

ВЕСЦІ

НАЦЫЯНАЛЬнай
АКАДЭМІІ НАВУК БЕЛАРУСІ

Серыя
хімічных
навук
№ 3

АСОБНЫ АДЫТАК

2001

УДК 631.438

И. И. ЛИШТВАН, Г. П. БРОВКА, П. Н. ДАВИДОВСКИЙ,
И. В. ДЕДЮЛЯ, А. Г. БРОВКА

ВЛИЯНИЕ ВЛАГИ НА СОРБЦИЮ И МИГРАЦИЮ Cs-137 И Sr-90 В ТОРФЯНЫХ ПОЧВАХ ПРИ НАЛИЧИИ В ПОРОВОМ РАСТВОРЕ ЭЛЕКТРОЛИТОВ

В естественных условиях верхний слой торфяных почв периодически иссушается и увлажняется. Вследствие этого в почве возникают потоки влаги как вертикально вниз, так и вертикально вверх, что приводит к сложному перераспределению радионуклидов и электролитов почвенного раствора. Цель настоящей работы — исследование влияния динамики влажностного режима на выщелачивание Cs-137 и Sr-90 из торфяных почв при наличии в поровой влаге электролитов.

Для решения поставленной задачи в лабораторных условиях исследованы: зависимость коэффициентов распределения и диффузии Cs-137 и Sr-90 от концентрации различных электролитов в поровой влаге и влагосодержания торфяных почв; влияние периодического увлажнения до полного влагонасыщения растворами электролитов образцов торфяной почвы и дальнейшего их обезвоживания на выход в поровый раствор Cs-137 и Sr-90.

В полевых условиях наблюдали влияние внесенных электролитов на вертикальную миграцию Cs-137 и Sr-90 под действием атмосферных процессов.

Лабораторные исследования проводили на торфяной почве, отобранной из верхнего 5-сантиметрового слоя мелиорированного участка торфяного месторождения «Погонянское», расположенного в Хойникском районе в 30-километровой зоне отчуждения, образовавшейся после аварии на Чернобыльской АЭС. После предварительной обработки, заключающейся в досушке и просеивании, которая позволила избавиться от растительных остатков, удельная активность почвы составила $2 \cdot 10^4$ Бк по Cs-137 и $5,34 \cdot 10^3$ Бк по Sr-90 на 1 кг сухого вещества. В качестве электролитов использовали водные растворы хлоридов стабильного цезия (CsCl) и железа (FeCl₃), а также полиметаллический водный концентрат (ПВК), относящийся к высокоминерализованным водам Припятского прогиба хлоридно-кальциевого геохимического класса. Общее содержание растворенных в нем веществ составляет 0,180 кг/л. Среди них — стабильные стронций (до 1,5 г/л) и цезий (до 1 мг/л), калий (до 8 г/л), железо (до 0,3 г/л), натрий (до 60 г/л), ионы аммония (до 0,5 г/л) и т. д. [1].

Для проведения первой части исследований были подготовлены образцы с влагосодержаниями 1,7; 2,4 и 3,0 кг/кг и концентрацией электролитов в поровой влаге от 0,001 до 0,1 моль/л. Чтобы обеспечить равномерное распределение вносимых ионов по всему объему, количество вносимого электролита составляло не менее 1/3 части от общего количества влаги в подготовленном образце. Готовые для исследований образцы во влагоизолированном состоянии выдерживали при комнатной температуре в течение 2 мес, а затем в них определяли коэффициенты распределения K_d и диффузии $D_{эф}$, согласно методике, примененной в работе [2, 3]. В таблице представлены результаты этих измерений. Их анализ показывает, что коэффициенты распределения во всех случаях не зависят от влагосодержания, а коэффициенты эффективной диффузии изменяются нелинейно по отношению к влагосодержанию. Последняя зависимость объясняется с помощью формулы

$$D_{эф} = \frac{D_0 K_c(W)}{\frac{K_d}{W} + 1},$$

где D_0 — коэффициент молекулярной диффузии ионов в объемном растворе; K_c — коэффициент коммуникации водопроводящих путей, характеризующий отличие коэффициента диф-

**Коэффициенты распределения K_d и эффективной диффузии $D_{эф}$ Cs-137 и Sr-90
в торфяной почве при наличии в поровом растворе электролитов**

Номер образца	U , кг/кг	Электролит	C , моль/л	K_d	$D_{эф}$, 10^{10} м ² /с	K_d	$D_{эф}$, 10^{10} м ² /с
				Cs-137		Sr-90	
1	1,7	CsCl / SrCl ₂ *	0,001	102	0,11		
2	1,7	“	0,01	60	0,20	38	0,15
3	1,7	“	0,1	24	0,49		
4	2,4	“	0,001	111	0,19		
5	2,4	“	0,01	65	0,31	40	0,24
6	2,4	“	0,1	27	0,79		
7	3,0	“	0,001	115	0,25		
8	3,0	“	0,01	67	0,49	42	0,36
9	3,0	“	0,1	29	0,95		
10	1,7	FeCl ₃	0,001	305	0,04		
11	1,7	“	0,01	177	0,07		
12	1,7	“	0,1	130	0,09		
13	2,4	“	0,001	311	0,06		
14	2,4	“	0,01	180	0,11	56	0,18
15	2,4	“	0,1	132	0,16		
16	3,0	“	0,001	313	0,10		
17	3,0	“	0,01	183	0,18		
18	3,0	“	0,1	135	0,24		
19	1,7	ПВК**	0,18	390	0,03		
20	1,7	“	1,8	217	0,05		
21	1,7	“	18	120	0,10		
22	2,4	“	0,18	395	0,05	55	0,19
23	2,4	“	1,8	221	0,10	12	0,98
24	2,4	“	18	124	0,18	2,5	3,3
25	3,0	“	0,18	396	0,08		
26	3,0	“	1,8	223	0,15		
27	3,0	“	18	126	0,25		

* В образцы с Cs-137 внесен хлорид стабильного цезия, а со Sr-90 — хлорид стабильного стронция.

** Концентрация ПВК дана в г/л.

фузии радионуклида в материале от аналогичного коэффициента в объемном растворе, являющегося функцией влагосодержания материала W . При повышении W происходит увеличение $D_{эф}$ как за счет роста коэффициента коммуникации K_c , так и за счет увеличения относительного количества подвижных радионуклидов [4]. Влияние исследованных электролитов на K_d Cs-137 при концентрации 0,01 моль/л и ниже определяется последовательностью CsCl > FeCl₃ > ПВК. Наибольшее воздействие на подвижность Sr-90 оказывает хлорид стабильного стронция и ПВК.

Влияние влажностных режимов на перенос радионуклидов в торфяных почвах изучали по следующей методике. В три эксикатора, по 1 кг в каждый, помещали образцы почвы с исходным влагосодержанием 0,5 кг/кг. Затем в них вносили: в первый — раствор CsCl, во второй — раствор FeCl₃ и в третий — ПВК. Количества и концентрации вносимых растворов CsCl и FeCl₃ рассчитывали таким образом, чтобы их концентрация в поровой влаге составила 0,01 моль/л при влагосодержании 1 кг/кг. ПВК перед внесением был сконцентрирован в 2 раза. Таким образом, состав поровой влаги третьего образца был близок к составу ПВК. Все образцы были тщательно перемешаны и герметично закрыты. Через 30 сут из них на центрифуге отжимали поровую влагу. После отстаивания отбирали ее прозрачную без механических примесей часть и на сцинтилляционном γ -спектрометре и β -радиометре РУБ-91 определяли соответственно γ - и β -активности. Фильтрация с целью очищения поровой влаги от твердых частиц почвы неприемлемо, так как фильтр может сорбировать часть радионуклидов. Одновременно определяли влагосодержание твердых остатков образцов. Затем в первые два эксикатора вносили растворы соответствующих электролитов на этот раз с концентрацией 0,01 моль/л, а в третий — ПВК естественной концентрации в количестве возвращающем исходное влагосодержание — 1 кг/кг. Через 30 сут процедура повторялась. Таким образом проведены четыре цикла обезвоживания и увлажнения образцов. На рис. 1. представлены изменения удельной активности поровой влаги образцов в зависимости от количества циклов для Cs-137 и Sr-90. В обоих случаях максимальная активность наблюдалась у поровой влаги третьего образца, состав которой близок к составу ПВК. Такой результат объясняется прежде

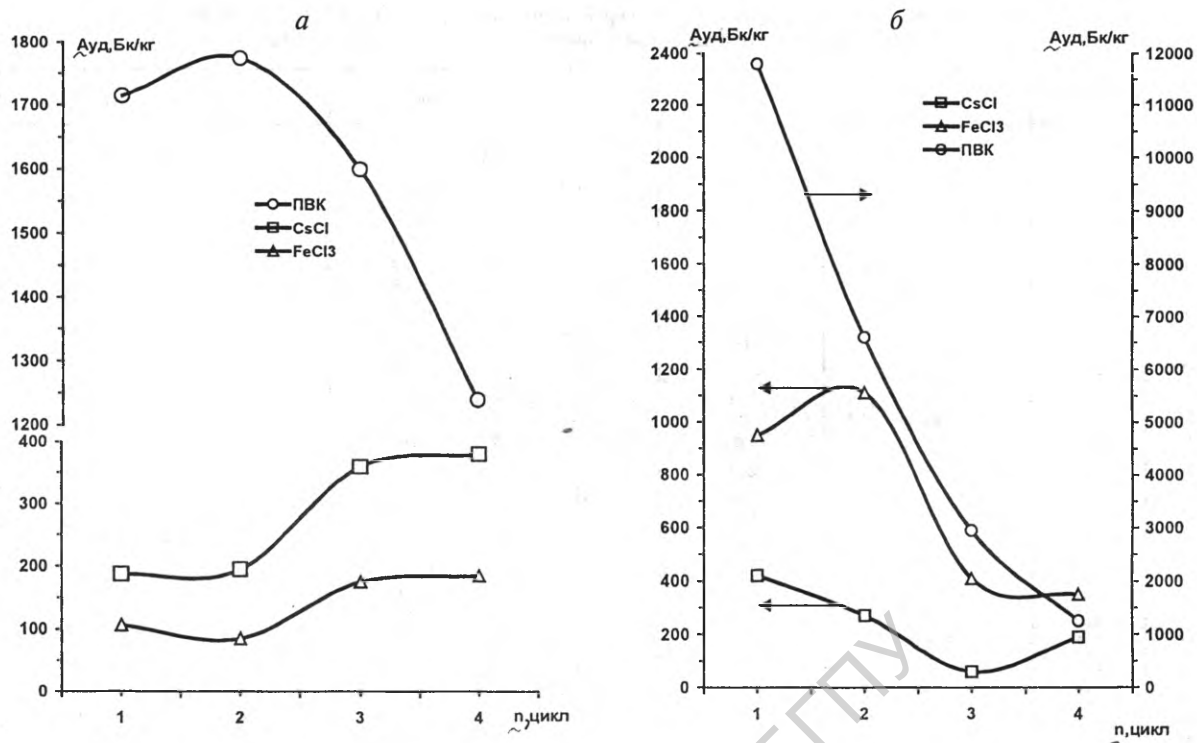


Рис. 1. Зависимость удельной активности поровой влаги по Cs-137 (а) и Sr-90 (б) от числа циклов «увлажнение — обезвоживание»

всего тем, что суммарная концентрация всех растворенных веществ в ПВК почти в 100 раз превышает содержание хлоридов железа и стабильного цезия в поровой влаге двух других образцов. Помимо этого в состав ПВК входят стабильные Cs и Sr. Тем не менее, с каждым последующим циклом активность поровой влаги третьего образца и по Cs-137 и по Sr-90 резко падает, если пренебречь небольшим пиком после второго цикла в первом случае. Выход в поровую влагу обоих радионуклидов при наличии в ней FeCl_3 и CsCl вполне коррелирует с полученными ранее результатами [2, 3].

После каждого цикла определяли и активности сухого вещества. В третьем образце удалось существенно уменьшить содержание Sr-90: после четвертого цикла удельная активность сухого вещества в 3,5 раза меньше чем у исходного материала. Содержание Cs-137 практически не изменилось в первом образце, приблизительно в 1,3 раза уменьшилось во втором и в 1,6 раза — в третьем. В целом это не противоречит имеющимся в литературе результатам [2, 3, 5].

Достаточно сильное воздействие ПВК на выход в поровую влагу Sr-90 определило его выбор для проведения полевых испытаний. С этой целью на торфяном месторождении «Савичи», расположенном в Брагинском районе, заложена опытная площадка размером 2,5×2,5 м. Месторождение по геоморфологическим условиям относится к группе пойменно-террасного залегания. Торфяная залежь в месте расположения площадки имеет глубину 1,2—1,5 м. Площадка расположена в 700 м от дороги на Красноселье и в 1 км от деревни Савичи. Торф низинный, степень разложения 30—35%, зольность 11—14%. Поскольку лабораторные исследования проведены с торфяной почвой месторождения «Погонянское», логичнее было бы заложить там и опытную площадку. Однако во время закладки месторождение «Погонянское», расположенное на территории Полесского государственного заповедника и осушенное еще до Чернобыльской катастрофы, оказалось затопленным водой. Это вынудило авторов заложить опытную площадку на естественном торфянике. В силу того что на обоих месторождениях торф относится к одному, низинному типу и имеет одинаковую степень разложения, такая замена повлиять качественно на результаты исследований не могла.

В июне 1998 г. на поверхность выбранной площадки внесено 50 кг ПВК, что составило 8 кг на 1 м². В октябре 1998 г., июне 1999 г. и июне 2000 г. на этой площадке и расположенной рядом контрольной отобраны пробы с целью определения распределения радионуклидов и внесенных солей по глубине залежи. Отбор проб производили методом шурфа кольцом вы-

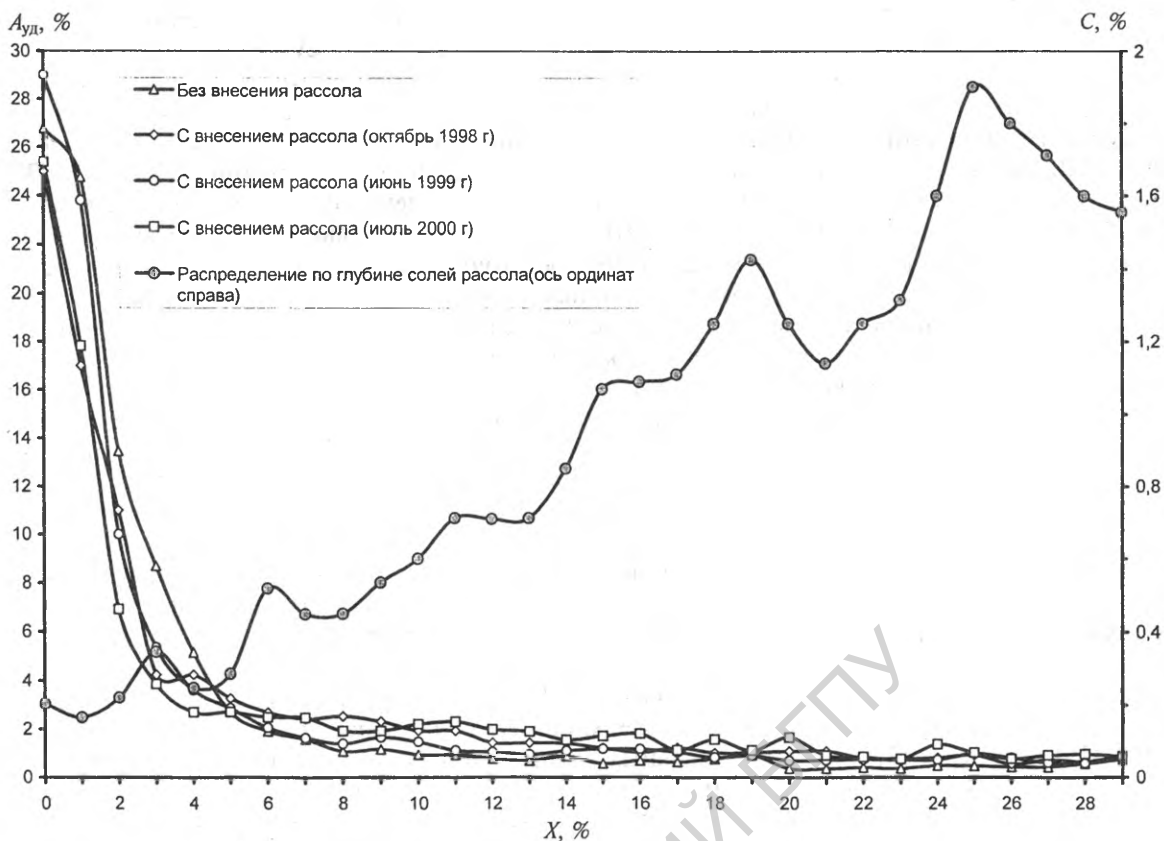


Рис. 2. Процентное распределение Cs-137 по глубине торфяной почвы на опытной и контрольной площадках у д. Савичи

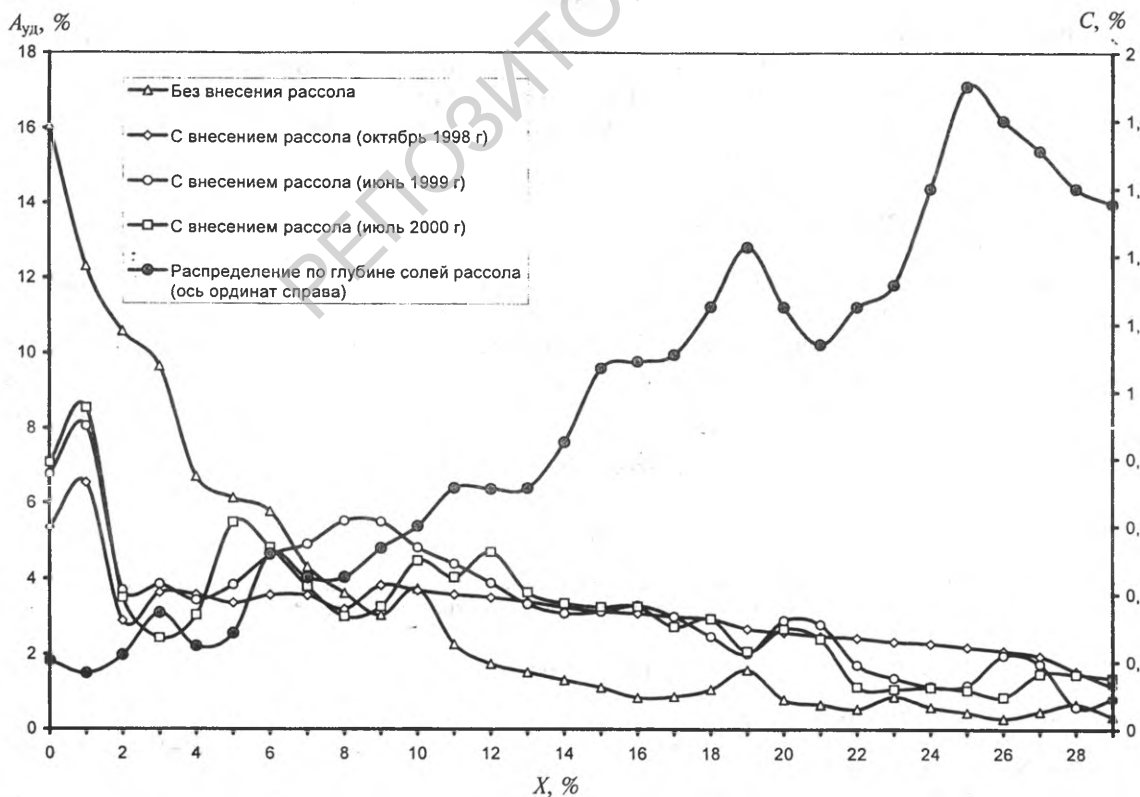


Рис. 3. Процентное распределение Sr-90 по глубине торфяной почвы на опытной и контрольной площадках у д. Савичи

сотой 5 см на глубину до 30 см. В лабораторных условиях пробы разрезали на зоны толщиной 1 см. Затем половину каждой зоны высушивали в сушильном шкафу и их определяли γ - и β -активности. С оставшихся половин отжимали поровую влагу и с помощью моста переменного тока Р 577 находили их электрическое сопротивление. Таким простым и нетрудоемким способом определено распределение по глубине залежи внесенных в составе ПВК солей. На рис. 2 и 3 приведены процентные распределения по глубине залежи Cs-137 и Sr-90 на октябрь 1998 г., июнь 1999 г. и июнь 2000 г. и солей ПВК в поровой влаге на октябрь 1998 г. Для Cs-137 эффект оказался хотя и заметным, но невысоким прежде всего из-за того, что для его выхода в раствор необходимо достаточно длительное время взаимодействия с электролитом [3, 6]. Пленкой, как аналогичная площадка на т/м «Погонянское», она не укрывалась [3]. В данном случае на третий день после внесения ПВК начались проливные дожди. Весь сезон 1998 г. оказался очень дождливым и максимальная концентрация солей в поровой влаге в октябре 1998 г. оказалась на глубине 25 см. Тем не менее октябрьская кривая распределения Cs-137 на опытной площадке до глубины 5 см проходит ниже, а далее — выше соответствующей кривой на контрольной площадке, что свидетельствует о переносе части активного цезия в глубь почвы. Июньская же кривая 1999 г. до глубины 2 см проходит даже выше контрольной, а затем вблизи ноябрьской. Объясняется это тем, что находящийся в растворе Cs-137 в сезоне очень засушливого 1999 г. двигался вместе с поровой влагой вверх и после ее испарения концентрировался в верхних слоях почвы. Практически не изменилось распределение и в июне 2000 г, что свидетельствует о прекращении процесса выщелачивания радионуклида и о фиксации нового распределения по глубине. Такое возможно только после вымывания электролита из исследуемого слоя почвы и подтверждается результатами приведенных выше лабораторных исследований. Подобную картину наблюдали и после внесения в мае 1996 г. хлористого калия на поверхность уже упоминавшейся опытной площадки на т/м «Погонянское» [3]. Значения удельных активностей сухого вещества проб отобранных с глубины 0—10 см в октябре 1997 г. и в октябре 1999 г. очень близки друг к другу, несмотря на то что опытная площадка в сезоне 1998 г. находилась под водой, а в сезоне 1999 г. — сильно переувлажнена.

Подобный механизм перераспределения по глубине торфяной почвы справедлив и для Sr-90. Однако поскольку коэффициент его массообмена на порядок выше, чем Cs-137, то и воздействие внесенного электролита на его перераспределение значительно сильнее [7]. До того как ионы, входящие в состав ПВК, вымылись из верхних слоев почвы под действием атмосферных осадков, они успели перевести в подвижную форму значительную часть активного стронция. Так, если на контрольной площадке приблизительно 80% Sr-90 сосредоточено на глубине до 12 см, то на опытной — в 2 раза меньше (рис. 3). Но, как и в случае с Cs-137, процессы интенсивной миграции закончились после вымывания из почвы ПВК и закрепления стронция в более глубоких ее слоях. Его распределение по глубине на опытной площадке в июне 1999 г. и в июне 2000 г. практически совпадает.

Таким образом, лабораторные и полевые исследования показывают перспективность поиска и применения различных электролитов для удаления радионуклидов из корнеобитаемого слоя почв. При этом для повышения эффективности разрабатываемых способов дезактивации корнеобитаемого слоя необходимо на период выщелачивания радионуклидов под воздействием электролитов исключить потоки влаги в этом слое с помощью гидроизолирующих покрытий. После того как пройдет выщелачивание радионуклидов, с помощью направленных потоков влаги можно удалить из корнеобитаемого наиболее подвижные формы Cs-137 и практически полностью удалить Sr-90.

Summary

The results of laboratory and field experiments on regularities of the vertical migration of Cs-137 and Sr-90 in peat soils at different moisture regimes and in the presence of electrolytes in pore moisture are represented.

Литература

1. Г а л а й Е. И. // Весці НАН Беларусі. Сер. хім. навук. 2000. № 1. С 120—123.
2. Л и ш т в а н И. И., Б р о в к а Г. П., Д е д ю л я И. В., Р о в д а н Е. Н. // Весці АН Беларусі. Сер. хім. навук. 1996. № 4. С. 79—83.
3. Л и ш т в а н И. И., Б р о в к а Г. П., Д а в и д о в с к и й П. Н., Д е д ю л я И. В. // Весці НАН Беларусі. Сер. хім. навук. 1998. № 4. С. 126—131.
4. Б р о в к а Г. П., Д е д ю л я И. В., Р о в д а н Е. Н. // Коллоид журн. 1999. Т.61. № 6. С. 758—763.

5. Буравлев Е. П., Лебединский М. Н., Дрич С. К., Чумак В. К. // *Агрохимия*. 1991. № 6. С. 70–73.

6. Бакунов Н. А., Юдинцева Е. В. // *Агрохимия*. 1989. № 6. С. 90–96.

7. Бровка Г. П., Ровдан Е. Н. // *Весті НАН Беларусі. Сер. хім. навук*. 1999. № 2. С. 67–71.

*Институт проблем
использования природных ресурсов и экологии
НАН Беларуси*

*Поступила в редакцию
8.02.2001*

РЕПОЗИТОРИЙ БГПУ