DOI: 10.21870/0131-3878-2017-26-3-116-124

Исследование миграции радионуклидов в почве методами современной динамики

Шарапова Т.В., Макин Р.С.

Димитровградский инженерно-технологического институт – филиал НИЯУ МИФИ,
Димитровград

Для описания процессов миграции и распределения радионуклидов в структурах, почвах необходимы дополнительные опытные данные и современные математические модели. Происходящие в почве миграционные процессы рассматриваются как диффузионные. Тем не менее, в зависимости от вида почвы, её структуры скорость миграции радионуклидов может быть больше (супердиффузионные процессы) или меньше (субдиффузионные процессы) скорости миграции, которая устанавливается при гауссовском (нормальном) распределении. При анализе данной проблемы применимы подходы фрактальной геометрии. Значимость исследования обусловлена необходимостью моделирования миграции радионуклидов в геологических структурах в целях обеспечения радиационной безопасности живых организмов.

Ключевые слова: миграция радионуклидов, коэффициент диффузии, коэффициент квазидиффузии, фрактальная размерность, индекс связности, хаусдорфова размерность, субдиффузионные процессы, супердиффузионные процессы, показатель Херста.

Введение

Одной из приоритетных задач ядерной энергетики является исключение распространения радиоактивных веществ в окружающей среде. В целях экологической безопасности очень важны расчётные и опытные оценки параметров миграции радиоактивных элементов (радионуклидов) в геологических формациях и почвах. Многие радионуклиды имеют опасные для жизни физико-химические характеристики, а некоторые из них являются остеотропными, что, в свою очередь, может вызвать неблагоприятные последствия.

Протекание миграционных процессов в почвах носит необычный, аномальный характер, в силу чего классические оценки могут приводить к существенным отличиям от опытных данных и некорректным прогнозам. Одним из возможных подходов адекватного описания и прогнозирования миграции радиоактивных элементов в геологических формациях и почвах является создание современных математических моделей.

Описание процессов миграции (диффузии) радионуклидов в почвах в основном базируется на гауссовском (нормальном) распределении. На этой основе можно сформулировать математические модели с соответствующими (экспериментальными) коэффициентами диффузии, которые в той или иной степени описывают распределение радиоактивных элементов в почве. Однако в своем большинстве эти модели не учитывают ряд важных факторов, которые могут повлиять на миграцию радионуклидов.

Шарапова Т.В.* – аспирант каф. реакторного материаловедения и радиац. безопасности, зав. лаб.; Макин Р.С. – д.ф.-м.н., проф. ДИТИ НИЯУ МИФИ.

*Контакты: 433511, Ульяновская обл., Димитровград, ул. Куйбышева, 294. E-mail: tatyana.starckina2010@yandex.ru.

Материалы и методы

Существенная роль диффузионного (или квазидиффузионного) движения радионуклида ^{90}Sr в почвах даёт основания для приближенного расчёта миграции радиоактивного стронция в неомогенной среде, почве, на основе теории диффузии.

Рассмотрим баланс некоторого радионуклида в j -ом элементарном слое среды. Количество радионуклида $Q_{m+1,j}$ в элементарном слое в $(m+1)$ -й элементарный промежуток времени равно его количеству в предыдущий m -й промежуток времени $Q_{m,j}$ плюс разность между количеством, вошедшим в этот слой из вышележащего элементарного слоя, $J_{\text{вх}}$, и количеством, вышедшим в нижележащий элементарный слой, $J_{\text{вых}}$:

$$Q_{m+1,j} = Q_{m,j} + J_{\text{вх}} - J_{\text{вых}}. \quad (1)$$

В работе [1] подробно описано определение рекуррентных формул для последовательного расчёта миграции радионуклида по слоям профиля почвы. А также показано, что под коэффициентом диффузии радионуклида в определенном слое D , участвовавшем в расчётах, необходимо понимать именно коэффициент квазидиффузии D^* . Это связано с тем, что коэффициент D^* характеризует не только продольную диффузию вещества, но и грануляционное гидродинамическое размытие зоны вещества, а также размытие, обусловленное кинетической сорбцией вещества.

Средние скорости движения почвенной влаги в полосе умеренного климата Российской Федерации не превышают 10^{-6} см/с. При таких скоростях вклады грануляционного и кинетического размытия обычно считают пренебрежимо малыми, а размытие – целиком обусловленным ионной или молекулярной диффузией [2]. Были проведены экспериментальные исследования [3] с целью экспериментального подтверждения этого предположения на двух почвах (выщелоченный чернозём и песчаная почва). В этих почвах измеряли коэффициент квазидиффузии радиоактивного стронция при нескольких скоростях движения воды, а также коэффициент диффузии радиоактивного стронция, полученный при отсутствии потока влаги. Поскольку влажность почв (q) в двух сериях опытов различалась, сравнивали не коэффициенты D^* и D , а их отношения $\frac{D^*}{\theta}$ и $\frac{D}{\theta}$. Они практически, в пределах ошибки измерений, совпадали для рассматриваемых почв (см. табл. 1) [3].

Таблица 1

Сравнение коэффициентов квазидиффузии (D^*) и диффузии (D) ^{90}Sr для двух почв при скорости движения воды u

Почва	$u, 10^{-6}$ см/с	$10^{-8} D^*, \text{см}^2/\text{с}$	$10^{-8} D/q, \text{см}^2/\text{с}$	$10^{-8} D, \text{см}^2/\text{с}$	$10^{-8} D/q, \text{см}^2/\text{с}$
Выщелоченный чернозём	4,2±0,4	4,3±0,5	—	—	—
	2,2±0,2	5,4±0,4	—	—	—
	1,9±0,4	4,9±0,4	—	—	—
	0	4,8±0,1	—	—	—
Средние данные	—	4,7±0,2	9,1±0,4	1,9±0,3	8,4±1,4
Песчаная почва	7,8±0,9	9,7±1,5	—	—	—
	3,2±0,1	7,6±1,6	—	—	—
	2,5±0,2	6,3±0,9	—	—	—
	0,88±0,03	7,2±1,5	—	—	—
Средние данные	—	7,8±0,8	24,2±3,3	5,4±0,8	31,3±5,4

Таким образом, из табл. 1 следует: результаты исследований подтвердили, что в природном, естественном интервале скоростей движения почвенной влаги размытие зоны радиоактивного стронция при его вертикальном перемещении в почве практически полностью обусловлено ионной диффузией, при этом вкладом грануляционного и кинетического эффектов можно пренебречь. Этот вывод открывает возможность при моделировании процессов миграции в почве радионуклидов использовать в уравнении конвективной диффузии в качестве коэффициента квазидиффузии коэффициент ионной диффузии.

Все исследованные почвы обнаруживают определённую вертикальную неоднородность распределения в них радионуклидов. Однако в одних почвах неоднородность выражена очень сильно по всей глубине (дерново-подзолистая, серая лесная почва, чернозём под лесом). В других она проявляется лишь на некоторой глубине (солонец, выщелоченный чернозём). В целом значения коэффициентов D лежат в интервале $(0,7-14) \cdot 10^{-8}$ см²/с, причём у разных слоев одной и той же почвы их значения отличаются почти на порядок.

На данный момент остаются без ответа некоторые важные вопросы. Например, для описания процессов переноса и распределения радионуклидов в среде, в почве необходимо знать её геометрические, фрактальные характеристики, своего рода «хаусдорфову размерность почвы» [4]. Размерности почвы нельзя присвоить точное целое значение (как, например, размерность квадрата равна 2 и размерность отрезка равна единице), но она вполне может обладать нецелой размерностью.

В таком случае применимы подходы фрактальной геометрии к анализу поставленной задачи. Важный класс фрактальных объектов образуют множества, описывающие геометрию протекания, или *перколяции*. Под перколяцией в рассматриваемом случае будем понимать случайное распределение миграции радионуклидов в почве.

При рассмотрении множества точек $F \subseteq E^n$, вложенного в евклидово пространство E^n ($n \geq 1$), предполагаем величину $\varepsilon > 0$ – произвольным сколь угодно малым числом. Определим n -мерный куб в E^n как топологическое произведение:

$$\underbrace{\bar{I}(\varepsilon) \times \dots \times \bar{I}(\varepsilon)}_n,$$

где n – размерность пространства вложения, $\bar{I}(\varepsilon)$ – замкнутый интервал длиной ε .

Числом хаусдорфовой фрактальной размерности множества F назовем следующее выражение:

$$d_f = d_f[F] = - \lim_{\varepsilon \rightarrow +0} \frac{\ln N_n(\varepsilon)}{\ln \varepsilon}, \quad (2)$$

где $N_n(\varepsilon)$ – минимальное число n -мерных ε -кубов, покрывающих множество точек F с точностью ε .

Предел (2) существует для множеств F , обладающих свойством самоподобия. Данное свойство может выполняться с различными показателями подобия вдоль различных направлений в пространстве. В этом случае говорят о самоаффинных фракталах.

В работе [1] подробно рассмотрены *блуждания* радионуклида по самоподобному фрактальному множеству (почва) $F \subseteq E^n$, $n \geq 2$, определено число структурных элементов множества F , которые радионуклид успеет посетить за время t , установлен размер области $\bar{r}(t)$, в которой побывает радионуклид к моменту времени t .

Среднеквадратичное удаление частицы от начала координат растёт с t как:

$$\langle r^2(t) \rangle = 2D \times t^\mu = 2D \times t^{\frac{d_s}{d_f}} = 2D \times t^{\frac{2}{2+\theta}}, \quad (3)$$

где D – обобщённый коэффициент переноса; μ – обратная хаусдорфова размерность – характеризует топологию пустот на множестве F (в почве).

В работе [5] была исследована кинетика переноса в зависимости от значения индекса связности, именно: множество F при $q > 0$ с необходимостью содержит внутренние пустоты, на огибание которых частица тратит значительную часть времени. Причиной остановок могут стать многократные – «циклические» – обходы пустот, а также блокировка частиц во «внутренних» тупиках. При $q < 0$ распространение частиц по множеству F ограничено компонентами связности (рис. 1).

Рис. 1. Поведение процессов переноса в почве при положительных ($q > 0$) и отрицательных ($q < 0$) значениях индекса связности.

Поскольку хаусдорфова размерность каждого из таких подмножеств не может быть меньше единицы, у частиц есть возможность свободно мигрировать вдоль F , оставаясь в пределах «своей» компоненты связности (рис. 1) [5], но покинуть выбранную компоненту связности им запрещено ввиду общей несвязности фрактала: $\theta < 0$.

Результаты и обсуждение

Были обработаны данные литературных источников, относящиеся к 53 почвенным разрезам и насчитывающие 175 проанализированных на содержание радиоактивного стронция почвенных слоев [5, 6]. «Кажущиеся» коэффициенты диффузии D_k , полученные из экспериментальных данных разных авторов, лежат в пределах от $1 \cdot 10^{-8}$ до $32 \cdot 10^{-7}$ см²/с со средним значением $4,1 \cdot 10^{-7}$ см²/с. В результате обработки экспериментальных значений D_k и их разбиения на шесть примерно равных в логарифмическом масштабе интервалов было найдено, что 90% общего числа точек D_k лежат в промежутке от $1 \cdot 10^{-8}$ до $1 \cdot 10^{-6}$ см²/с (см. рис. 2).

Поскольку в выборку включены данные, которые относятся к почвам, принадлежащим к разным почвенным типам, этот интервал значений можно считать наиболее типичным для других почв. Сравнение этого интервала значений D_k со значениями коэффициента диффузии, полученными в лабораторных условиях, говорит об их близости в пределах ошибки эксперимента (рис. 3).

Рис. 2. Частотное распределение значений «кажущегося» коэффициента диффузии D_k . Результаты обработки полевых наблюдений (175 точек).

Рис. 3. Частотное распределение значений коэффициента диффузии D . Результаты лабораторных измерений (170 точек).

Вычисленные коэффициенты диффузии радиоактивного стронция для 170 образцов различных почв в большинстве своем находятся в пределах от $1 \cdot 10^{-8}$ до $3 \cdot 10^{-7} \text{ см}^2/\text{с}$ со средним значением, равным $7,8 \cdot 10^{-8} \text{ см}^2/\text{с}$. Тот факт, что интервал «кажущихся» коэффициентов диффузии и вычисленных коэффициентов диффузии в значительной степени перекрывается, свидетельствует только о существенной роли процесса диффузии в «вертикальной» миграции радиоактивного стронция.

Можно ли использовать коэффициент диффузии радионуклидов, определённый по методике, не учитывающей все значимые факторы, а также изначально основанный на нормальном распределении? В данном случае процессы, происходящие в почве, рассматриваются как диффузионные. Но в зависимости от вида почвы скорость движения радионуклидов может иметь большую (супердиффузионные процессы) или меньшую (субдиффузионные процессы) скорость миграции по сравнению с той, которая существует при гауссовском (нормальном) распределении.

В теории турбулентности для нелинейных процессов переноса обратная хаусдорфова размерность лежит в пределах:

$$\mu \in [0, 2]. \quad (4)$$

Показатель Херста H в контексте фрактальных обобщений [7] случайного броуновского движения определяется следующим образом:

$$\mu = 2H. \quad (5)$$

При условии (4) находим:

$$H \in [0, 1]. \quad (6)$$

Поэтому при субдиффузионных процессах ($\mu \in [0, 1]$) показатель Херста принадлежит области $H \in [0, 1/2]$. Величина H определяет фрактальную размерность траекторий частиц в области турбулентности:

$$d_w = H^{-1}, \quad d_w \geq 1. \quad (7)$$

Комбинируя (4), (5) и (7), можно получить выражение, устанавливающее зависимость между динамическими (d_w) и структурными (q) характеристиками процессов переноса в почве:

$$d_w = 2 + \theta. \quad (8)$$

Как указано в работе [5], величина d_w не может быть меньше 1, в связи с тем, что динамические траектории линейно связны. Поэтому перенос возможен лишь на множествах, индекс связности которых $\theta \geq -1$. При нулевой связности $q=0$ процесс переноса становится диффузионным:

$$\langle \bar{r}^2(t) \rangle = 2D \times t^1. \quad (9)$$

При этом среднеквадратическое смещение частиц растет линейно со временем; параметры m , H и d_w равны соответственно:

$$m=1, H=0,5, d_w=2. \quad (10)$$

В евклидовом пространстве E^n процесс (9) предполагает гауссовы приращения $\delta \bar{r}(t)$ величины $\bar{r}(t)$. Соответствующее кинетическое (диффузионное) уравнение, характеризующее эволюцию функции распределения частиц $\psi = \psi(r, t)$, имеет вид:

$$\frac{\partial \psi}{\partial t} = \Delta_k(B\psi), \quad (11)$$

где $\frac{\partial \psi}{\partial t} = \Delta_k \equiv \frac{\partial^2}{\partial \bar{r}^2}$; $\bar{r} \in E^n$; $B = D / n$, $\psi(r, t)$ – плотность вероятности найти радионуклид в точке $\bar{r}$ в момент времени t . В кинетическом уравнении (11) использована нормировка:

$$\int d\bar{r} \psi(\bar{r}, t) = 1. \quad (12)$$

Уравнения (11), (12) описывают процесс диффузии как (гауссово) броуновское движение частицы в E^n [8].

Заключение

Распределения диффузионных процессов миграции радионуклидов в почве, по всей видимости, существенно не гауссовы. Линейная зависимость (9) среднеквадратического смеще-

ния частиц от времени достигается за счёт сложной «игры» корреляций, действующих на сколь угодно больших пространственных масштабах $\vec{r} \rightarrow \infty$. Но это должно быть подтверждено массивом экспериментальных данных. Уравнение (9) для не гауссовых, диффузионных процессов не справедливо.

Последовательный учёт корреляций требует отказа от гауссова диффузионного уравнения (11) и традиционного представления о процессах переноса как о случайном броуновском движении частиц в среде [5]. Необходимые обобщения достигаются за счёт использования методов нелинейной, или дробной, динамики [7] – аналитического аппарата, адекватного сложным нелинейным динамическим системам с многомасштабными корреляциями в пространстве-времени.

Использование рассмотренного подхода к изучению миграции радионуклидов в почве позволит получить новые данные и практически реализовать более точные оценки движущих сил и параметров миграционных процессов в почвах, а также оценить, насколько изменятся результаты в сравнении с полученными в рамках традиционного подхода.

Литература

1. **Шарапова Т.В., Макин Р.С.** Исследование миграции радионуклидов и параметров миграционных процессов в почве методами современной динамики //Вестник ДИТИ. 2016. № 3(11). С. 77-82.
2. **Ивахненко А.Г., Юрачковский Ю.П.** Моделирование сложных систем по экспериментальным данным. М.: Радио и связь, 1987. 120 с.
3. **Прохоров В.М.** Миграция радиоактивных загрязнений в почвах. М.: Энергоиздат, 1981. 99 с.
4. **Беданоква С.Ю.** Математическое моделирование солевого режима почв с фрактальной структурой //Вестник Самарского государственного технического университета. 2007. № 2(15). С. 102-109.
5. **Зеленый Л.М., Милованов А.В.** Фрактальная топология и странная кинетика: от теории перколяции к проблемам космической электродинамики //Успехи физических наук. 2004. Т. 174, № 8. С. 809-852.
6. **Павлоцкая Ф.И., Тюрюканова Э.Б., Баранов В.И.** Глобальное распределение радиоактивного стронция по земной поверхности. М.: Наука, 1970. 160 с.
7. **Нахушев А.М.** Дробное исчисление и его приложение. М.: Физматлит, 1998. 272 с.
8. **Кузнецов С.П.** Динамический хаос (курс лекций): Учебное пособие для вузов. М.: Физматлит., 2006. 355 с.

Modern methods for research on dynamics of radionuclides migration in the soil

Sharapova T.V., Makin R.S.

Dimitrovgrad Engineering and Technological Institute of the National Research
Nuclear University MEPhI, Dimitrovgrad

Dynamics of radionuclides migration and distribution in the soil can be described with the use of additional experimental data and modern mathematical models. Migration in the soil is considered as diffusion process. Radionuclides migration velocity depends on soil type and its texture. The velocity may be higher (superdiffusion processes) or lower (subdiffusion processes) than the velocity fitted with Gaussian distribution. To analyze the problem fractal geometric approaches are applicable. The study is important for building modern models allowing investigation of radionuclides behavior in geological structures in order to ensure radiation safety of living organisms.

Keywords: *migration of radionuclides, diffusion coefficient, coefficient of quasi-diffusion, fractal dimension, connectedness index, Hausdorff dimension, subdiffusion process, superdiffusion processes, the Hurst exponent.*

References

1. **Sharapova T.V., Makin R.S.** Investigation of migration of radionuclides and parameters of migration processes in soil using modern dynamics methods. *Vestnik of DITI – Bulletin of DETI*, 2016, no. 3 (11), pp. 77-82. (In Russian).
2. **Ivakhnenko A.G., Yurachkovsky Yu.P.** Simulation of complex systems from experimental data. Moscow, Radio and Communication, 1987. 120 p. (In Russian).
3. **Prokhorov V.M.** The migration of radioactive contaminants in the soil. Moscow, Energoizdat, 1981. 99 p. (In Russian).

Sharapova T.V.* – Postgraduate of Dep. of Reactor Materials and Radiation Safety, Head of Lab.; **Makin R.S.** – D.Sc., Phys.-Math., Prof. DETI MEPhI.

*Contacts: 294 Kuibyshev str., Dimitrovgrad, Russia, 433511. E-mail: tatyana.starckina2010@yandex.ru.

4. **Bedanokova S.Yu.** Mathematical modeling of the salt regime of soils with a fractal structure. *Vestnik Samarskogo gosudarstvennogo tehniceskogo universiteta – Bulletin of the Samara State Technical University*, 2007, no. 2 (15), pp. 102-109. (In Russian).
5. **Zeleny L.M., Milovaniv A.V.** Fractal topology and strange kinetics: from percolation theory to problems in cosmic electrodynamics. *Uspehi fizicheskikh nauk – Advances in Physical Sciences*, 2004, vol. 174, no. 8, pp. 809-852. (In Russian).
6. **Pavlotskaya F.I., Tyuryukanova E.B., Baranov V.I.** The global distribution of radioactive strontium at the surface. Moscow, Nauka, 1970. 160 p. (In Russian).
7. **Nahushev A.M.** Fractional calculus and its application. Moscow, Fizmatlit, 1998. 272 p. (In Russian).
8. **Kuznetsov S.P.** Dynamic chaos (lectures). A manual for schools. Moscow, Physmathlit., 2006. 355 p. (In Russian).