

Миграция ^{90}Sr в системе твердая фаза почвы–почвенный раствор–растение и пути ее снижения

© Л. Н. Москальчук^{*а}, А. А. Баклай^а, А. В. Коноплев^б, Т. Г. Леонтьева^а

^а Объединенный институт энергетических и ядерных исследований – Сосны НАН Беларуси, 220109, Минск, ул. А. К. Красина, 99; * e-mail: leonmosk@tut.by

^б НПО «Тайфун», 249038, Обнинск Калужской обл., ул. Ленина, 82; e-mail: konoplev@obninsk.com

Получено 30.05.2013

УДК 631.438:546.42

Разработана модель миграции ^{90}Sr в системе твердая фаза почвы–почвенный раствор–растение и получено выражение для оценки его миграции. С помощью модели показано, что снижение миграции ^{90}Sr в системе почва–растение путем известкования кислых почв имеет предел, ограниченный емкостью катионного обмена почвы. Согласно проведенной оценке, для эффективного снижения миграции ^{90}Sr в растения в два раза на произвесткованной почве необходимо, чтобы отношение потенциалов сорбции сорбента и почвы с учетом экономической целесообразности внесения сорбента в почву в дозе 1–4 мас% было не менее 25 раз.

Ключевые слова: стронций-90, модель миграции, почвы, сорбенты.

Испытания ядерного оружия и аварии на ядерно-энергетических объектах (кыштымская, чернобыльская и другие) привели к загрязнению окружающей среды ^{90}Sr . В связи с высокой токсичностью и способностью легко включаться в процессы геохимической и биологической миграции ^{90}Sr относится к числу наиболее опасных радионуклидов [1]. За период, прошедший после аварии на Чернобыльской АЭС, в результате трансформации форм выпавших радиоактивных продуктов подвижность и биологическая доступность ^{90}Sr в экосистемах, где не проводилась их реабилитация, увеличилась в 5–10 раз [2]. Анализ литературных данных свидетельствует о преобладании ионообменного механизма сорбции ^{90}Sr компонентами почв и относительно высоком его содержании в почвенных растворах по сравнению с радионуклидами Cs, Pu и Am [1, 3]. В результате ^{90}Sr наиболее интенсивно перераспределяется в экосистемах и мигрирует по пищевым цепям, попадая в организм человека и формируя дозу его внутреннего облучения наряду с ^{137}Cs .

Для описания миграции (перехода) ^{90}Sr в системе твердая фаза почвы–почвенный раствор–растение используют коэффициент накопления (КН), который определяется из соотношения

$$\text{КН} = \frac{[^{90}\text{Sr}]_p}{[^{90}\text{Sr}]_n}, \quad (1)$$

где $[^{90}\text{Sr}]_p$, $[^{90}\text{Sr}]_n$ – равновесная концентрация ^{90}Sr соответственно в растении и почве, Бк/кг.

КН ^{90}Sr зависит от ряда показателей, характеризующих свойства почвы, растения и макроэлемента-аналога (Са). Как показано в работе [4], кратность различий КН для одного и того же вида растений, произрастающего на различных почвах, превышает 40 раз. В связи с этим использование усредненных значений КН приводит к значительным ошибкам в оценке доз и риска проживания населе-

ния на загрязненных радионуклидами территориях.

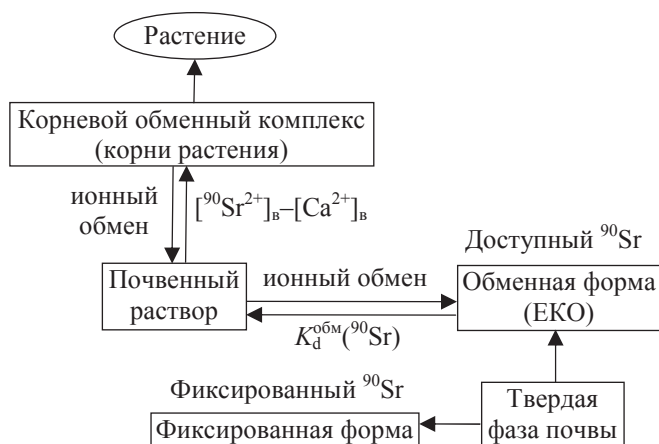
Одним из путей решения данной проблемы может стать разработка модели, учитывающей влияние физико-химических и биологических процессов на миграцию ^{90}Sr в системе твердая фаза почвы–почвенный раствор–растение, использование которой позволит проводить корректную оценку КН на основе почвенных показателей, а также оценку эффективности различных способов для реабилитации почв, загрязненных ^{90}Sr .

Цель настоящей работы заключается в разработке модели миграции ^{90}Sr в системе твердая фаза почвы–почвенный раствор–растение на основе физико-химических показателей почвы и анализа путей ее снижения с помощью разработанной модели.

Экспериментальная часть

Описание объекта исследования. Объектом математического моделирования является система, состоящая из твердой фазы почвы, почвенного раствора и растения. Концептуальная схема миграции ^{90}Sr в системе твердая фаза почвы–почвенный раствор – растение представлена на схеме.

Модель миграции ^{90}Sr в системе твердая фаза почвы–почвенный раствор–растение. Согласно современным представлениям, ^{90}Sr мигрирует из почвенного раствора в растение, как и другие минеральные элементы, в ионной форме. Радионуклид $^{90}\text{Sr}^{2+}$ не является элементом минерального питания для растения, но он поглощается растением посредством транспортных систем его макроаналога Ca^{2+} . Переход ^{90}Sr из твердой фазы почвы в растение определяется особенностями его миграции в системе твердая фаза почвы–почвенный раствор–растение. В связи с этим сложный процесс поглощения ионов растением из почвы можно разделить на две стадии [5]: распределение ионов между твердой и жидкой



Концептуальная схема миграции ^{90}Sr в системе твердая фаза почвы–почвенный раствор–растение.

(почвенный раствор) фазами почвы и поглощение простых ионов корнями растения из почвенного раствора. Соответственно определяются и два уровня регулирования переноса ^{90}Sr в системе твердая фаза почвы–почвенный раствор–растение: почвенный уровень (твердая фаза почвы–почвенный раствор), количественно характеризуемый обменным коэффициентом распределения ($K_d^{\text{обм}}$) [6], и биологический (или физиологический) уровень (почвенный раствор–растение), оцениваемый КН, который в значительной степени определяется концентрацией ионов Sr^{2+} , K^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+} в почвенном растворе.

Процессы и реакции, действующие в системе твердая фаза почвы–почвенный раствор и имеющие в своей основе физико-химическую природу, определяют подвижность ^{90}Sr и его потенциальную доступность для поглощения корнями растения. С регулированием на биологическом уровне связаны механизмы и процессы транспорта ионов при поглощении корнями растения [5, 7].

Таким образом, переход ^{90}Sr из почвы в растение определяется суперпозицией различных физико-химических и биологических процессов, формализация которых возможна только в рамках математической модели. Основные положения, лежащие в основе математической модели:

1) в почвенном растворе ^{90}Sr находится в динамическом равновесии с двумя ионообменниками – твердой фазой почвы и корневым обменным комплексом (корневой системой);

2) ^{90}Sr поступает в растение из почвенного раствора, и концентрация радионуклида в растении пропорциональна его доле в корневом обменном комплексе;

3) доля ^{90}Sr в корневом обменном комплексе определяется в основном концентрацией Ca^{2+} в почвенном растворе;

4) концентрация ^{90}Sr в почвенном растворе обрат-

но пропорциональна величине обменного коэффициента распределения ^{90}Sr между твердой и жидкой фазой почв ($K_d^{\text{обм}}$);

5) значение обменного коэффициента распределения ^{90}Sr определяется емкостью катионного обмена (EKO) твердой фазы почвы и катионным составом почвенного раствора (в основном Ca^{2+});

6) фиксированная форма радионуклида ^{90}Sr не участвует в обмене с почвенным раствором.

Согласно модели, при равновесных условиях концентрация ^{90}Sr в растении может быть определена следующим образом:

$$[^{90}\text{Sr}]_р = k [^{90}\text{Sr}^{2+}]_в / [\text{Ca}^{2+}]_в, \quad (2)$$

где k – коэффициент пропорциональности между количеством ^{90}Sr , поглощенного растением, и его долей в корневом обменном комплексе, характеризующий эффективность поглощения ^{90}Sr растением; $[^{90}\text{Sr}^{2+}]_в$ – концентрация ^{90}Sr в почвенном растворе, Бк/л; $[\text{Ca}^{2+}]_в$ – концентрация катионов кальция в почвенном растворе, мг-экв/л.

Закрепление и распределение ^{90}Sr в твердой фазе почвы в основном определяются закономерностями поведения его химического макроаналога – стабильного кальция (Ca^{2+}), что позволяет определить отношение $[^{90}\text{Sr}^{2+}]_в / [\text{Ca}^{2+}]_в$ исходя из ионообменного равновесия в соответствии со следующим выражением:

$$[^{90}\text{Sr}^{2+}]_{\text{обм}} / [^{90}\text{Sr}^{2+}]_в = K_c (^{90}\text{Sr}^{2+} / \text{Ca}^{2+}) [\text{Ca}^{2+}]_{\text{обм}} / [\text{Ca}^{2+}]_в, \quad (3)$$

где $[^{90}\text{Sr}^{2+}]_{\text{обм}}$ – концентрация обменных катионов ^{90}Sr в твердой фазе почвы, Бк/кг; $[\text{Ca}^{2+}]_{\text{обм}}$ – концентрация обменных катионов кальция в твердой фазе почвы, мг-экв/кг; $K_c (^{90}\text{Sr}^{2+} / \text{Ca}^{2+})$ – коэффициент селективности обмена для пары катионов Sr/Ca в твердой фазе почвы.

После соответствующих преобразований с использованием выражений (2) и (3) получаем

$$[^{90}\text{Sr}]_р = k [^{90}\text{Sr}^{2+}]_{\text{обм}} / \{ K_c (^{90}\text{Sr}^{2+} / \text{Ca}^{2+}) [\text{Ca}^{2+}]_{\text{обм}} \}. \quad (4)$$

Концентрация обменного ^{90}Sr в почве может быть выражена через его валовую концентрацию следующим образом:

$$[^{90}\text{Sr}^{2+}]_{\text{обм}} = \alpha_{\text{обм}} [^{90}\text{Sr}], \quad (5)$$

где $[^{90}\text{Sr}]$ – валовая концентрация ^{90}Sr в твердой фазе почвы, Бк/кг; $\alpha_{\text{обм}}$ – доля обменного ^{90}Sr в почве, %.

С учетом выражения (5) выражение (4) может быть представлено следующим образом:

$$[^{90}\text{Sr}]_р = k \alpha_{\text{обм}} [^{90}\text{Sr}] / \{ K_c (^{90}\text{Sr}^{2+} / \text{Ca}^{2+}) [\text{Ca}^{2+}]_{\text{обм}} \}. \quad (6)$$

Полученное выражение (6) дает возможность прогнозировать степень загрязненности растений ^{90}Sr при изменении уровня загрязнения почв дан-

ным радионуклидом, что имеет практическое значение как в случае аварийных ситуаций на АЭС, так и для контроля за динамикой накопления и миграции ^{90}Sr в системе почва–растение.

Результаты и обсуждение

Модель разработана с учетом экспериментальных данных [1, 2, 4, 5] по миграции ^{90}Sr в системе твердая фаза почвы–почвенный раствор–растение и предположения, что ^{90}Sr в почвенном растворе находится в динамическом равновесии с двумя ионообменниками – твердой фазой почвы и корневым обменным комплексом (корнями растения).

Основными определяющими показателями модели являются: отношение $\alpha_{\text{обм}}/[K_c(^{90}\text{Sr}^{2+}/\text{Ca}^{2+})]$, характеризующее фиксирующую способность почвы по отношению к ^{90}Sr ; валовая концентрация ^{90}Sr в твердой фазе почвы [^{90}Sr], Бк/кг; концентрация обменных катионов Ca^{2+} в твердой фазе почвы [Ca^{2+}]_{обм}, мг-экв/кг.

В качестве переменной рассматривается показатель КН, определяющий миграцию ^{90}Sr из почвы в растение.

Для кислых почв, загрязненных ^{90}Sr , традиционным путем их реабилитации, т.е. снижения миграции в системе твердая фаза почвы–почвенный раствор–растение, является известкование при условии обеспеченности почв калием для роста и развития растений.

Для удобства анализа преобразуем выражение (6), используя следующее соотношение:

$$[\text{Ca}^{2+}]_{\text{обм}} = \beta \cdot \text{ЕКО}, \quad (7)$$

где ЕКО – емкость катионного обмена, мг-экв/кг; β – доля заполнения обменным кальцием емкости катионного обмена почвы.

В результате получаем

$$\text{КН} = k\alpha_{\text{обм}}/[K_c(^{90}\text{Sr}^{2+}/\text{Ca}^{2+})\beta \cdot \text{ЕКО}]. \quad (8)$$

Как показано в работе [8], содержание обменного Mg^{2+} в большинстве почв составляет менее 20% от содержания обменного Ca^{2+} , а селективность Ca^{2+} при обмене на корневом обменном комплексе растений в 2–3 раза выше, чем для Mg^{2+} . Поэтому миграцию (переход) ^{90}Sr из почвы в растения после насыщения емкости катионного обмена почвы Ca^{2+} в результате известкования ($\text{ЕКО} \approx [\text{Ca}^{2+}]_{\text{обм}}$, $\beta \approx 1$) можно определить, используя следующее выражение:

$$\text{КН} = k\alpha_{\text{обм}}/[K_c(^{90}\text{Sr}^{2+}/\text{Ca}^{2+}) \cdot \text{ЕКО}]. \quad (9)$$

Анализ выражения (9) показывает, что возможность снижения миграции ^{90}Sr в системе твердая фаза почвы–почвенный раствор–растение путем

известкования кислых почв не беспределельна, а ограничена ЕКО почвы, что подтверждается и практикой [9, 10].

Полученное выражение (9) позволяет выйти на новые практические возможности, учет которых целесообразно использовать для дальнейшего снижения миграции ^{90}Sr из почвы в растения на произвесткованных почвах, которые уже имеют оптимальную кислотность.

Так, согласно выражению (9), КН не зависит от плотности загрязнения ^{90}Sr почвы и определяется обратной величиной $K_c(^{90}\text{Sr}^{2+}/\text{Ca}^{2+}) \cdot \text{ЕКО}$. Поэтому дальнейшее снижение миграции ^{90}Sr из почвы в растения в произвесткованных почвах возможно только путем изменения их сорбционных характеристик за счет внесения сорбентов с высокими значениями $K_c(^{90}\text{Sr}^{2+}/\text{Ca}^{2+}) \cdot \text{ЕКО}$. По аналогии с ^{137}Cs назовем величину $K_c(^{90}\text{Sr}^{2+}/\text{Ca}^{2+}) \cdot \text{ЕКО}$ потенциалом сорбции (SP) [11].

С учетом экономически обоснованной дозы внесения сорбентов в произвесткованную почву в количестве 1–4 мас% потенциал сорбции сорбента для снижения КН растения в 2 раза по отношению к ^{90}Sr может быть оценен на основе выражения (9).

Изменение потенциала сорбции почвы по отношению к ^{90}Sr после внесения в нее сорбента можно рассчитать на основе правила аддитивности

$$SP(\text{п} + \text{с}) = SP(\text{с})m_{\text{с}}/m_{\text{п}} + SP(\text{п}), \quad (10)$$

где $SP(\text{с})$, $SP(\text{п})$ и $SP(\text{п} + \text{с})$ – потенциал сорбции соответственно сорбента, почвы и почвы после внесения в нее сорбента, мг-экв/кг; $m_{\text{с}}$, $m_{\text{п}}$ – масса сорбента и почвы, кг.

Так, для дозы сорбента в количестве 1% из выражений (9) и (10) после несложных преобразований получаем $SP(\text{с})/SP(\text{п}) \approx 100$ раз.

В настоящее время для дальнейшего снижения миграции ^{90}Sr в растения в произвесткованных дерново-подзолистых песчаных и супесчаных почвах такими сорбентами могут быть торф, органические сапропели и цеолиты.

На основе предложенной концептуальной модели миграции ^{90}Sr из почв в растения получено выражение для оценки его миграции, являющееся комбинацией ключевых показателей почвы (содержание обменного Ca^{2+} и доли обменного $^{90}\text{Sr}^{2+}$ в почве, коэффициента селективности обмена для пары катионов $^{90}\text{Sr}^{2+}$ – Ca^{2+}).

Достоинством данной модели является малое число показателей, которые имеют ясный физический смысл и могут быть определены с использованием существующих стандартных физико-химических методов.

Разработанная модель показывает, что возможность снижения миграции ^{90}Sr в системе почва–растение путем известкования кислых почв имеет предел, ограниченный емкостью катионного обмена почвы. Кроме того, из модели следует, что дальнейшее снижение миграции ^{90}Sr в растения в известкованной почве возможно только за счет внесения в почву сорбентов с высокими значениями потенциала сорбции (SP), определяемого произведением величин $K_c(^{90}\text{Sr}^{2+}/\text{Ca}^{2+})$ и ЕКО.

Согласно проведенной оценке, для эффективного снижения миграции ^{90}Sr в растения в 2 раза на известкованной почве необходимо, чтобы отношение потенциалов сорбции сорбента и почвы с учетом экономической целесообразности внесения сорбента в почву в дозе 1–4 мас% было не менее 25 раз.

Список литературы

- [1] Санжарова Н. И., Сыроева А. А., Исамов Н. Н. и др. // Рос. хим. журн. 2005. Т. 49, N 3. С. 26–34.
- [2] Англиби Л. Дж. и др. Пути миграции искусственных радионуклидов в окружающей среде. Радиоэкология после Чернобыля. М., 1999. 512 с.
- [3] Овсянникова С. В., Соколик Г. А., Эйсмонт Е. А. и др. // Докл. НАН Беларуси. 1998. Т. 42, N 3. С. 109–116.
- [4] Бондарь П. Ф. // Агрохимия. 1983. N 7. С. 69–79.
- [5] Барбер С. А. Биологическая доступность питательных веществ в почве. Механистический подход. М., 1988. 376 с.
- [6] Коноплев А. В., Булгаков А. А. // Атом. энергия. 2000. Т. 88, N 2. С. 152–158.
- [7] Павлоцкая Ф. И. Миграция радиоактивных продуктов глобальных выпадений в почвах. М., 1974. 216 с.
- [8] Sentenac H., Grignon C. // Plant Physiol. 1981. Vol. 68. P. 415–419.
- [9] Путьятин Ю. В. Минимизация поступления радионуклидов ^{137}Cs и ^{90}Sr в растениеводческую продукцию. Минск, 2008. 255 с.
- [10] Иванов С. Н., Шагалова Э. Д., Шифрина С. С. // Почвоведение и агрохимия. 1975. Вып. 5, N 12. С. 147–149.
- [11] Контрмеры: почвенно-химический подход к стратегии контрмер / Совместный экспериментальный проект N 2. Переход радионуклидов через наземную окружающую среду в сельскохозяйственные продукты, включая оценку агрохимических приемов. Заключительный отчет. EUR 16528 EN. 1996. С. 99–115.

Рецензия на второй том монографии «Химические проблемы атомной энергетики (радиохимический анализ и радиохимические технологии)» / Под ред. проф. Л. Н. Москвина

Второй том монографии «Химические проблемы атомной энергетики» охватывает широкий круг вопросов, относящихся к сфере радиохимии. Во-первых, это вопросы, связанные с методологией радиохимического контроля, осуществляемого на объектах атомной энергетики, а во-вторых, технологические аспекты радиохимических проблем: дезактивация, переработка жидких радиоактивных отходов и отверждение их концентратов. В монографии обобщены результаты оригинальных разработок авторов, выполненных в основном в Научно-исследовательском технологическом институте им. А. П. Александрова. Это методы экспрессного радиохимического анализа, ставшие основными в осуществлении радиохимического контроля на объектах атомной энергетики, метод реперного контроля газоаэрозольных выбросов ЯЭУ, положенный в основу АСРК, установленных на новых блоках АЭС и включенных в проекты перспективных блоков. В области радиохимических технологий речь идет о новых технологиях дезактивации, включая малоотходные технологии, ориентированные на ЯЭУ транспортного назначения, и усовершенствованные технологии дезактивации КМПЦ РБМК и первых контуров ВВЭР. Кроме того, обосновываются общие принципы безреагентных технологий дезактивации первых контуров водо-водяных реакторов на работающем реакторе, а также приводятся данные о

результатах их апробации на полномасштабных стендах-прототипах транспортных ЯЭУ.

В разделе, посвященном переработке ЖРО, обосновывается идея автономной переработки непосредственно на месте их образования и приводятся сведения о технических решениях, обеспечивающих такую переработку: о модульной мембранно-сорбционной установке для концентрирования радионуклидов из ЖРО и о мобильной установке для цементирования полученных концентратов.

При ознакомлении с материалами, представленными в рецензируемой монографии, читатель получает исчерпывающие сведения по всем актуальным радиохимическим проблемам, с которыми приходится сталкиваться при проведении испытаний и эксплуатации объектов атомной энергетики. Как и 1-й том, книга ориентирована на эксплуатационный персонал ЯЭУ, на работников НИИ, занимающихся проблемами атомной энергетики, а также на студентов и аспирантов, подготавливаемых для работы на атомно-энергетических объектах.

Генеральный директор ФГУП «НИТИ им. А. П. Александрова», д.т.н., проф.

В. А. Василенко