

Ю. О. Іванов, І. М. Малоштан, І. В. Кулик, В. В. Павлюченко

*Український НДІ сільськогосподарської радіології НУБіП України, Чабани, Київська обл.*ІММОБІЛІЗАЦІЯ ^{90}Sr І ^{137}Cs У КОНТРАСТНИХ ЗА ВЛАСТИВОСТЯМИ ҐРУНТАХ

Проаналізовано оцінки іммобілізації ^{90}Sr і ^{137}Cs в 15 контрастних за фізико-хімічними властивостями і гранулометричним складом ґрунтах. Радіонукліди внесено в ґрунти в початковій водорозчинній формі. Послідовна екстракція ґрунтів проведена після піврічного і 22-річного депонування ^{90}Sr і ^{137}Cs у ґрунтах. Обговорюються принципи відмінності в розподілі форм знаходження радіонуклідів у ґрунтах, істотно різна швидкість іммобілізації ^{90}Sr і ^{137}Cs , роль фізико-хімічних властивостей і гранулометричного складу ґрунтів.

Ключові слова: ^{90}Sr , ^{137}Cs іммобілізація, фізико-хімічні властивості і механічний склад ґрунтів.

Вступ

Одним із важливих радіоекологічних завдань на всіх фазах радіаційної аварії є оцінка динаміки процесів мобілізації-іммобілізації у ґрунті радіонуклідів, які інжектують в навколишнє середовище. Зміна цих параметрів указаних процесів у ґрунтах зумовлює адекватність прогнозних оцінок їхньої міграційної рухливості та біологічної доступності.

Результати численних досліджень процесів мобілізації-іммобілізації радіонуклідів випадінь аварійного викиду ЧАЕС у ґрунтах показали суттєву роль фізико-хімічних форм випадінь (паливні та конденсаційні форми), ґрунтово-хімічних умов території, властивостей радіонуклідів як ізотопів конкретних хімічних елементів у формуванні динаміки вказаних процесів [1 - 6]. Зрозуміло, що для отримання адекватних оцінок динаміки іммобілізації у ґрунтах радіонуклідів, які потрапили у ґрунт у різних фізико-хімічних формах, виключно важливі аналогічні оцінки поведінки тих же радіонуклідів, але які потрапили у ґрунт у початковій водорозчинній формі.

Аналіз даних про динаміку змісту мобільних (що екстрагуються) форм радіонуклідів у ґрунтах на різних слідах випадінь дає змогу зробити певні висновки про інтенсивність трансформації радіоактивних випадінь і процеси закріплення радіонуклідів у твердій фазі ґрунту. У цілому вміст форм радіонуклідів, що менш міцно пов'язані з компонентами твердої фази ґрунтів, знижується з часом. Інтенсивність зниження залежить як від початкових фізико-хімічних форм радіоактивних випадінь, так і від властивостей ґрунтів. На основі експериментальних даних розраховано значення періодів напівзменшення вмісту обмінних форм ^{137}Cs (внесеного в ґрунт у початковій водорозчинній формі) для типових дерново-підзолистих ґрунтів Українського полісся (0,8 - 1,4 року) упродовж перших 5 років після попадання

радіонукліда в ґрунт. У подальшому темпи зниження вмісту обмінних форм радіонукліда в ґрунті суттєво знижуються [7, 8].

Метою статті є узагальнення отриманих авторами результатів вивчення процесів іммобілізації ^{90}Sr і ^{137}Cs , які були внесені в ґрунт у початковій водорозчинній формі, у 15 контрастних за фізико-хімічними властивостями і гранулометричним складом ґрунтах при часі депонування в ґрунті більше 20 років.

Матеріали та методи

Для оцінки іммобілізації ^{90}Sr і ^{137}Cs в ґрунті використано проби ґрунту з майданчиків експериментального полігону УНДІСГР у зоні відчуження ЧАЕС [9]. У 1988 р. на вказаному полігоні був закладений модельно-польовий експеримент із використанням металевих ящиків без дна розміром $100 \times 100 \times 50$ см. В ящики були поміщені ґрунти, завезені з різних регіонів України. Повторність 4-кратна. Радіонукліди в початковій водорозчинній формі були розподілені у верхньому 20-сантиметровому горизонті ґрунтів. Упродовж 1988 - 1998 рр. і в 2010 р. ґрунти в ящиках перекопували на глибину 20 см. Оцінки характеристик ґрунтів наведено в табл. 1. Фізико-хімічні властивості ґрунтів визначено стандартними методами [10, 11]. Гранулометричний склад ґрунтів оцінено методом лазерної гранулометрії з використанням аналізатора FRITSCHE Analysette 22 COMFORT.

Оцінку вмісту мобільних форм радіонуклідів в ґрунтах проводили з використанням модифікованого методу Ф. І. Павлоцької [12], з наступною оцінкою питомої активності в екстрактах: ^{137}Cs - методом гамма-спектрометрії; ^{90}Sr - радіохімічним методом. Оцінено вміст радіонуклідів у ґрунтах у таких формах: водорозчинні форми (H_2O), іонообмінні форми (1 М NH_4Ac), форми, пов'язані з оксидами заліза і алюмінію (1 М HCl), необ-

Таблиця 1. Фізико-хімічні властивості і механічний склад ґрунтів

Ґрунт	pH _{KCl}	Гумус, %	Ca _{обм} мг-екв/100 г	K ₂ O _{рухл} мг/кг	Вміст фіз. глини, %
Слабогумусований пісок(рихлопіщаний)	5,2	0,6	1,0	23	3,9
Дерново-підзолистий рихлопіщаний	5,1	1,3	1,6	50	4,9
Дерново-підзолистий зв'язнопіщаний	4,8	1,1	2,0	71	5,3
Світло-сірий лісовий зв'язнопіщаний	6,8	1,0	2,4	51	5,4
Дерново-підзолистий зв'язнопіщаний	6,8	3,8	6,5	157	8,1
Дерново-підзолистий супіщаний	5,4	1,6	2,2	41	11,6
Темно-сірий лісовий легкосуглинний	6,9	2,8	8,0	207	20,8
Дерново-підзолистий легкосуглинний	4,8	2,2	6,8	169	31,6
Чорнозем типовий середньосуглинний	5,2	5,0	12,8	281	32,4
Дерново-підзолистий середньосуглинний	4,8	2,9	5,7	140	32,9
Чорнозем реградований середньосуглинний	5,7	3,5	11,2	141	33,6
Темно-сірий лісовий середньосуглинний	5,2	3,1	12,0	177	37,4
Чорнозем південний важкосуглинний	7,0	2,3	10,7	267	42,7
Чорнозем типовий важкосуглинний	6,2	3,1	13,6	178	42,8
Лугово-чорноземний важкосуглинний	7,0	4,0	12,4	314	43,4

мінні форми (6 М HNO₃). У зв'язку із специфічною сорбцією твердою фазою ґрунту для ¹³⁷Cs оцінено також вміст у сухому залишку ґрунту після проведення послідовної екстракції.

Питому активність радіонуклідів у ґрунтах визначали загальноприйнятими методами - ¹³⁷Cs - гамма-спектрометричним, ⁹⁰Sr - бета-спектрометричним [13] і радіохімічним [14].

Статистичну обробку результатів проводили загальноприйнятими методами з використанням програмних засобів MS Excel 2007 и Statistica 10 [15].

Результати та обговорення

Оцінки відсоткового вмісту форм ⁹⁰Sr, що екстрагуються з ґрунтів при часі депонування радіонукліда впродовж 0,5 року, наведено в табл. 2, упродовж 22 років – у табл. 3.

Результати послідовної екстракції ґрунтів показують суттєво різний розподіл ⁹⁰Sr по його мобільності в контрастних за властивостями ґрунтах. Частка водорозчинних форм ⁹⁰Sr через 0,5 року після внесення радіонукліда в ґрунт варіює в 44,7 раза - від 1,8 до 80,6 % від валового вмісту в ґрунті. Мінімальний вміст водорозчинних форм ⁹⁰Sr відзначено для ґрунтів важкого механічного складу (чорнозем південний важкосуглинний, лугово-чорноземний важкосуглинний, чорнозем реградований середньосуглинний, темно-сірий лісовий середньосуглинний, чорнозем типовий важкосуглинний), максимальний - для легких мінеральних ґрунтів (дерново-підзолисті піщані та супіщані ґрунти).

Частка іонообмінних форм ⁹⁰Sr варіює в 5,7 раза - від 14,0 до 80,3 % від валового вмісту в ґрунті. Максимальний вміст іонообмінних форм ⁹⁰Sr відзначено для ґрунтів важкого механічного

складу (чорнозем реградований середньосуглинний, темно-сірий лісовий середньосуглинний, чорнозем типовий важкосуглинний), мінімальний - для легких мінеральних ґрунтів (дерново-підзолисті піщані та супіщані ґрунти).

Частка форм ⁹⁰Sr, що пов'язані з оксидами заліза та алюмінію (екстракція 1М HCl) варіює в 10,2 раза - від 2,8 до 28,7 % від валового вмісту в ґрунті. Максимальний вміст таких форм ⁹⁰Sr відзначено для ґрунтів важкого механічного складу (чорнозем реградований середньосуглинний, темно-сірий лісовий середньосуглинний, чорнозем типовий важкосуглинний), мінімальний - для легких мінеральних ґрунтів (дерново-підзолисті піщані та супіщані ґрунти).

Мінімальна частка ⁹⁰Sr через 0,5 року після внесення радіонукліда в ґрунт екстрагується 6М азотною кислотою, тобто знаходиться в необмінних формах. При відмінності для ґрунтів різних типів у 14,2 раза вміст ⁹⁰Sr в цій фракції варіює від 0,3 до 4,4 %.

Проте найбільш важливими результатами є оцінки сумарного вмісту водорозчинних і обмінних форм радіонукліда в ґрунтах, оскільки саме вміст указаних форм зумовлює біологічну доступність ⁹⁰Sr рослинам [16]. Вміст указаних форм радіонукліда в ґрунтах через 0,5 року після внесення радіонукліда варіює всього в 1,4 раза (від 68,7 % у чорноземі типовому важкосуглинному до 96,9 % у дерново-підзолистому піщаному ґрунті).

Для оцінки зміни в часі вмісту форм ⁹⁰Sr, що екстрагуються в ґрунтах, результати послідовної екстракції зразків зі свіжовнесеним радіонуклідом порівнювали з аналогічними оцінками, які були отримані для зразків ґрунтів з часом депонування радіонукліда 22 років (див. табл. 3).

Таблиця 2. Вміст форм знаходження ^{90}Sr в ґрунтових зразках через 0,5 року після внесення в ґрунт, %

Ґрунт	Форми, що екстрагуються			
	водорозчинні	іонообмінні	пов'язані з оксидами заліза та алюмінію	необмінні
Слабогумусований пісок(рихлопіщаний)	80,6 ± 8,5	14,0 ± 1,6	4,3 ± 0,8	1,1 ± 0,2
Дерново-підзолистий рихлопіщаний	79,6 ± 15,4	17,3 ± 3,4	2,8 ± 0,6	0,3 ± 0,1
Дерново-підзолистий зв'язнопіщаний	58,0 ± 5,9	33,9 ± 3,6	7,0 ± 0,9	1,1 ± 0,1
Світло-сірий лісовий зв'язнопіщаний	56,5 ± 5,1	30,3 ± 2,9	10,8 ± 1,1	2,5 ± 0,2
Дерново-підзолистий зв'язнопіщаний	28,8 ± 3,0	43,0 ± 4,4	27,5 ± 2,9	0,8 ± 0,1
Дерново-підзолистий супіщаний	59,6 ± 6,9	30,5 ± 3,6	8,3 ± 1,1	1,5 ± 0,1
Темно-сірий лісовий легкосуглинний	38,0 ± 3,7	45,0 ± 4,4	16,3 ± 1,7	0,7 ± 0,2
Дерново-підзолистий легкосуглинний	47,1 ± 4,9	44,6 ± 4,7	7,7 ± 0,9	0,6 ± 0,1
Чорнозем типовий середньосуглинний	10,9 ± 1,3	57,8 ± 6,4	28,7 ± 3,2	2,6 ± 0,2
Дерново-підзолистий середньосуглинний	2,9 ± 0,5	65,1 ± 8,8	29,2 ± 4,0	2,8 ± 0,2
Чорнозем реградований середньосуглинний	2,6 ± 0,5	69,8 ± 9,5	23,3 ± 3,2	4,2 ± 0,3
Темно-сірий лісовий середньосуглинний	2,3 ± 0,5	77,7 ± 11,5	17,4 ± 2,6	2,5 ± 0,2
Чорнозем південний важкосуглинний	2,5 ± 0,5	77,0 ± 13,0	19,4 ± 3,4	1,2 ± 0,1
Чорнозем типовий важкосуглинний	2,1 ± 0,4	62,0 ± 8,0	31,5 ± 4,0	4,4 ± 0,3
Лугово-чорноземний важкосуглинний	1,8 ± 0,4	69,3 ± 9,3	26,2 ± 3,6	2,7 ± 0,2

Таблиця 3. Вміст форм знаходження ^{90}Sr в ґрунтових зразках через 22 роки після внесення в ґрунт, %

Ґрунт	Форми, що екстрагуються			
	водорозчинні	іонообмінні	пов'язані з оксидами заліза та алюмінію	необмінні
Слабогумусований пісок(рихлопіщаний)	3,7 ± 0,8	44,7 ± 9,2	48,1 ± 7,6	3,6 ± 2,2
Дерново-підзолистий рихлопіщаний	1,4 ± 0,4	54,3 ± 5,5	41,7 ± 4,9	2,4 ± 1,2
Дерново-підзолистий зв'язнопіщаний	1,2 ± 0,1	73,6 ± 5,6	23,9 ± 1,8	1,3 ± 0,2
Світло-сірий лісовий зв'язнопіщаний	5,8 ± 0,4	63,1 ± 4,7	28,6 ± 2,6	2,5 ± 0,5
Дерново-підзолистий зв'язнопіщаний	1,3 ± 0,1	35,9 ± 2,7	62,0 ± 4,6	0,8 ± 0,1
Дерново-підзолистий супіщаний	2,3 ± 0,1	66,7 ± 5,0	29,7 ± 2,2	1,3 ± 0,2
Темно-сірий лісовий легкосуглинний	2,3 ± 0,1	59,3 ± 4,3	37,1 ± 2,7	1,2 ± 0,2
Дерново-підзолистий легкосуглинний	0,54 ± 0,05	77,5 ± 6,0	20,0 ± 1,5	2,0 ± 0,2
Чорнозем типовий середньосуглинний	0,49 ± 0,04	65,1 ± 4,8	27,8 ± 2,0	6,6 ± 0,5
Дерново-підзолистий середньосуглинний	2,1 ± 0,1	72,8 ± 5,5	23,6 ± 1,8	1,5 ± 0,2
Чорнозем реградований середньосуглинний	1,4 ± 0,1	68,2 ± 5,1	26,2 ± 2,0	4,2 ± 0,4
Темно-сірий лісовий середньосуглинний	1,2 ± 0,1	74,3 ± 5,6	20,8 ± 1,6	3,6 ± 0,3
Чорнозем південний важкосуглинний	2,2 ± 0,1	71,1 ± 5,3	24,4 ± 1,8	2,3 ± 0,3
Чорнозем типовий важкосуглинний	2,0 ± 0,1	73,3 ± 5,5	21,6 ± 1,6	3,2 ± 0,3
Лугово-чорноземний важкосуглинний	2,4 ± 0,1	62,0 ± 4,6	34,1 ± 2,5	1,6 ± 0,2

Результати послідовної екстракції ґрунтів показують суттєву зміну з часом вмісту в ґрунті фракцій радіонукліда, що екстрагуються. Частка водорозчинних форм радіонукліда за вказаний час знизилась дуже суттєво - від 1 до 86 разів. Мінімальне зниження вмісту водорозчинних форм радіонукліда відзначено для ґрунтів важкого механічного складу. Максимальне зниження вмісту водорозчинних форм радіонукліда відзначено для ґрунтів легкого механічного складу (дерново-підзолисті піщані та супіщані ґрунти).

Частка іонообмінних форм радіонукліда за вказаний час знизилась не так значно - від 1,4 до 2,4 раза, для ряду ґрунтів вміст вказаних форм збільшився в 1,1 - 3,7 раза. Максимальне зниження вмісту іонообмінних форм радіонукліда відзначено для дерново-підзолистих піщаних

ґрунтів. Збільшення вмісту іонообмінних форм радіонукліда відзначено для ґрунтів важкого механічного складу. Зміна вмісту в ґрунтах форм ^{90}Sr , що екстрагуються 1М НСІ (що пов'язані з оксидами заліза та алюмінію), характеризується зростанням в 1,1 - 14,6 раза. Надзвичайно важливою є незначна зміна оцінок сумарного вмісту водорозчинних та іонообмінних форм радіонукліда в ґрунтах з часом - з 69 - 97 % через 0,5 року депонування в ґрунтах до 48 - 78 % через 22 роки після депонування в ґрунтах. При цьому необхідно відзначити, що порівняно низький вміст вказаних форм ^{90}Sr в найбільш легких за механічним складом ґрунтах (48 - 56 %) пов'язаний не з процесами іммобілізації радіонукліда, а з винесенням його основного запасу (96 - 98 %) за 22 роки в підорний горизонт [17].

Щодо необмінних форм радіонукліда (що екстрагуються 6M азотною кислотою) для більшої частини використовуваних ґрунтів відзначено незначну зміну вмісту вказаних форм радіонукліда. За час депонування в ґрунті вміст вказаних форм радіонукліда змінився незначно - з 0,3 - 4,4 % через 0,5 року депонування в ґрунтах до 0,8 - 6,6 % через 22 роки після початку депонування.

Аналіз отриманих експериментальних даних показує, що зниження в ґрунтах форм ^{90}Sr , які є біологічно доступними рослинам (сума водорозчинних та іонообмінних форм), у цілому, відбувається в часі дуже повільно.

У перший період часу, якщо прийняти вміст вказаних форм радіонукліда при внесенні в ґрунт за 100 % ($t = 0$), то через 0,5 року депонування в ґрунті вміст вказаних форм знижується від 68,7 - 80 % у ґрунтах важкого механічного складу до 90 - 97 % від валового вмісту в ґрунтах легкого механічного складу. Упродовж подальших 22 - 23 років відбувається зниження вмісту вказаних

форм радіонукліда менш ніж у 2 рази. У ґрунтах важкого механічного складу сумарний вміст водорозчинних та іонообмінних форм радіонукліда знижується до 65 - 75 %, у ґрунтах легкого механічного складу - від 48 до 78 % від валового вмісту. Зрозуміло, як уже відзначалося вище, необхідно мати на увазі, що суттєва частина ^{90}Sr за зазначений термін була винесена в підорний горизонт [17].

Отримані дані показують, що перерозподіл ^{90}Sr в контрастних за властивостями ґрунтах між різними по мобільності фракціями радіонукліда відбувається з різною інтенсивністю. Зокрема, фіксація радіонукліда відбувається істотно швидше в ґрунтах важкого механічного складу в порівнянні з легкими мінеральними ґрунтами.

Оцінки відсоткового вмісту форм ^{137}Cs , що екстрагуються з ґрунтів при часі депонування радіонукліда впродовж 0,5 року, наведено в табл. 4, упродовж 22 років - у табл. 5.

Таблиця 4. Вміст форм знаходження ^{137}Cs в ґрунтових зразках через 0,5 року після внесення в ґрунт, %

ґрунт	Форми, що екстрагуються				Сухий залишок
	водорозчинні	іонообмінні	пов'язані з оксидами заліза та алюмінію	необмінні	
Слабкогумусований пісок(рихлопіщаний)	1,03 ± 0,21	34,9 ± 3,7	11,0 ± 2,5	46,8 ± 4,9	6,3 ± 0,8
Дерново-підзолистий рихлопіщаний	1,2 ± 0,27	28,6 ± 3,0	7,6 ± 1,7	54,0 ± 5,7	8,6 ± 1,1
Дерново-підзолистий зв'язнопіщаний	0,17 ± 0,14	33,0 ± 3,5	4,6 ± 1,1	49,5 ± 5,2	12,8 ± 1,6
Світло-сірий лісовий зв'язнопіщаний	0,32 ± 0,15	30,8 ± 3,2	8,1 ± 1,8	50,2 ± 5,3	10,6 ± 1,3
Дерново-підзолистий зв'язнопіщаний	0,11 ± 0,08	29,5 ± 3,4	7,0 ± 1,7	49,9 ± 5,3	13,4 ± 1,7
Дерново-підзолистий супіщаний	0,27 ± 0,16	27,8 ± 2,9	6,6 ± 1,6	52,2 ± 5,5	13,1 ± 1,6
Темно-сірий лісовий легкосуглинний	0,12 ± 0,10	26,2 ± 3,0	4,9 ± 1,3	49,9 ± 5,3	18,8 ± 2,3
Дерново-підзолистий легкосуглинний	0,12 ± 0,10	16,1 ± 1,9	2,6 ± 0,8	52,9 ± 5,7	28,3 ± 3,5
Чорнозем типовий середньосуглинний	0,12 ± 0,10	14,6 ± 1,7	3,9 ± 1,0	38,2 ± 4,1	43,1 ± 5,0
Дерново-підзолистий середньосуглинний	0,13 ± 0,10	22,4 ± 2,6	3,4 ± 1,1	46,5 ± 4,9	27,6 ± 3,4
Чорнозем реградований середньосуглинний	0,13 ± 0,10	11,0 ± 1,4	1,7 ± 0,6	45,5 ± 5,0	41,6 ± 5,3
Темно-сірий лісовий середньосуглинний	0,12 ± 0,10	10,8 ± 1,3	1,7 ± 0,6	39,4 ± 4,3	48,1 ± 5,6
Чорнозем південний важкосуглинний	0,10 ± 0,08	12,3 ± 1,4	3,4 ± 0,9	44,0 ± 4,8	40,2 ± 5,1
Чорнозем типовий важкосуглинний	0,11 ± 0,09	10,8 ± 1,3	2,0 ± 0,7	55,1 ± 6,0	32,0 ± 4,0
Лугово-чорноземний важкосуглинний	0,10 ± 0,08	13,1 ± 1,5	2,6 ± 0,8	41,1 ± 4,4	43,1 ± 5,0

Результати послідовної екстракції ґрунтів показують суттєво різний розподіл ^{137}Cs по його мобільності в контрастних за властивостями ґрунтах. Частка водорозчинних форм ^{137}Cs через 0,5 року після внесення радіонукліда в ґрунті варіює в 9 разів - від 0,13 до 1,2 % від валового вмісту в ґрунті. Мінімальний вміст водорозчинних форм ^{137}Cs відзначено для ґрунтів важкого механічного складу (чорнозем південний, лугово-чорноземний, чорнозем реградований, темно-сірий лісовий, чорнозем типовий важкосуглинний), максималь-

ний - для легких мінеральних ґрунтів (дерново-підзолисті піщані, слабокгоумусований пісок).

Частка іонообмінних форм ^{137}Cs при вказаному часі депонування в ґрунті варіює в 3,2 раза - від 10,8 до 34,9 % від валового вмісту в ґрунті. Мінімальний вміст іонообмінних форм ^{137}Cs відзначено для ґрунтів важкого механічного складу (чорнозем реградований, темно-сірий лісовий, чорнозем типовий), максимальний - для легких мінеральних ґрунтів (дерново-підзолистий піщаний, слабокгоумусований пісок, світло-сірий лісовий зв'язнопіщаний).

Таблиця 5. Вміст форм знаходження ¹³⁷Cs в ґрунтових зразках через 22 роки після внесення в ґрунт, %

Ґрунт	Форми, що екстрагуються				Сухий залишок
	водорозчинні	іонообмінні	пов'язані з оксидами заліза та алюмінію	необмінні	
Слабогумусований пісок (рихлопіщаний)	0,41 ± 0,09	3,2 ± 0,4	5,0 ± 0,5	75,4 ± 5,8	16,1 ± 1,3
Дерново-підзолистий рихлопіщаний	0,15 ± 0,08	4,7 ± 0,3	9,5 ± 0,9	65,8 ± 5,1	20,0 ± 2,0
Дерново-підзолистий зв'язнопіщаний	0,04 ± 0,02	5,1 ± 0,6	6,3 ± 0,8	72,3 ± 7,5	16,2 ± 1,7
Світло-сірий лісовий зв'язнопіщаний	0,10 ± 0,03	8,1 ± 0,9	11,6 ± 0,9	58,9 ± 5,1	21,4 ± 2,1
Дерново-підзолистий зв'язнопіщаний	0,07 ± 0,01	5,3 ± 0,5	6,9 ± 0,7	68,1 ± 5,8	19,6 ± 1,7
Дерново-підзолистий супіщаний	0,03 ± 0,01	6,0 ± 0,5	4,9 ± 0,5	57,8 ± 5,0	31,2 ± 2,8
Темно-сірий лісовий легкосуглинний	0,15 ± 0,11	5,3 ± 0,5	4,0 ± 0,4	55,2 ± 4,8	35,3 ± 3,2
Дерново-підзолистий легкосуглинний	0,05 ± 0,04	5,2 ± 0,5	2,3 ± 0,3	43,9 ± 4,0	48,6 ± 3,9
Чорнозем типовий середньосуглинний	0,009 ± 0,005	2,8 ± 0,3	2,5 ± 0,3	49,0 ± 4,3	45,7 ± 4,2
Дерново-підзолистий середньосуглинний	0,015 ± 0,012	4,1 ± 0,4	2,3 ± 0,3	47,5 ± 4,1	46,0 ± 3,9
Чорнозем реградований середньосуглинний	0,03 ± 0,02	2,4 ± 0,4	2,1 ± 0,4	32,0 ± 3,2	63,5 ± 5,3
Темно-сірий лісовий середньосуглинний	0,02 ± 0,01	1,8 ± 0,2	1,9 ± 0,3	46,5 ± 4,3	49,8 ± 4,2
Чорнозем південний важкосуглинний	0,02 ± 0,01	2,8 ± 0,3	2,3 ± 0,2	51,5 ± 4,3	43,3 ± 3,6
Чорнозем типовий важкосуглинний	0,009 ± 0,005	4,0 ± 0,3	2,6 ± 0,4	41,2 ± 3,3	52,2 ± 3,9
Лугово-чорноземний важкосуглинний	0,011 ± 0,009	3,6 ± 0,5	2,9 ± 0,4	51,7 ± 4,7	41,9 ± 3,6

Частка форм ¹³⁷Cs, що пов'язані з оксидами заліза та алюмінію (екстракція 1М НСІ), варіює в 6,5 раза - від 1,7 до 8,1 % від валового вмісту в ґрунті. Мінімальний вміст таких форм ¹³⁷Cs відзначено для ґрунтів важкого механічного складу (чорнозем реградований, темно-сірий лісовий, чорнозем типовий), максимальний - для легких мінеральних ґрунтів (дерново-підзолистий піщаний, слабогумусований пісок).

Максимальна частка ¹³⁷Cs через 0,5 року після внесення радіонукліда в ґрунт екстрагується 6М азотною кислотою, тобто знаходиться в необмінних формах. При невеликій відмінності для ґрунтів різних типів (1,4 раза) вміст ¹³⁷Cs в цій фракції варіює від 38,2 до 55 %.

Частка ¹³⁷Cs, фіксованого твердою фазою ґрунту, через 0,5 року після внесення радіонукліда варіює в різних ґрунтах майже у 8 разів. Мінімальний вміст фіксованих форм ¹³⁷Cs (від 6,1 %) відзначено для ґрунтів легкого механічного складу (дерново-підзолистий піщаний, слабогумусований пісок), максимальний - для ґрунтів важкого механічного складу - до 48,1 % (чорнозем реградований, темно-сірий лісовий, чорнозем типовий, чорнозем типовий важкосуглинний).

Результати послідовної екстракції ґрунтів показують суттєву зміну з часом вмісту фракцій радіонукліда, що екстрагуються, у ґрунті (див. табл. 4 і 5).

Частка водорозчинних форм радіонукліда за вказаний час знизилась дуже суттєво - від 2 до 31 разу. Максимальне зниження вмісту водороз-

чинних форм радіонукліда (20 - 31 раз) відзначено для ґрунтів важкого механічного складу (дерново-підзолистий важкосуглинний, чорнозем типовий важкосуглинний). Мінімальне зниження вмісту водорозчинних форм радіонукліда (2 - 7 разів) відзначено для ґрунтів легкого механічного складу (дерново-підзолистий піщаний, слабогумусований пісок). Зниження вмісту водорозчинних форм радіонукліда в інших ґрунтах характеризується проміжними значеннями.

Частка іонообмінних форм радіонукліда за вказаний час знизилась не так значно - від 3,1 до 10 разів. Максимальне зниження вмісту іонообмінних форм радіонукліда відзначено для дерново-підзолистого піщаного ґрунту, слабогумусованого піска, а також для дерново-підзолистого важкосуглинного ґрунту. Мінімальне зниження вмісту іонообмінних форм радіонукліда відзначено для дерново-підзолистого супіщаного ґрунту. Зниження вмісту іонообмінних форм радіонукліда в інших ґрунтах характеризується проміжними значеннями.

Зміна вмісту в ґрунтах форм ¹³⁷Cs, що екстрагуються 1М НСІ (що пов'язані з оксидами заліза та алюмінію), характеризується невеликим варіюванням (до 1,5 раза) як у бік збільшення, так і в бік зниження. Аналогічна тенденція спостерігається в зміні вмісту необмінних форм радіонукліда (що екстрагуються 6М азотною кислотою) - невелике варіювання (до 1,5 раза) як у бік збільшення, так і в бік зниження.

Вміст фіксованих форм ^{137}Cs (що знаходяться в сухому залишку після усіх стадій послідовної екстракції) за вказаний час у всіх ґрунтах збільшується в 1,1 - 2,6 раза.

Отримані дані показують, що з часом перерозподіл ^{137}Cs в контрастних за властивостями ґрунтах між різними по мобільності фракціями радіонукліда відбувається з різною інтенсивністю. Зокрема, фіксація радіонукліда відбувається істотно швидше в ґрунтах важкого механічного складу в порівнянні з легкими мінеральними ґрунтами.

Порівняння процесів іммобілізації ^{90}Sr і ^{137}Cs в контрастних за фізико-хімічними властивостями і гранулометричним складом ґрунтах показує суттєві відмінності в спрямованості та інтенсивності вказаних процесів. Оскільки основним механізмом сорбції ^{90}Sr твердою фазою ґрунту є іонний обмін, через 22 роки депонування в ґрунті радіонуклід представлений більшою мірою іонообмінними формами (44 - 78 % від сумарного вмісту радіонукліда в ґрунті), що свідчить про низьку інтенсивність його іммобілізації. Це підтверджується низьким вмістом необмінних форм радіонукліда в різних ґрунтах (0,8 - 6,6 %) навіть через 22 роки депонування.

У той же час розподіл ^{137}Cs по фракціях у результаті послідовної екстракції принципово інший, а час трансформації радіонукліда в малорухомі форми істотно менший у порівнянні з ^{90}Sr . Уже через 0,5 року депонування в ґрунті основна доля радіонукліда в ґрунтах міститься в необмінній формі і твердому залишку після всіх стадій послідовної екстракції, а через 22 роки депонування в ґрунті вміст радіонукліда в цих формах збільшується до 80 - 96 %. Вміст ^{137}Cs в іонообмінних формах істотно нижче і знижується з 11 - 33 % після піврічного депонування в ґрунтах до 2 - 8 % після 22-річного перебування в ґрунтах. Отримані оцінки свідчать про міцну сорбцію (фіксацію) ^{137}Cs твердою фазою ґрунтів, а також про значно швидше протікання процесів іммобілізації радіонукліда в ґрунтах.

Висновки

1. З використанням методу послідовної екстракції отримано експериментальні оцінки інтенсивності процесів іммобілізації ^{90}Sr і ^{137}Cs , які були внесені в ґрунт у початковій водорозчинній формі, в орних горизонтах 15 контрастних за властивостями ґрунтах, показано суттєві відмінності інтенсивності протікання цих процесів в часі для ^{90}Sr і ^{137}Cs , у тому числі залежно від властивостей ґрунтів.

2. Основна частина ^{90}Sr після піврічного депонування в ґрунті представлена водорозчинними та іонообмінними формами (69 - 97 %) з максимальним вмістом у ґрунтах легкого і мінімальним вмістом у ґрунтах важкого гранулометричного складу. Процеси іммобілізації ^{90}Sr в ґрунтах протікають досить повільно - через 22 роки депонування в ґрунті вміст вказаних форм радіонукліда знижується до 48 - 78 %, а вміст необмінних форм радіонукліда в різних ґрунтах становить 0,8 - 6,6 %.

3. Процеси формоутворення ^{137}Cs в ґрунтах принципово відрізняються від таких для ^{90}Sr . Основна частина ^{137}Cs після піврічного депонування в ґрунті міститься в необмінній формі і твердому залишку після всіх стадій послідовної екстракції (53 - 87 %), а через 22 роки депонування в ґрунті вміст радіонукліда в цих формах збільшується до 80 - 96 %. Вміст ^{137}Cs в іонообмінних формах істотно нижче і знижується з 11 - 33 % після піврічного депонування в ґрунтах до 2 - 8 % після 22-річного перебування в ґрунтах. Отримані оцінки свідчать про міцну сорбцію (фіксацію) ^{137}Cs твердою фазою ґрунтів, а також про значно швидше протікання процесів іммобілізації радіонукліда в ґрунтах.

4. Важливими результатами є оцінки сумарного вмісту водорозчинних та обмінних форм ^{90}Sr в ґрунтах, оскільки саме вміст вказаних форм зумовлює біологічну доступність ^{90}Sr рослинам. Повільне зниження в часі змісту вказаних форм радіонукліда в ґрунтах зумовлює аналогічне повільне зниження в часі параметрів переходу радіонукліда з ґрунту в рослини.

СПИСОК ЛІТЕРАТУРИ

1. Круглов С.В., Куринов А.Д., Архитов Н.П. Формы нахождения радионуклидов в почвах 30-км зоны ЧАЭС и их изменение со временем // IV Междунар. науч.-техн. конф. "Чернобыль-94". "Итоги 8 лет работ по ликвидации последствий аварии на ЧАЭС". Сб. докл. - Т. I. - Чернобыль, 1996. - С. 243 - 250.
2. Sanzharova N.I., Fesenko S.V., Alexakhin R.M. et al. Changes in the forms of ^{137}Cs and its availability for plants as dependent on properties of fallout after the Chernobyl nuclear power plant accident // Sci. Total Environ. - 1994. - Vol. 154. - P. 9 - 22.
3. Кривохатский А.С., Смирнова Е.А., Савоненков В.Г. и др. Выщелачивание радионуклидов из почвы и техногенных частиц западного следа аварии на ЧАЭС // "Чернобыль-90". Докл. 2-го Всесоюз. науч.-техн. совещания по итогам ликвидации последствий аварии на Чернобыльской АЭС. - Т. 1, ч. 1. - Чернобыль, 1990. - С. 68 - 77.
4. Иванов Ю.А. Радиоэкологическое обоснование долгосрочного прогнозирования радиационной

- обстановки на сельскохозяйственных угодьях в случае крупных ядерных аварий (на примере аварии на Чернобыльской АЭС): Автореф. дис. ... д-ра биол. наук. - Обнинск, 1997. - 50 с.
5. *Kashparov V.A., Protsak V.P., Ahamdach N. et al.* Dissolution kinetics of particles of irradiated Chernobyl nuclear fuel: influence of pH and oxidation state on the release of radionuclides in contaminated soil of Chernobyl // *Journal of Nuclear Materials.* - Vol. 279. - 2000. - P. 225 - 233.
 6. *Іванов Ю.О.* Динаміка перерозподілу радіонуклідів у ґрунтах і рослинності // *Чорнобиль. Зона відчуження. (Збірник наукових праць).* - К.: Наук. думка, 2001. - С. 47 - 76.
 7. *Долін В.В., Бондаренко Г.М., Орлов О.О.* Самоочищення природного середовища після Чорнобильської катастрофи. - К.: Наук. думка, 2004. - 223 с.
 8. *Іванов Ю.А.* Анализ факторов, определяющих долговременную динамику миграции радионуклидов в почвенно-растительном покрове // *Проблемы Чернобыльской зоны отчуждения.* - 2009. - № 9. - С. 23 - 39.
 9. *Бондарь П.Ф., Лоцилов Н.А., Дутов А.И. и др.* Общие закономерности загрязнения продукции растениеводства на территории, подвергшейся радиоактивному загрязнению в результате аварии на ЧАЭС // *Проблемы сельскохозяйственной радиологии: Сб. науч. тр. / Под ред. Н. А. Лоцилова.* - К., 1991. - С. 88 - 105.
 10. *Аринушкина Е.В.* Руководство по химическому анализу почв. 2-е изд., перераб. и доп. - М.: МГУ, 1970. - 487 с.
 11. *Вадюнина А. Ф., Корчагина З. А.* Методы исследования физических свойств почв. 3-е изд., перераб. и доп. - М.: Агропромиздат, 1986. - 176 с.
 12. *Павлюкья Ф.И.* Миграция радиоактивных продуктов глобальных выпадений в почвах. - М.: Атомиздат, 1974. - 216 с.
 13. *Активність, удельная активність и об'ємна активність бета-ізлучаючих радіонуклідів в счєтних образцях об'єктів технологічних и природних сред.* Методика выполнения измерений с использованием спектрометра энергий бета-излучения сцинтиляционного типа СЕБ-01.-МИ-12-05-99 / Разработчики Н. И. Кравченко, Г. Д. Коваленко, И. А. Лихтарев. - ГНПО "Метрология", Украинский НИИ экологических проблем, Институт радиационной защиты АТН Украины. - 69 с.
 14. *Павлюкья Ф.И.* Основные принципы радиохимического анализа объектов природной среды и методы определения радионуклидов стронция и трансурановых элементов // *Журн. аналит. химии.* - 1997. - Т. 52, № 2. - С. 126 - 143.
 15. *McLain D.H.* Drawing contours from arbitrary data points // *The Computer Journal.* - 1974. - Vol. 17. - P. 318 - 324.
 16. *Анненков Б.Н., Юдинцева Е.В.* Основы сельскохозяйственной радиологии. - М.: Агропромиздат, 1991. - 297 с.
 17. *Іванов Ю.А., Левчук С.Е., Хомутинин Ю.В. и др.* Подвижность ^{90}Sr и ^{137}Cs в контрастных по свойствам почвах // *Ядерна фізика та енергетика.* - 2013. - Т. 14, № 3. - С. 288 - 294.

Ю. А. Иванов, И. М. Малоштан, И. В. Кулик, В. В. Павлюченко

Украинский НИИ сельскохозяйственной радиологии НУБиП Украины, Чабаны, Киевская обл.

ИММОБИЛИЗАЦИЯ ^{90}Sr И ^{137}Cs В КОНТРАСТНЫХ ПО СВОЙСТВАМ ПОЧВАХ

Проанализированы оценки иммобилизации ^{90}Sr и ^{137}Cs в 15 контрастных по физико-химическим свойствам и гранулометрическому составу почвах. Радионуклиды внесены в почвы в исходной водорастворимой форме. Последовательная экстракция почв проведена после полугодичного и 22-летнего депонирования ^{90}Sr и ^{137}Cs в почвах. Обсуждаются принципиальные различия в распределении форм нахождения радионуклидов в почвах, существенно различная скорость иммобилизации ^{90}Sr и ^{137}Cs , роль физико-химических свойств и гранулометрического состава почв.

Ключевые слова: ^{90}Sr , ^{137}Cs иммобилизация, физико-химические свойства и гранулометрический состав почв.

Yu. A. Ivanov, I. M. Maloshtan, I. V. Kulik, V. V. Pavlyuchenko

Ukrainian Institute of Agricultural Radiology, National University of Life and Environmental Sciences of Ukraine, Chabany, Kyiv region

IMMOBILIZATION OF ^{90}Sr AND ^{137}Cs IN SOILS, CONTRASTED BY PROPERTIES

Assessments of ^{90}Sr and ^{137}Cs immobilization in 15 soils, contrasted by their physical-and-chemical properties, and granulometric composition have been analyzed. Radionuclides have been introduced into soils in the initial water-soluble form. Sequential extraction of soils has been carried out after half and 22 years of radionuclide depositing in soils. Principal differences of radionuclide speciation in soils, significantly different intensity of ^{90}Sr and ^{137}Cs immobilization in soils, as well as the role of soils physical-and-chemical properties, and granulometric composition are discussed.

Keywords: ^{90}Sr , ^{137}Cs immobilization, physical-and-chemical properties and granulometric composition of soil.

REFERENCES

1. *Kruglov S.V., Kurinov A.D., Arkhipov N.P.* // IV Mezhdunar. nauch.-tekhn. konf. "Chernobyl'-94". "Itogi 8 let robot po likvidatsii posledstvij avarii na ChAES". Sb. dokl. - T. I. - Chernobyl, 1996. - P. 243 - 250. (Rus)
2. *Sanzharova N.I., Fesenko S.V., Alexakhin R.M. et al.* Changes in the forms of ^{137}Cs and its availability for plants as dependent on properties of fallout after the Chernobyl nuclear power plant accident // *Sci. Total Environ.* - 1994. - Vol. 154. - P. 9 - 22.
3. *Krivokhatskij A.S., Smirnova E.A., Savonenkov V.G. et al.* // "Chernobyl'-90". Dokl. 2-go Vsesoyuz. nauch.-tekhn. soveshchaniya po itogam likvidatsii posledstvij avarii na Chernobyl'skoj AES. - Vol. 1, Part 1. - Chernobyl, 1990. - P. 68 - 77. (Rus)
4. *Ivanov Yu.A.* Radioecological justification of long-term forecasting of radiation situation on farmland in case of heavy nuclear accidents (for example, the Chernobyl accident): Thesis of the doctor of biol. sciences. - Obninsk, 1997. - 50 p. (Rus)
5. *Kashparov V.A., Protsak V.P., Ahamdach N. et al.* Dissolution kinetics of particles of irradiated Chernobyl nuclear fuel: influence of pH and oxidation state on the release of radionuclides in contaminated soil of Chernobyl // *Journal of Nuclear Materials.* - Vol. 279. - 2000. - P. 225 - 233.
6. *Ivanov Yu.O.* // Chornobyl. Zona vidchuzhennya. (Zbirnyk naukovykh prats). - Kyiv: Nauk. dumka, 2001. - P. 47 - 76. (Ukr)
7. *Dolin V.V., Bondarenko G.M., Orlov O.O.* Environmental self-cleaning after the Chernobyl accident. - Kyiv: Nauk. dumka, 2004. - 223 p. (Ukr)
8. *Ivanov Yu.A.* // Problemy Chernobyl'skoj zony otchuzhdeniya. - 2009. - No. 9. - P. 23 - 39. (Rus)
9. *Bondar' P.F., Loshchilov N.A., Dutov A.I. et al.* // Problemy sel'skokhozyajstvennoj radiologii: Sb. nauch. tr. / Pod red. N. A. Loshchilova. - Kyiv, 1991. - P. 88 - 105. (Rus)
10. *Arinushkina E.V.* Guidance on chemical analysis of soils. 2-nd revised and enlarged edition. - Moskva: MGU, 1970. - 487 p. (Rus)
11. *Vadyunina A. F., Korchagina 3. A.* Research methods of the soils physical properties. 3-e revised and enlarged edition. - Moskva: Agropromizdat, 1986. - 176 p. (Rus)
12. *Pavlotskaya F.I.* Radioactive cproducts migration of global fallout in soils. - Moskva: Atomizdat, 1974. - 216 p. (Rus)
13. *The activity, specific activity and volume activity of beta-emitting radionuclides in countable samples of objects in technological and natural environments. Methods of measurement using the energy beta radiation spectrometer of scintillation type СЕБ-01.- МІІ-12-05-99 / Developers N. I. Kravchenko, G. D. Kovalenko, I. A. Likhtarev. - GNPO "Metrologiya", Ukrainskij NII ekologicheskikh problem, Institut radiatsionnoj zashchity ATN Ukrainy. - 69 p. (Rus)*
14. *Pavlotskaya F.I.* // Zhurn. analit. khimii. - 1997. - Vol. 52, No. 2. - P. 126 - 143. (Rus)
15. *McLain D.H.* Drawing contours from arbitrary data points // *The Computer Journal.* - 1974. - Vol. 17. - P. 318 - 324.
16. *Annenkov B.N., Yuditseva E.V.* Basis of agricultural radiology. - Moskva: Agropromizdat, 1991. - 297 p. (Rus)
17. *Ivanov Yu.A., Levchuk S.E., Khomutinina Yu.V. et al.* // *Nucl. Phys. At. Energy.* - 2013. - Vol. 14, No. 3. - P. 288 - 294. (Rus)

Надійшла 14.05.2014

Received 14.05.2014