

МИНИСТЕРСТВО УКРАИНЫ ПО ДЕЛАМ ЗАЩИТЫ
НАСЕЛЕНИЯ ОТ ПОСЛЕДСТВИЙ АВАРИИ
НА ЧЕРНОБЫЛЬСКОЙ АЭС
ОТДЕЛ РАДИАЦИОННОГО МОНИТОРИНГА
ОКРУЖАЮЩЕЙ СРЕДЫ
НТЦ НПО «ПРИПЯТЬ»

Е. П. Скоробогатько, С. И. Рыбалко

РАДИОХИМИЧЕСКИЕ ЗАКОНОМЕРНОСТИ
МИГРАЦИОННОЙ ПОДВИЖНОСТИ РАДИОНУКЛИДОВ
ЧЕРНОБЫЛЬСКОГО ВЫБРОСА

Препринт НПО «Припять»

Чернобыль—1992

МИНИСТЕРСТВО УБРАНОІ ПО ДЕЛАМ ЗАЩИТЫ
НАСЕЛЕНИЯ ОТ ПОСЛЕДСТВИЙ АВАРИИ НА
ЧЕРНОВЫЛЬСКОЙ АЭС

ОТДЕЛ РАДИАЦИОННОГО МОНИТОРИНГА ОКРУЖАЮЩЕЙ СРЕДЫ
ИТЦ НПО "ПРИНЯТЬ"

Е. П. СКОРОВОГАТЫЮ, С. И. РЫБАЧКО

РАДИОХИМИЧЕСКИЕ ЗАКОНОМЕРНОСТИ МИГРАЦИОННОЙ
ПОДВИЖНОСТИ РАДИОНУКЛИДОВ ЧЕРНОВЫЛЬСКОГО РАЙОНА

ПРЕЗРИИТ НПО "ПРИНЯТЬ"

Чернобыль 1992

Скоробогатко Е.Н., Рыбалко С.И., Радиохимические закономерности миграционной подвижности радионуклидов чернобыльского выброса (НЮ "Припять", г. Чернобыль, 1992). Препринт. - 9с.

В работе отмечается необходимость учитывать специфику радиосактивных выпадений чернобыльского выброса при изучении процессов вторичного перераспределения радионуклидов в природной среде.

Неопределенный градиент фракционирования переходящих в почву радионуклидов осколочных и трансураниевых элементов не позволяет использовать эти радионуклиды в качестве изотопной метки.

Специфика поведения чернобыльских выпадений в природной среде ограничивает применимость диффузионной модели перераспределения радионуклидов и делает более предпочтительным рассмотрение механизма их рассеяния в почвенной среде.

Ответственный редактор - проф. Е. В. Сенин

Skorobogat'ko E. P., Rybalko S. I., Radiochemical regularities of the radionuclide migration mobility of the chernobyl fallout. RIA Prypiat, Chernobyl, 1992, Preprint, 9 p. p.

The necessity to take in account the features of the radioactive chernobyl fallout during the study of secondary redistribution of radionuclides in environment is emphasized in the preprint.

The uncertain gradient of the fractioning of the fission and trans-uranium radioactive elements does not permit to use these radionuclides as an isotopic marks.

The features of chernobyl fallout behaviour in environment restrict the application of the diffusion model of radionuclide redistribution and make it more preferable to consider its dissipation in soils.

Chief editor prof. E. V. Semin

Известный геохимик А. И. Перельман, рассматривая факторы и общие характеристики миграции элементов, отмечал, что для понимания геохимических закономерностей всегда следует учитывать неодинаковую распространенность химических элементов в земной коре - различия в их кларках.

Химическое подобие каких-либо элементов может отходить на второй план, роль и поведение таких элементов в земной коре будут резко отличаться, если эти элементы сильно отличаются своими кларками.

Следовательно, различная распространенность химических элементов в земной коре служит одной из причин, определяющих различия поведения элементов в природе и в лаборатории, и, соответственно отличие "геохимического" мышления от "химического".

Такая картина открывается взгляду, обращенному от процессов, происходящих в лабораторных масштабах, к процессам космического порядка. Однако, и взгляд, обращенный из лаборатории в противоположном по масштабу направлении, в микромир, на уровень достаточно рассредоточенных атомов, ионов или молекул, открывает не менее, на первый взгляд, парадоксальные соотношения, для понимания которых в дополнение к "химическому" необходимо "радиохимическое" мышление. Основание для обозначения его как "радиохимическое" дает то обстоятельство, что впервые именно радиохимия, благодаря специфике изучаемых объектов и посредством своих инструментальных методов, смогла заглянуть в особенности поведения чрезвычайно малых, ультрамикрочастиц вещества, заключенного в макросистемах.

При этом, как отмечал крупнейший радиохимик И. Е. Старик, "необходим специальный подход к изучению состояния и поведения каждого микроэлемента в отдельности, т.к. невозможно распространить выводы, сделанные при изучении одного элемента, на все другие элементы, общим качеством которых является лишь их радиоактивность".

Своеобразно проявляется индивидуальность радиоактивных элементов и в процессах их вторичного перераспределения при трансформации радиосактивных выпадений аварийного выброса на ЧАЭС.

Своеобразие миграционной подвижности в природной среде осколочных и трансураниевых радионуклидов, диффундирующих и выщелачиваемых из диспергированной топливной матрицы, определяется не только индивидуальными химическими свойствами радионуклидов, но и

составом и свойствами окружающей среды, в которую эти радионуклиды попадают. Это, впрочем, достаточно очевидно.

Речь, однако, идет не о том, что сорбционные, ионнообменные, комплексообразующие, фиксирующие свойства компонентов почвы могут оказывать и оказывают существенное влияние на миграционную подвижность радионуклидов.

Речь идет о таком важном свойстве почвенной среды как ее "изотопная представительность" по отношению к поступающему нуклиду. Иногда этот ориентир теряют из виду и рассматривают физико-химические свойства и поведение принесенного в систему радионуклида как поведение некой химической индивидуальности.

Например, часто рассматривают формообразование и миграционную подвижность Sr-90 в почве с учетом самых разнообразных факторов, кроме одного, быть может, самого главного. Атом Sr-90, поступивший в почву из топливной частицы или частицы радиоактивного конденсата, оказывается в числе полностью подобных ему в химическом отношении атомов стронция - Sr-88 (которого ~ 80%), Sr-87 и Sr-86 (которых ~ по 10%). И атом Sr-90 будет полностью подобен этим атомам, пока (через секунду или через 300 лет) не прекратится его существование в результате радиоактивного превращения ядра.

До этого момента атомы Sr-90 подчиняются всем тем термодинамическим и кинетическим нормам поведения, которые навязаны атомам стронция данной макросистемой, частью которой они являются сами. Приписывать радионуклидам какие-либо особые химические свойства методологически несостоятельно.

Sr-90, проявивший себя как радионуклид, перестает быть стронцием и далее речь может идти только о различных энергетических последствиях его распада.

Таким образом, поведение атома Sr-90, пока он существует как таковой, ничем не отличается от поведения множества других, не обреченных на распад атомов стронция. Это множество определяется кларком стронция в осадочных породах, и даже в песчаниках кларк стронция составляет 2×10^{-3} массовых долей. То, что это количество относительно весьма велико, подтверждается простым расчетом: в 5 см слое почвы на площади 30-км зоны содержится 6000 т стронция. Масса же выпавшего в зоне Sr-90 не превосходит 1 кг (из 1,5 кг Sr-90, выброшенного из реактора). Соотношение $1:6 \times 10^6$ отражает и соотношение атомов Sr-90 и его стабильных изотопов. Причем, в почвах и это соотношение едва ли когда-нибудь будет

достигнуто, т.к. Sr-90 до сих пор в значительной мере находится в "капсулированном" состоянии в матрице топливных частиц, не проявляющих пока тенденции к скоростной трансформации.

Различия в кларках концентрации стронция свидетельствует о его довольно сильной дифференциации, но, в любом случае, в динамическом равновесии, отработанном реками и характерном для данной биосферной компоненты и для данного региона, имеется более-менее постоянное соотношение подвижных ионных и иммобилизованных форм стронция. И атомы Sr-90, включаясь в динамические равновесия с участием атомов стронция, не могут заметно повлиять на эти равновесия являясь своей малочисленности.

Таким образом, пользуясь приведенным нами термином, изотопная представительность почв по отношению к поступающему в них Sr-90 аварийного выброса выражена весьма отчетливо. Не претендуя на оригинальность нашего термина, мы рассматриваем его лишь как синоним понятия кларк для случая эмиссии атомов одних изотопов в распределенную систему атомов других изотопов того же самого элемента.

Следовательно, рассматривая параметры миграции Sr-90, всю совокупность процессов, приводящих к его перемещению в почвах или перераспределению между различными фазами и состояниями; создавая различные модели передвижения этого нуклида в почвах, растениях, водах, донных отложениях, гидробионтах; измеряя коэффициенты распределения, диффузии, удержания, замедления, перехода и т.д.; составляя прогнозы изменения радиэкологической обстановки, - во всех случаях следует учитывать, что объектом нашего исследования в природных условиях или в лабораторных экспериментах с натуральными почвами всегда будет суммарный стронций, обозначающий себя посредством распадающихся атомов Sr-90 (или Sr-85, Sr-89).

Сказанное в отношении Sr-90 только пример. Такие же соображения справедливы и в отношении радионуклидов цезия, церия и ряда других элементов, потерявших уже в плане чернобыльской проблематики свою актуальность. И цезий-134 и 137, и церий-144 при кларках их стабильных изотопов соответственно 1×10^{-4} и 9×10^{-3} массовых долей (для осадочных пород-песчаников), попав в почву, оказываются в условиях достаточной изотопной представительности, и включаются в качестве малой добавки (по существу - изотопной метки) в гео- и биохимические процессы с участием их стабильных изотопов.

В таком случае, возникает вопрос, насколько корректно

используется такая радиоактивная метка.

В последние годы появляется все больше работ, результаты которых свидетельствуют об отсутствии простых корреляций между биологической доступностью РН (выражаемой посредством коэффициента перехода) и традиционно определяемыми формами РН (растворимыми, обменными, подвижными, необменными, кислоторастворимыми). Такое несоответствие может быть вызвано тем, что не всегда выполняется одно из основных условий использования изотопной метки, - она должна быть до начала и на протяжении эксперимента равномерно (лучше гомогенно) распределена среди стабильных изотопов данного элемента.

В условиях же изотопного фракционирования с неопределенными градиентами, использование изотопной метки некорректно.

При изучении распределения Sr-90 между твердой и жидкой фазами почвенной системы, между растением и почвой, между почвой и грунтовыми водами по существу выявляются традиционные для данного ландшафтно-геохимического региона потоки миграции стабильных изотопов стронция. Хотим мы того или не хотим. Устоявшийся на протяжении целого геологического периода формирования осадочного чехла перенос стронция не подвержен резким изменениям. 50-км зону ЧАЭС нет оснований рассматривать как источник регулярной эмиссии стабильного стронция в водные стоки.

При отсутствии односторонних стронциевых потоков не может вовлекаться в них и Sr-90. Нет оснований описывать поведение техногенного Sr-90 в миграционных процессах какими-либо особыми параметрами по сравнению с кларковым стронцием.

Сказанное не относится к сильно нарушенным техногенным вмешательствам почвенным системам и водным режимам и не касается также поверхностного смыва радиоактивных загрязнений. Традиционные же потоки миграции элементов сами по себе достаточно консервативны.

Таким образом, изучая, например, коэффициенты перехода Sr-90 из почвы в растения, мы по существу изучаем способность растений в данных агрохимических условиях накапливать стронций вообще.

Будучи преимущественно абиогенным элементом, стронций накапливается высшими растениями слабо, и его накопление может зависеть от локальных (региональных или микроландшафтных) дисперсий кларкового содержания в почве. Естественно, что и накопление Sr-90 будет подчиняться особенностям стронциевого питания растений в конкретных условиях.

Поскольку особенности стронциевого питания изучены слабо и, как правило, для конкретных агрохимических условий не учитываются, поскольку также корректность использования изотопной метки Sr-90 не всегда выдерживается, результаты многих работ данного плана плохо поддаются интерпретации.

Хотя сами по себе факты: поступления Sr-90 из почвы в растения и далее - в трофические цепи; из почвы в грунтовые воды и далее в другие звенья трофических цепей - чаще всего не вызывает сомнений, получения четких количественных закономерностей ожидать трудно. Их верификация может быть проведена на основе корректного использования в экспериментах независимой от радиоактивных выпадений изотопной метки (например, Sr-85 или Sr-89, которые обычно и применяются в физиологических исследованиях).

Еще раз следует подчеркнуть, что подобные соображения относятся не только к Sr-90, но и к другим радионуклидам, поступающим в природную среду с достаточно высокой изотопной представительностью.

Особого обсуждения заслуживают те ситуации, когда такая представительность оказывается на низком уровне или отсутствует вообще (как в случае ТУЭ и некоторых других искусственных элементов).

Необходимо отметить, что явным преувеличением представляется оценки содержания растворимых форм плутония, в частности в подземных водах района захоронения "рыбего" леса. В этом случае также необходимо учитывать способ поступления РН в почвенную среду из выпадений аварийного выброса - от малых меньших концентраций к малым большим при медленном их нарастании. Принимая во внимание весьма низкую растворимость гидроксида плутония (IV) ($PH = 10E(-55)$) и массу, соответствующую i Ку (для плутония-239 - около 16 г), находим, что активности плутония-239 $10E(-11)$ Ку/л соответствует концентрация $10E(-8)$ моль/л и полное осаждение этого РН в виде гидроксидов может быть достигнута уже при значениях водородного показателя почвенного раствора около 3. Еще легче осаждение плутония будет происходить в слабнокислой среде реальных почвенных растворов и (или) при меньшей его молярной концентрации. Ввиду крайне малых молярных концентраций плутония осаждение его сопряжено с образованием псевдоколлоидных форм, механизмы миграции которых существенно отличается от истинно растворенных форм.

Следует остановиться еще на одном радиохимическом аспекте миграции РН, также имеющим связь с особенностями выпадений черно-

быльского выброса и процессов их трансформации.

Изучение механизмов миграции радионуклидов в почвах - важнейшим явлением многих цепочек переноса радионуклидов в природной среде - часто основывается на диффузионных представлениях без учета специфики радиоактивных выпадений чернобыльского выброса. Специфика же, как уже отмечалось, состоит в том, что при поступлении в природную среду огромной активности, масса осколочных и γ -радионуклидов незначительна, рассеяна на большом пространстве и в основном "капсулирована" в топливной матрице, из которой выводится с малой скоростью.

Диффузия в почвах и грунтах представляет собой совокупность элементарных процессов, в результате которых происходит передвижение вещества и, в которых единственной причиной движения является градиент концентрации вещества. В почве или грунте, где часть ионов находится в адсорбированном состоянии, а часть - в растворе, процесс диффузии каждого отдельного иона складывается из последовательных процессов медленной диффузии в адсорбированном состоянии, переходе его в раствор в результате ионного обмена, более быстрой диффузии в растворе и перехода иона вновь в адсорбированное состояние.

Основным уравнением диффузии является второй закон Фика, включающий коэффициент диффузии - основную характеристику диффузионного процесса. Это уравнение было модифицировано В.М. Прохоровым для пористой адсорбирующей многофазной среды с двумя проводящими и двумя непроводящими фазами. Однако смысл его не изменился в том отношении, что движущей силой диффузионной миграции является градиент концентраций.

Такая модель была верифицирована в экспериментах при разовом поступлении сравнительно большого количества растворимых форм РН на поверхность почвы. Были определены коэффициенты диффузии различных РН в почвах в естественных условиях. Для Sr-90 был определен таким образом порядок $D = 10E(-8) - 10E(-7) \text{ см}^2/\text{с}$, соответствующий среднему смещению 0,5 - 2 см/год.

Однако, перенос такой модели на ситуацию с чернобыльскими выпадениями вызывает принципиальные возражения, т.к. в данном случае отсутствуют условия для формирования градиентов концентрации РН - необходимого условия для осуществления диффузионного переноса. Вариантом разового введения сравнительно большого количества РН в водную фазу, контактирующую с адсорбентом, нельзя аппроксимировать процесс, который лимитируется твердофазной диффу-

зией. Например, при годовой эмиссии Sr-90, равной 1%, из кубической топливной частицы с ребром 100 мкм в сопредельный объем почвы, равный 28 объемам частицы, переходит такое количество ионов Sr-90, которое не может даже существенно повлиять на общее количество ионов стронция в таком объеме. Ионов стабильных изотопов кларкового стронция окажется в 40 раз больше, и это как раз те ионы, которые, так сказать, приспособлены к физико-химическим условиям почвенной среды на протяжении уже достаточно длительного времени существования осадочного чехла и находятся в динамическом равновесии с ионами других элементов и с активными сорбционными центрами поверхности веществ почвы.

Медленная эмиссия ионов Sr-90 не влияет существенно на общую концентрацию ионов стронция в почве и, следовательно, на все равновесные процессы с их участием. Такая эмиссия недостаточна для формирования диффузионного фронта, соответствующего условиям выпадения 2-го закона Фика.

Те же физические и физико-химические процессы, которые действуют против одностороннего направленного выноса стронция (или других элементов) из осадочного чехла (в особенности конвекция), будут удерживать в нем и малозначимые (в мольном выражении) количества радионуклидов.

В этом случае, с учетом преобладающего водного режима 30-ки зоны (коэффициент увлажнения ~ 1 , уравнение водного баланса ~ 0 , тип режима - периодически промывной), основным результирующим процессом нам видится рассеяние РН с последующей их фиксацией. Попытки моделирования распространения РН, соответственно, должны быть основаны на рассмотрении механизма рассеяния.