\text{см}^2 \cdot \text{сут})$, размером 100 мкм — $(0,1 - 1)10^{-4} \text{ г}/(\text{см}^2 \cdot \text{сут})$.

Скорость выщелачивания радионуклидов из частиц зависит как от свойств среды, в которой они находятся, так и от характеристик самих частиц. Известно, что в начальный период аварии выброшенные из реактора диспергированные радиоактивные материалы переносились в северном и северо-западном направлении, затем на запад, юг, восток и северо-восток [12]. Поскольку состояние реактора в это время менялось, можно было бы ожидать, что на разных направлениях от станции характеристики выпавших частиц будут различны. Кроме того, средний размер и плотность частиц уменьшаются, очевидно, при удалении от источника. Согласно классификации, предложенной в работе [14], загрязненный после аварии регион может быть поделен на три сектора — западный (северо-запад, запад и юго-запад), южный (юг, юго-восток, восток) и северный (север и северо-восток). В табл. 2 в приведены константы скорости, рассчитанные по данным о формах нахождения радионуклидов в почвах на северном и западном секторах следа. На этих направлениях влияния расстояния от станции на константу скорости выщелачивания не прослеживается в отличие от направления юг и юго-восток, где наблюдается явная тенденция возрастания константы скорости выщелачивания при увеличении расстояния от Чернобыльской АЭС (см. рисунок). Аналогичным образом ведут и константы скорости растворения.

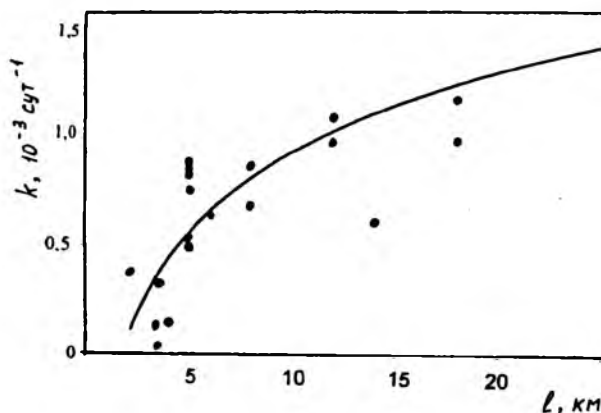
Поскольку почвенный покров на территории 30-км зоны достаточно однороден, можно сделать вывод, что наиболее устойчивые к выщелачиванию радионуклидов частицы выпали на севере, северо-западе, западе и юго-западе от АЭС, где константы скорости выщелачивания варьировали в пределах от 10^{-5} до 10^{-4} сут^{-1} . При удалении от станции в южном направлении константы скорости возрастают и на расстоянии около 20 км достигают 10^{-3} сут^{-1} . Из этого следует, что в южном направлении характеристики топливных частиц менялись с расстоянием от АЭС значительно резче, чем в западном.

За пределами 30-км зоны константы скорости выщелачивания должны быть еще больше из-за меньшего размера частиц. В почве Брянской области, например, первое определение форм нахождения проводилось нами в 1987 г. При этом формы нахождения ^{90}Sr оказались равновесными, что позволяет заключить, что в этом регионе константа скорости выщелачивания равнялась как минимум $5 \cdot 10^{-3} \text{ сут}^{-1}$. Аналогичный вывод можно сделать и для районов Белоруссии, удаленных от АЭС на 200—250 км, где формы нахождения ^{90}Sr в почвах в 1987 г. также были близки к равновесным [6].

Т а б л и ц а 2. Константы скорости выщелачивания ^{90}Sr и скорости растворения топливных частиц в почве зоны, загрязненной после аварии на Чернобыльской АЭС

Населенный пункт	Почва	Расстояние от АЭС, км	Направление	$k_1 \cdot 10^4, \text{сут}^{-1}$	$w \cdot 10^4, \text{сут}^{-1}$
Направление северо-запад (северный сектор)					
Новошепеличи	Дерново-слабоподзолистая	8	Северо-запад	1,4	0,5
Беневка	Аллювиальная подзолистая	10	Северо-запад	4,0	1,2
				3,4	1,0
				5,8	1,6
				4,3	1,2
				2,8	0,9
				7,9	2,0
				1,5	0,5
Довляды	Дерново-подзолистая	23	Северо-запад	1,1	0,4
	Аллювиальная			1,3	0,4
	Дерновая			1,4	0,5
	Луговая			2,8	0,9
Направление запад и юго-запад (западный сектор)					
Янов	Дерново-слабоподзолистая	3	Запад	1,1	0,4
Припять	Дерново-подзолистая	4	>>	0,3	0,1
Речица	Дерново-глеевая	14	>>	1,1	0,4
Толстый лес	Аллювиальная кислая	20	>>	0,4	0,1
Рудня	Аллювиальная	23	Юго-запад	0,4	0,1

Зависимость константы скорости выщелачивания ^{90}Sr из топливных частиц от расстояния до Чернобыльской АЭС для южного сектора



СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Булгаков А.А., Коноплев А.В., Попов В.Е. Прогноз поведения ^{90}Sr и ^{137}Cs в системе «почва—вода» после аварии на Чернобыльской АЭС. — В сб.: Эколого-геофизические аспекты ядерных аварий. М.: Гидрометеиздат, 1992, с. 21—42.
2. Konoplev A.V., Bulgakov A.A. Behaviour of the Chernobyl-origin hot particles in the environment. — In: Proc. Intern. Symp. on Radioecology. Chemical Speciation — Hot Particles, Znojmo, October 12—16, 1992.
3. Авдеев В.А., Кривохатский А.С., Савоненков В.Г. и др. Выщелачивание радионуклидов из частиц ядерного топлива и реакторного графита, выделенных из проб 30-км зоны Чернобыльской АЭС. — Радиохимия, 1992, т. 32, № 2, с. 55—59.
4. Коноплев А.В., Борзилов В.А., Бобовникова Ц.И. и др. Распределение радионуклидов, выпавших в результате аварии на Чернобыльской АЭС, в системе «почва—вода». — Метеорология и гидрология, 1988, № 12, с. 63—74.

5. Кашпаров В.А., Иванов Ю.А., Зварич С.И. и др. Определение скорости растворения черномыльских топливных частиц в естественных условиях. — Радиохимия, 1997, т. 39, вып. 1, с. 71—76.
6. Петряев Е.П., Овсянникова С.В., Любкина И.Я. и др. Состояние черномыльских радионуклидов в почвах за пределами 30-километровой зоны. — Геохимия, 1993, № 7, с. 940—947.
7. Frere M., Champion D. Characterisation of fixed strontium in sesquioxide gel-kaolinite system. — Soil Sci. Soc. Amer. Proc., 1967, v. 31, p. 181—191.
8. Павлоцкая Ф.И. Миграция радиоактивных продуктов глобальных выпадений в почвах. М.: Атомиздат, 1974. 216 с.
9. Konoplev A.V., Bulgakov A.A., Popov V.E. e.a. Behaviour of long-lived radionuclides in a soil-water system. — Analyst., 1992, v. 117, p. 1041—1047.
10. Бобовникова Ц.И., Махонько К.П., Сиверина А.А. и др. Физико-химические формы радионуклидов в атмосферных выпадениях после аварии на Черномыльской АЭС и их трансформация в почве. — Атомная энергия, 1991, т. 71, вып. 5, с. 449—454.
11. Бобовникова Ц.И., Вирченко Е.П., Коноплев А.В. и др. Химические формы нахождения долгоживущих радионуклидов и их трансформация в почвах зоны аварии на ЧАЭС. — Почвоведение, 1990, № 10, с. 20—25.
12. Konoplev A.V., Bulgakov A.A. Kinetics of radionuclides leaching from fuel particles in the soil around the Chernobyl nuclear power plant. — In: Proc. Intern. Symp. «Ten Years Terrestrial Radioecological Research Following the Chernobyl Accident», Vienna, 22—24 April, 1996, p. 62—67.
13. Богатов С.А., Боровой А.А., Дубасов Ю.В. и др. Форма и характеристики частиц топливного выброса при аварии на Черномыльской АЭС. — Атомная энергия, 1990, т. 69, вып. 1, с. 36—40.
14. Израэль Ю.А., Соколовский В.Г., Соколов В.Е. и др. Экологические последствия радиоактивного загрязнения природных сред в районе аварии на Черномыльской АЭС. — Там же, 1988, т. 64, вып. 1, с. 28—40.

Поступила в Редакцию 18.11.98

УДК 539.12.08

ВЛИЯНИЕ МИГРАЦИИ ^{137}Cs НА ЕГО ВЕРТИКАЛЬНЫЙ ПРОФИЛЬ В ПОЧВЕ АККУМУЛЯТИВНО-ДЕНУДАЦИОННЫХ ЛАНДШАФТОВ

*Квасникова Е.В., Пегоев А.Н., Стукин Е.Д.
(Институт глобального климата и экологии)*

Профиль вертикального распределения ^{137}Cs в почве влияет на облучение населения и экосистемы. Такие профили достаточно хорошо изучены для многих типов почв лесной и степной природных зон Европы и европейской части России [1—4]. Многие исследователи предпринимали попытки установить временную зависимость вертикального распределения ^{137}Cs как черномыльского, так и глобального происхождения [5—8]. Из-за многофакторности процессов принято описывать вертикальную миграцию феноменологическими моделями, чтобы отразить эволюцию профилей во времени при отсутствии значительного горизонтального переноса [7, 9]. При анализе распределения радионуклидов в нарушенных почвах обычно ограничиваются описанием характера профилей и определением глубины смещения максимума вертикального распределения загрязнения [10, 11].

Восточный черномыльский след расположен в лесостепной природной зоне с плодородными почвами и интенсивным землепользованием. Здесь редко встречаются ландшафты, не нарушенные ни человеком, ни эрозией, часто так называемые азональные ландшафты долин малых рек и балок, играющих важную роль в землепользовании, испытывают сильное воздействие процессов смыва-аккумуляции почвенного материала. Именно эти ландшафты население наиболее активно использует в личном подсобном хозяйстве и под выпас домашних животных. Исследованию профилей вертикального распределения ^{137}Cs в таких ландшафтах посвящена настоящая работа.

Механический горизонтальный перенос почвы влияет на вертикальное распределение радионуклидов в месте как смыва, так и переотложения почвенного субстрата.