

Ба 252 631

БЕЛОРУССКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ

На правах рукописи

ОВСЯННИКОВА СВЕТЛАНА ВАСИЛЬЕВНА

ФОРМЫ НАХОЖДЕНИЯ РАДИОГЛУКЛИДОВ ЧЕРНОВЫЛЬСКОГО
ВЫБРОСА В ПОЧВАХ РЕСПУБЛИКИ БЕЛАРУСЬ

Специальность 02.00.04 - физическая
химия -- 02.00.14 - радиохимия

А В Т О Р Е Ф Е Р А Т
диссертации на соискание ученой степени
кандидата химических наук

Минск - 1992

Работа выполнена в научно-исследовательской лаборатории радиационной химии химического факультета Белорусского государственного университета.

Научный руководитель

доктор химических наук,
профессор ПЕТРЯЕВ Е. П.

Официальные оппоненты

член-корреспондент АН
Украины, доктор геолого-
минералогических наук,
профессор СОВОТОВИЧ Э. В.

доктор химических наук,
профессор ДАВЫДОВ Ю. П.

Ведущая организация

Научно-исследовательский
институт геологии, гео-
химии и геофизики АН
Беларуси

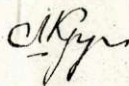
Защита диссертации состоится " " 1992 года
в часов на заседании специализированного Совета Д 056.03.04
при Белорусском государственном университете (220080, г. Минск,
пр. Ф. Скорины, 4, Белгосуниверситет, главный корпус, ауд. 206).

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке Белорусского
государственного университета.

Автореферат разослан " " 1992 года.

1992 года.

Ученый секретарь
специализированного Совета,
доктор химических наук



КРУЛЬ Л. П.

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность темы. Прогноз изменения радиозоологической ситуации, сложившейся в загрязненных районах республики в результате аварии IV блока Чернобыльской АЭС, невозможен без учета физико-химического состояния радионуклидов, определяющего закономерности их распределения в почвенном покрове. Состояние радионуклидов в этом важнейшем элементе биосферы влияет на поведение и характер их миграции в остальных звеньях геохимического и биологического циклов.

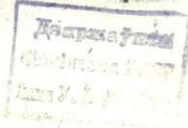
Особенности форм нахождения радионуклидов в почве определяются:

- многообразием и степенью сложности химических форм как почвенных компонентов, так и чернобыльских выпадений;
- ограниченными возможностями радионуклидов чернобыльских выпадений формировать собственные фазы химических соединений из-за их ультрамикрочисленного содержания в природных объектах и, как следствие, входящим в состав соединений своих стабильных изотопов и других химических элементов - носителей радионуклидов;
- трансформацией радиоактивных продуктов при взаимодействии с компонентами почвенного комплекса.

С учетом особенностей форм и поведения радионуклидов в почвенных средах представилось целесообразным оценивать их общее физико-химическое состояние, идентифицировать и рассматривать формы нахождения, отличающиеся по степени прочности связи со всей совокупностью компонентов почвенного комплекса. Для их выделения из почвы использовались методы, применяемые в радиохимии и основанные на селективном выщелачивании элементов при последовательной обработке проб растворами различного состава. Определялось содержание радионуклидов в водорастворимой, обменной, подвижной (легкорастворимой) и "фиксированной" формах, отличающихся интенсивностью процессов перераспределения в почвенном покрове, поступления в природные воды и растительные организмы.

Как свидетельствуют литературные данные и результаты собственных исследований, характерной особенностью площадного распределения продуктов чернобыльской аварии является зависимость его от направления и расстояния относительно ЧАЭС. Приме-

022010



252631

Бел. адзет
1994 г.

нение различных материалов для засыпки разрушенного реактора и существенные изменения в связи с этим режима выбросов предопределило Большое равнообразие химических форм радионуклидов, отличающихся от радиоактивных продуктов глобальных стратосферных выпадений в результате испытаний ядерного оружия - самого существенного источника поступлений радионуклидов в биосферу до аварии ЧАЭС.

Уникальный характер и масштабы Чернобыльской аварии требуют систематических и детальных исследований форм нахождения радионуклидов в почве, их трансформации при изменении параметров почвенной среды и эволюции во времени. Такая информация необходима при оценке радиэкологической ситуации и тенденции ее изменения во времени. Важной задачей является сопоставление состояний и поведения радионуклидов чернобыльских и глобальных стратосферных выпадений - основой для использования уже накопленного опыта проживания и хозяйственной деятельности человека на загрязненных территориях.

Цель работы:

- установить качественный и количественный составы радиоактивного загрязнения и распределения радионуклидов чернобыльского выброса по вертикальным почвенным профилям в различных ландшафтно-геохимических условиях за пределами 30-километровой зоны аварии;
- изучить формы нахождения радиоактивных изотопов, отличающихся прочностью связи с природными и техногенными составляющими почв и определяющие миграцию радионуклидов;
- установить характер изменения состояния радионуклидов во времени, в зависимости от расстояния до источника загрязнения и по вертикальным почвенным профилям;
- выявить основные параметры среды, определяющие формы их нахождения в почве;
- сравнить поведение радионуклидов глобальных и чернобыльских выпадений.

Научная новизна. Впервые с использованием современных методов исследования (гамма-спектрометрии, бета-радиометрии, атомно-абсорбционной спектроскопии, пламенной фотометрии, химического, радиохимического и рентгеноструктурного анализов) проведено сис-

010580

тематическое изучение состояния радионуклидов черномыльских выпадений и свойств почвенной среды за пределами 30-километровой зоны аварии ЧАЭС в условиях, типичных для загрязненных регионов республики. Показано, что соотношения радионуклидов цезия и стронция различных форм существенно отличаются в одних и тех же почвенных средах. Для всех разновидностей исследованных почв установлено более высокое относительное содержание радиоактивного стронция в водорастворимой, обменной и подвижной формах, отличающихся высокими миграционными возможностями, по сравнению с радиоизотопами цезия.

Обнаружено, что в соотношении форм радиоактивного стронция в поверхностных (0-1 см) слоях однотипных почв доля обменной формы радионуклида увеличивается по мере удаления от места аварии.

Выявлена эволюция во времени форм нахождения радионуклидов в почвах. Обнаружено увеличение со временем доли радиоактивного стронция обменной формы и радиоактивного цезия подвижной формы в поверхностных слоях всех типов исследованных почв стационаров ближней зоны ЧАЭС (около 40 км от места аварии) и, соответственно, возрастание их подвижности в почвах. Соотношение рассмотренных форм радионуклидов цезия, рутения и сурьмы со временем (1987-1989 годы) не менялось.

Методами химического фракционирования почвенного гумуса, радиохимического анализа и рентгенографии установлено, что на состояние радиоизотопов цезия в почве существенное влияние оказывает содержание и структура глинистых минералов почвенного комплекса. Состояние радиоактивного стронция в значительной степени определяется содержанием и составом почвенного гумуса и емкостью поглощения почвенного комплекса.

Практическая ценность работы. Результаты исследования позволяют оценивать степень подвижности радионуклидов черномыльских выпадений в изученных разновидностях дерновых, дерново-подзолистых и торфяно-болотных почв на территории северного "следа" радиоактивного выброса, могут быть использованы для прогнозирования вертикального перераспределения радионуклидов в почвенном профиле, их поступления в природные воды и растительные ассоциации. Полученные данные являются исходным материалом для построе-

ния радиоэкологических карт загрязненной территории и должны учитываться при оценке доз облучения населения рассматриваемых районов. Они могут быть использованы для выявления областей повышенной миграции радионуклидов и для решения практических задач минимизации негативных последствий аварии, рационального природопользования в пострадавших от аварии регионах республики.

Методик эксперимента. Решение задач, поставленных в диссертационной работе, осуществлялось методами гамма-спектрометрии и радиохимического анализа специально подготовленных образцов почвы и почвенных вытяжек с использованием бета-радиометрии и атомно-абсорбционной спектроскопии. Произведено радиохимическое определение форм нахождения радионуклидов, отличающихся по характеру связи с компонентами почвенного комплекса, с применением последовательного селективного выщелачивания и химического фракционирования гумусовых веществ почвы.

При изучении физико-химических характеристик почвенного комплекса использовались методы гранулометрического анализа, pH-метрии, рентгенографического определения структуры минералов неорганической части почвенного ила, химического определения содержания гумусовых веществ, ионообменной емкости поглощения почв и состава обменных катионов поглощающего почвенного комплекса с привлечением методик атомно-абсорбционной спектроскопии и пламенной фотометрии.

На защиту выносятся:

- результаты радиохимического определения форм нахождения радионуклидов ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{106}Ru , ^{144}Ce , ^{125}Sb и ^{90}Sr (водорастворимой, обменной, подвижной, "фиксированной"), определяющих их миграционные возможности в почвах загрязненных регионов республики;

- новые данные, свидетельствующие об изменении состояния радионуклидов в зависимости от положения полигона относительно места аварии, во времени и по вертикальным почвенным профилям;

- экспериментальные данные по характеру загрязнения и распределению радионуклидов по вертикальным почвенным профилям в зависимости от положения в микроландшафте и структуры почвенного профиля на расстоянии от 40 до 250 км относительно ЧАЭС на территории северного "следа" радиоактивного выброса;

- результаты исследований, свидетельствующие о влиянии гумусовых веществ и емкости поглощения почв на состояние и миграционные свойства радиоактивного стронция и отсутствие подобного влияния на поведение радиоизотопов цезия, данные по влиянию состава и структуры минералов тонкодисперсных гранулометрических фракций и других физико-химических характеристик почвенной среды на состояние радионуклидов.

Апробация работы. Основные результаты диссертационной работы докладывались на Республиканских научно-практических конференциях по радиобиологии и радиозоологии (Минск, 1988 и 1990 годы), на Всесоюзном семинаре Нучного Совета по программе АЭС-ВО (Черноголовка, 1988 г.), на Всесоюзной конференции "Радиационные аспекты Чернобыльской аварии" (Обнинск, 1989 г.), на I Всесоюзном радиобиологическом съезде (Москва, 1989 г.), на Всесоюзном совещании "Принципы и методы ландшафтно-геохимических исследований миграции радионуклидов" (Суздаль, 1989 г.), на IV Всесоюзной конференции "Геохимические пути миграции искусственных радионуклидов в биосфере" (Гомель, 1990 г.), на VI конференции по аналитической химии Прибалтийских республик, Белорусской ССР и Калининградской области (Рига, 1990 г.), на международном семинаре "Comparative Assessment of the Environmental Impact of Radionuclides Released during Three Major Nuclear Accidents: Kyshtym, Windscale, Chernobyl" (Люксембург, 1990 г.), на Всесоюзном совещании "Создание машин для районов, пострадавших в результате аварии на Чернобыльской АЭС" (Минск, 1991 г.), на Всесоюзном совещании "Геохимия техногенеза" (Минск, 1991 г.), на Всесоюзной конференции "Проблемы ликвидации последствий аварии на Чернобыльской АЭС в агропромышленном производстве - пять лет спустя: итоги, проблемы, перспективы" (Обнинск, 1991 г.).

Публикации. По теме диссертации автором опубликовано 8 статей и 15 тезисов докладов.

Объем и структура диссертации. Работа написана по результатам экспериментального изучения физико-химических свойств почвы и радиохимического определения форм нахождения чернобыльских радионуклидов в образцах, отобранных в экспедициях 1987-1989 годов, в которых автор принимал участие. Она изложена на 178 страницах машинописного текста, включая 19 рисунков, 25 таблиц и

библиографи. из 202 наименований. Диссертация состоит из введения, четырех разделов, содержащих обзор литературы, методическую часть, результаты эксперимента и их обсуждение, заключения, выводов и списка литературы.

ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Объектами экспериментального исследования служили образцы загрязненных радионуклидами дерновых, дерново-подзолистых и торфяно-болотных почв трех ландшафтно-геохимических полигонов, расположенных в Хойникском и Кормянском районах Гомельской области и в Чериковском районе Могилевской области на расстоянии 40-250 км от Чернобыльской АЭС. По характеру загрязнения и набору природных элементов контрольные участки типичны для соответствующих биогеохимических провинций. Они представлены сопряженными микроландшафтами, расположенными по профилям геохимической миграции элементов. Принцип выбора контрольных полигонов позволяет экстраполировать полученные данные на другие части загрязненной территории республики.

МЕТОД СЕЛЕКТИВНОГО ВЫЩЕЛАЧИВАНИЯ В ИЗУЧЕНИИ СОСТОЯНИЯ РАДИОНУКЛИДОВ В ПОЧВЕ

Анализируются литературные данные об особенностях почвы как предмета исследования и метода селективного выщелачивания как приема, используемого в радиохимии при изучении состояния радионуклидов в почвенной среде.

Почва - это специфический природный объект, представляющий собой сложную полидисперсную систему, твердая фаза которой является сорбентом. Характер связи радионуклидов с почвой зависит от химической природы элемента и от физико-химических свойств адсорбционной среды, определяющих в конечном счете многообразие форм нахождения радионуклидов. При прогнозировании радиэкологической ситуации и оценке миграционной способности радионуклидов необходима информация об их содержании в водорастворимой, обменной, подвижной (легкорастворимой) и "фиксированной" формах, отличающихся прочностью связи с компонентами почвенного комплекса

и подвижностью в почве.

Водорастворимая форма радиоактивных изотопов наименее прочно связана с почвенным комплексом, легко извлекается из него, как следствие, наиболее подвижна. В водную вытяжку переходят катионы радионуклидов, взаимодействующие с почвой по механизму ионного обмена, и их растворимые комплексные соединения с веществами почвенного гумуса.

Содержание катионов радионуклида в водном растворе определяется константой ионообменного равновесия и зависит от обменной емкости почвы и концентрации обменных ионов в экстрагирующем растворе. По литературным данным основными обменными катионами в почве являются Ca^{2+} , Mg^{2+} , K^+ , H^+ . Из анализа полученных экспериментальных результатов и данных других авторов следует, что в почвах Республики Беларусь содержание обменного кальция обычно превосходит концентрацию остальных катионов.

Радионуклиды в обменном состоянии также связаны с компонентами почвы по механизму ионного обмена и вытесняются из нее растворами нейтральных солей. Они могут быть связаны как с минеральной частью почвы, так и с ее органической составляющей. Переход элементов в солевую вытяжку определяется особенностями почвы и обменной способностью используемого солевого раствора.

Из литературных данных следует, что концентрация радионуклидов в природных почвенных растворах находится в прямой зависимости от их содержания в почве в обменном состоянии. Водорастворимые радионуклиды могут рассматриваться как элементы обменной формы, извлекаемые из почвы предельно разбавленными солевыми растворами. Обменные радионуклиды также отличаются высокой миграционной способностью.

Из множества экстрагентов радионуклидов в обменном состоянии предпочтение отдают 1 н раствору ацетата аммония, легко разрушающемуся при выпаривании раствора и полностью удаляемому в результате прокаливания сухого остатка.

Опыт выбора оптимальных условий наиболее полного извлечения элементов, основанный на анализе литературных данных и результатах собственных методических исследований, показывает, что отношение компонентов почва : раствор меняется в зависимости от физико-химических характеристик почвы (состава ее минеральной

части, содержания гумусовых веществ) и условий выщелачивания. Для дерново-подзолистых почв указанное отношение должно составлять не менее 1:5, а для почв, богатых гумусом, - 1:10 (при условии четырехкратного обновления экстрагента).

Радионуклиды подвижной формы несколько прочнее связаны с компонентами почвенного комплекса, чем в обменном состоянии, и выщелачиваются из почвы однонормальной соляной кислотой. Экстрагент переводит в раствор карбонаты, часть гидроксидов и радионуклиды, связанные с глинистыми и другими минералами, но не входящие в кристаллическую решетку, а сорбированные на внешних и внутренних поверхностях кристаллов. Он в раствор соляной кислоты разрушает органо-минеральные соединения и образует растворимые продукты с катионами щелочных, щелочноземельных и других металлов.

Как свидетельствуют результаты исследований других авторов, содержанием подвижной формы радиоактивного цезия определяется предельное количество радионуклида, способное усваиваться из почвы растениями. В силу биохимических различий элементов количество радиоактивного стронция, доступного растениям, не превышает содержания в почве его обменной формы.

Радионуклиды в "фиксированном" состоянии наиболее прочно удерживаются компонентами почвы и остаются в образце после выделения элементов подвижной формы. При определении содержания "фиксированного" радиоактивного стронция методом радиохимического агализа проводилось его выщелачивание из почвы 6 н соляной кислотой с последующим растворением почвенного остатка после взаимодействия с фторидом (гидрофторидом) аммония или в результате многократной обработки смесью фтористоводородной и хлорной кислот.

При изучении количественных соотношений различных форм черномыльских радионуклидов учитывалось присутствие в почве труднорастворимых активных ("горячих") частиц выпадений, состав и структура которых существенно отличаются от природных компонентов почвенного комплекса. Радионуклиды, входящие в состав этих образований, не могут быть поглощены компонентами почвы без разрушения их структуры.

РЕЗУЛЬТАТЫ ИССЛЕДОВАНИЯ ПОВЕДЕНИЯ РАДИОАКТИВНЫХ ПРОДУКТОВ ЧЕРНОБЫЛЬСКОГО ВЫБРОСА В ПОЧВЕ (1987 - 1989 г. г.)

Распределение радионуклидов в почвенном покрове, сложившееся к определенному моменту времени, - это результат взаимодействия радиоактивных продуктов выпадения с составляющими почвы в реальных природных условиях. Изучение форм нахождения радионуклидов, отличающихся характером связи с компонентами почвенного комплекса, в сочетании с анализом физико-химических характеристик почвенной среды позволяет выявить основные способы миграции радионуклидов и параметры почвы, определяющие состояние и миграционные свойства радионуклидов. Такая информация дает возможность не только объяснить наблюдаемое распределение, но и прогнозировать его изменение.

Динамику миграции и соотношения подвижностей радионуклидов в различных почвенных средах можно оценить по их распределению по вертикальным почвенным профилям различных типов. Рассмотрены типичные примеры такого распределения радионуклидов цезия и стронция. Установлено, что, независимо от ландшафтно-геохимической ситуации, основное количество радионуклидов локализовано в приповерхностной области почвенного покрова. Так, в 1987 г. лесной подстилкой и поверхностными (0-1 см) слоями почвы задерживалось 70-90 % суммарного запаса радионуклидов в почве. За период с 1987 по 1989 год уровень загрязнения подстилающей поверхности снизился на 15-40 %, изменение содержания радиоактивных элементов в верхних (0-5 см) слоях не превышало 15 %, а в нижележащих слоях - 2 % их общего количества в почвенных пробах.

Показано, что вертикальная миграция изотопа ^{90}Sr протекает более интенсивно, чем ^{137}Cs . Об этом свидетельствует уменьшение отношения $A^{137}\text{Cs} / A^{90}\text{Sr}$ с глубиной по профилю почв.

Анализ состояния радионуклидов в почве контрольных полигонов в 1987-1989 г. г. показал, что во всех без исключения почвенных разновидностях изотопы ^{134}Cs и ^{137}Cs находятся преимущественно в "фиксированной" форме. В 1987 г. содержание радиоактивного цезия в "фиксированном" состоянии составило 60-90 %, в 1988 г. - 76-97 %, в 1989 г. - 49-98 %. Прочное закрепление радионуклидов может быть обусловлено их входением в состав

труднорастворимых активных частиц выпадений и внедрением в кристаллическую решетку глинистых минералов.

Содержание радиоактивного цезия, растворимого в воде, остается низким и практически неизменным во времени: в 1987 г. - <0.1-0.9 %, в 1988 г. - <0.1-0.8 %, в 1989 г. - 0.1-1.3 %.

Доля радионуклидов в обменном и подвижном состояниях в поверхностных слоях почвы не превышает соответственно 22 и 40 % в 1987 г., 8 и 24 % в 1988 г., 34 и 51 % в 1989 г.

За рассматриваемый период принципиальных изменений в соотношении радионуклидов цезия исследованных форм не наблюдалось. Основная часть радионуклидов по-прежнему сохраняется в "фиксированном" состоянии.

Установлено существование двух типов изменения соотношения радионуклидов цезия различных форм по вертикальным почвенным профилям. В некоторых разрезах с супесчаной почвой на глубине более 3 см относительное количество радиоактивного цезия в обменном состоянии в 2-5 раз выше, чем в слое 0-1 см. В большинстве же случаев доля обменных изотопов цезия либо остается неизменной, либо снижается по сравнению с поверхностными слоями.

Полученные соотношения различных форм радиоактивного цезия по вертикальным почвенным профилям указывают на влияние структуры профиля на способ перераспределения изотопов. В большинстве случаев мигрируют преимущественно радионуклиды цезия "фиксированной" формы. Это может быть перенос радиоактивного цезия, внедренного в мельчайшие кристаллы глинистых минералов по механизму иomorphic замещения катиона в их структуре. Не исключена возможность вертикальной миграции в почве и труднорастворимых активных частиц чернобыльских выпадений. Однако, как правило, их способность к вертикальному перераспределению в почве довольно низка. По данным других исследователей, до 1989 г. на всех полигонах основное количество активных частиц находилось в слое почвы 0-1 см.

В разрезах, где относительное содержание обменных изотопов с глубиной увеличивается, радионуклиды этой формы вносят заметный вклад в вертикальную миграцию радиоактивного цезия в почве. Показано, что соотношение водорастворимой, обменной, подвижной и "фиксированной" форм радиоактивного цезия в почве не зависит от

расстояния реперного участка до места аварии. Оно определяется в основном составом и физико-химическими особенностями почвенного комплекса. Вместе с тем, характер "фиксации" (относительные вклады радиоизотопов цезия, прочно связанных почвенными минералами и активными частицами выпадений) может меняться в зависимости от положения полигона относительно ЧАЭС.

Поведение изотопа ^{90}Sr характеризуется рядом особенностей. В поверхностных слоях исследованных почв радиоактивный стронций находится преимущественно в обменном и "фиксированном" состояниях. Его отличает более высокое по сравнению с радиоактивным цезием относительное содержание в водорастворимой (1-19 %), обменной (14-93 %) и подвижной (34-100 %) формах и, следовательно, более низкое в "фиксированном" состоянии (<1-66 %).

Установлено, что соотношение форм изотопа ^{90}Sr в почве существенно зависит от положения реперного участка относительно ЧАЭС. Доля обменного радионуклида в поверхностных (0-1 см) слоях почвы увеличивается по мере удаления от места аварии. Так, в 1987 г. на участке I, расположенном примерно в 40 км от поврежденного реактора, относительное количество ^{90}Sr в обменном состоянии составляло 14-41 %. На расстоянии 200-250 км от источника загрязнения (участки II и III) основной формой нахождения радиоактивного стронция в почвах становится обменная. Ее содержание в соответствующих образцах достигает 45-91 %. Доля радионуклида в "фиксированном" состоянии при этом существенно уменьшается (от 15-22 % на участке I до <1-9 % - на участках II и III).

Во всех типах исследованных почв наблюдается увеличение со временем относительного содержания обменного ^{90}Sr . Наиболее отчетливо эта тенденция проявляется на полигонах с относительно высокой степенью загрязнения стронцием.

Отмеченные особенности поведения радиоактивного стронция во времени могут быть связаны с постепенным разрушением активных частиц чернобыльских выпадений (в результате выветривания, старения, излучения, коррозии под действием почвенных составляющих), многократно усиливающимся на структурах с высокой плотностью дефектов. Формированию значительного количества радиационно-термических дефектов в тугоплавкой матрице активных частиц способствовала чрезвычайно высокая степень неоднородности среды (с

высокими градиентами температуры и концентрации компонент в) при радиоактивном выбросе.

Как свидетельствуют экспериментальные результаты, поглощение выделенного из активных частиц изотопа ^{90}Sr природными компонентами почвенного комплекса происходит в основном по механизму ионного обмена.

Анализ изменений в соотношении форм радионуклида по вертикальному профилю почвенного покрова показал, что миграция изотопа ^{90}Sr в почве осуществляется преимущественно в обменной форме.

Полученные данные о состоянии основных дозоформирующих элементов в почвенном покрове свидетельствуют о более высокой подвижности ^{90}Sr по сравнению с изотопами ^{134}Cs и ^{137}Cs . Сравнение содержания радионуклидов различных форм показывает, что доля обменного радиоактивного стронция в почве существенно превосходит долю радиоизотопов цезия в обменном и подвижном состояниях. Растворимость ^{90}Sr в воде также значительно выше, чем изотопов ^{134}Cs и ^{137}Cs .

Из полученных результатов следует, что относительное количество радиоактивного стронция доступного растениям, значительно превышает соответствующее содержание радиоизотопов цезия в почве.

Установлено, что радионуклиды сурьмы и рутения находятся в почве преимущественно в "фиксированном" состоянии. Радиоактивный церий распределяется в основном между подвижной и "фиксированной" формами. Наблюдается тенденция к увеличению со временем доли подвижного церия в почве стационаров, расположенных вблизи места аварии, где по данным других исследователей преобладают церий- и рутенийсодержащие активные частицы. Как и в случае ^{90}Sr , это может быть результатом разрушения присутствующих в почвах активных частиц выпадений. Отсутствие подобных изменений в соотношении форм радионуклидов, выделяющихся из активных частиц, вероятно, связано с их прочным закреплением природными составляющими почвенного комплекса (возможно, глинистыми минералами в случае радиоактивного цезия и гумусовыми кислотами в случае радиоактивного рутения) и переходом в иное "фиксированное" состояние.

ВЛИЯНИЕ ФИЗИКО-ХИМИЧЕСКИХ СВОЙСТВ ПОЧВЫ НА СОСТОЯНИЕ РАДИОНУКЛИДОВ

Установлено, что состояние и поведение радиоактивных изотопов является результатом влияния сложной суперпозиции множества разнородных факторов. Среди них основное влияние на поведение радиоактивного цезия оказывает, по-видимому, содержание и структура глинистых минералов. Результаты рентгенографического исследования илистых фракций почв, обладающих максимальной поглощательной способностью, показали, что анализируемые образцы можно разделить на две основные группы: включающие глинистые минералы и не содержащие их. К первой группе относятся образцы пойменных дерновых почв, отобранные в массиве почвенных профилей, и дерново-подзолистые почвы, ко второй - верхние слои торфяно-болотных почв (на глубину до 9-10 см) и пойменных дерновых (на глубину до 3-4 см) почв. Илистая фракция последней группы представлена в основном гумусовыми веществами и тонкодисперсным кварцем, не обладающим способностью "фиксировать" радиоизотопы цезия. В торфяно-болотных почвах идентифицирован также оксалат кальция в виде минерала вевекулита.

Методом рентгенографического анализа неорганической части почвенного ила установлено, что среди глинистых минералов рассматриваемых почв присутствуют слоистые силикаты как с жесткой, так и с расширяющейся кристаллической решеткой. В дерново-подзолистых разновидностях почв идентифицирован вермикулит, в пойменных дерновых - монтмориллонит. Оба минерала имеют рыхлую кристаллическую решетку, способную к расширению, и по "фиксирующей" способности превосходят глинистые минералы с жесткой структурой.

Глинистые минералы способны не только прочно связывать цезий путем изоморфного замещения калия в их кристаллических решетках. Они могут взаимодействовать с радиоизотопами цезия по механизму ионного обмена, причем ионообменная способность монтмориллонита и вермикулита (так же, как и "фиксирующая") гораздо выше, чем у других минералов. Это связано с особенностью их структуры и возможностью обменивать катионы не только на внешних поверхностях кристаллов (экстрамицеллярно), но и на внутренних (интермицеллярно) за счет проникновения цезия в межслоевое прост-

ранство.

По среднему (за период 1987-1989 г.г.) содержанию обменных радиоизотопов цезия в поверхностных (0-1 см) слоях исследованные почвы можно расположить в следующий ряд: дерново-подзолистые супесчаные > дерново-подзолистые песчаные > торфяно-болотные > пойменные дерновые заболоченные. Самая низкая доля обменных радиоизотопов цезия в дерновых и торфяно-болотных почвах может быть связана с отсутствием глинистых минералов в исследованных почвенных слоях. Более высокое относительное содержание радиоактивного цезия обменной формы в дерново-подзолистых почвах, вероятно, обусловлено присутствием вермикулита, а более значительная доля обменных радиоизотопов в супесчаных разновидностях по сравнению с песчаными - высокой концентрацией минерала в супесчаных почвах.

Методом выделения и химического фракционирования органических веществ почв и анализа распределения радионуклидов по различным фракциям органических соединений показано, что гумусовые вещества, отличающиеся высокой подвижностью в почвах, практически не влияют на состояние и миграционные свойства радиоактивного цезия. Основное количество радиоизотопов цезия (96,6-99,5 %) содержится в фракции, включающей глинистые минералы и гумусовые вещества, связанные с ними и кальцием.

Доля радиоактивного цезия в составе водорастворимой фульвокислотной фракции, компоненты которой характеризуются высокой мобильностью в почвенной среде, не превышает 1,6 %. Столь низкое содержание радиоизотопов в составе указанной группы органических веществ дает основание полагать, что они слабо влияют на миграционные свойства радиоактивного цезия. В соответствии с химической природой радиоактивный цезий не обнаруживает склонности к комплексообразованию с лигандами гумусовых веществ. На основании полученных результатов сделано заключение, что гумусовые вещества почв, не связанные с глинистыми минералами и кальцием, слабо влияют на состояние и миграционные свойства радиоизотопов цезия. Их взаимодействие с природными составляющими почвенного комплекса, по-видимому, в основном связано с глинистыми минералами (в частности, гидрослюдой, вермикулитом, монтмориллонитом и смешанослойными образованиями на их основе).

Распределение радиоактивного стронция по выделенным фракциям органических соединений почвы существенно отличается от радионуклидов цезия. Доля ^{90}Sr в составе гумусовых веществ, не связанных с глинистыми минералами и кальцием, значительно выше, чем радионуклидов цезия. Она достигает 45 %, причем основная часть радионуклида в выделенной группе органических веществ (82-99.8 %) приходится на подвижную фульвокислотную фракцию. Как следует из литературных данных, присутствие ^{90}Sr в этой фракции может быть обусловлено образованием водорастворимых комплексных соединений с ее компонентами, что способствует повышению миграционной способности радионуклида в почве.

Доля ^{90}Sr в составе выделенной фракции гуминовых кислот не превышает 0.5 % от общего количества радионуклида в почве. По данным других авторов, малоподвижные гуминовые кислоты также склонны к образованию комплексных соединений со стронцием, уменьшая тем самым его подвижность в почве. Однако, специфический состав гумусовых веществ белорусских почв (более высокое содержание фульвокислотных фракций по сравнению с гуминовыми кислотными, сближение их состава по степени насыщенности углеродом и более высокая доля относительно низкомолекулярных продуктов, чем в почвах южных регионов) способствует преобладанию подвижных форм комплексных соединений радиоактивного стронция с органическими лигандами.

Сопоставление результатов рентгенографического анализа илистых фракций почв и радиохимического определения форм нахождения радиоактивного стронция показало, что присутствие в почве минералов, содержащих кальций и магний (доломита, кальцита, гипса, вевекулита), способствует включению радионуклида в их структуру. Установлено, что состояние радиоактивного стронция в наиболее заметной степени зависит от содержания гумусовых веществ и ионообменной емкости поглощения почвы. Увеличение концентрации почвенного гумуса и емкости поглощения почв снижают содержание обменной формы радиоактивного стронция, а, следовательно, и его миграционную способность.

СРАВНИТЕЛЬНЫЙ АНАЛИЗ ПОВЕДЕНИЯ РАДИОНУКЛИДОВ ЧЕРНОБЫЛЬСКОГО ВЫБРОСА И ГЛОБАЛЬНЫХ ВЫПАДЕНИЙ

До аварии ЧАЭС самым крупным источником радиоактивного загрязнения биосферы являлись глобальные стратосферные выпадения в результате испытаний ядерного оружия, изучению которых уделялось значительное внимание. Сопоставление состояний радионуклидов Чернобыльского выброса и глобальных выпадений необходимо для учета уже накопленного опыта при анализе поведения чернобыльских радионуклидов и решения практических задач хозяйственной деятельности и рационального природопользования в пострадавших регионах.

Характерной особенностью загрязнения окружающей среды при аварии ЧАЭС является изменение плотности загрязнения и радионуклидного состава в зависимости от направления и расстояния до источника загрязнения. Для глобальных выпадений эти показатели не характерны.

На основании анализа литературных данных и собственных исследований установлено, что, в отличие от продуктов глобальных выпадений, большая часть чернобыльских радионуклидов находится в "фиксированном" состоянии. Это происходит не за счет взаимодействия с природными составляющими почвенного комплекса, а вследствие пребывания в составе труднорастворимых активных частиц выпадений. Особенности чернобыльских радионуклидов связаны с присутствием в почвах значительного количества активных частиц, локализующихся в основном в приповерхностной области почвенного покрова и не отличающихся высокой мобильностью. По-видимому, этим объясняются большие эффективные периоды полувыведения радионуклидов чернобыльского выброса из пахотного (0-16 см) горизонта почв. По оценкам других авторов они достигают 17-23 лет (при интенсивной миграции - порядка 10 лет), тогда как для радионуклидов глобальных выпадений их величина составляет 8-14 лет.

Доля "горячих" частиц в активности гамма- и бета-излучения загрязненной радионуклидами почвы может меняться в зависимости от местоположения участка относительно ЧАЭС. На это указывает изменение соотношения форм радиоактивного стронция в поверхностных (0-1 см) слоях однотипных почв, а также уменьшение различий в соотношении форм радионуклида при переходе от поверхностной

области в массив почвенных профилей на полигонах дальней зоны по сравнению с полигонами, расположенными вблизи места аварии.

Разрушение со временем активных частиц под воздействием природных факторов приводит к уменьшению их размеров и увеличению миграционной способности в почве. Радионуклиды, выделяющиеся из активных частиц, либо (как радиоизотопы цезия) прочно связываются с компонентам почвенного комплекса, либо (как ^{90}Sr и ^{144}Ce) переходят в более мобильные формы, что также способствует увеличению их миграционных возможностей.

ВЫВОДЫ

1. Методами гамма-спектрометрии и радиохимического анализа установлен характер радиоактивного загрязнения и распределения радионуклидов по вертикальным профилям почв, распространенных в загрязненных районах республики. Показано, что основное количество радионуклидов локализовано в приповерхностной области почвенного покрова. За период 1987-1989 г.г. уровень загрязнения подстилающей поверхности снизился на 15-40 %, изменение содержания радионуклидов в верхних (0-5 см) слоях не превышало 15 %, а в нижележащих слоях - 2 % их общего количества в почвенных пробах.

2. В результате радиохимического исследования показано, что изотопы ^{134}Cs и ^{137}Cs находятся в почве преимущественно в "фиксированном" состоянии. Содержание радионуклидов в водорастворимой, обменной и подвижной формах в поверхностных (0-1 см) слоях необрабатываемых почв не превышает соответственно 1, 18 и 34 % от валового содержания в пробе. Характер соотношения исследованных форм нахождения радиоактивного цезия сохраняется во времени. Вертикальное перераспределение радиоизотопов цезия в почвах осуществляется в основном в "фиксированной" форме. В некоторых разновидностях почвенных профилей в заметной степени мигрируют изотопы цезия, связанные с почвой по механизму ионного обмена.

3. Обнаружено, что соотношение форм ^{90}Sr в почве определяется положением полигона относительно ЧАЭС. Вблизи места аварии (около 40 км) радиоактивный стронций находится преимущественно в обменном и "фиксированном" состояниях, причем содержание радионуклида в обменной форме со временем увеличивается. На расстоя-



252631

нии порядка 200-250 км от ЧАЭС обменная форма ^{90}Sr в почвах преобладает. Перераспределение изотопа ^{90}Sr по вертикальным почвенным профилям осуществляется в основном в обменной форме.

4. Во всех изученных разновидностях почв подвижность ^{90}Sr превосходит подвижность радиоактивных изотопов цезия. Об этом свидетельствует более высокое содержание ^{90}Sr в формах, связанных с почвой по механизму ионного обмена, и в составе водорастворимых комплексных соединений с компонентами фульвокислотных фракций гумусовых веществ, а также уменьшение с глубиной отношения $A^{137}\text{Cs} / A^{90}\text{Sr}$.

5. В результате сопоставления данных радиохимического определения форм нахождения радионуклидов в почве и рентгенографического исследования мелкодисперсных почвенных минералов установлено, что состояние радиоактивного цезия в значительной мере определяется структурой минералов илистой фракции.

Методом фракционирования почвенного гумуса показано, что соотношение форм нахождения радиоактивного стронция существенно зависит от содержания и состава органической части почвенного комплекса. С увеличением емкости поглощения почв доля радиоактивного стронция, связанного по механизму ионного обмена, уменьшается, снижая миграционную способность радионуклида.

6. Короткоживущие радионуклиды ^{106}Ru и ^{125}Sb находятся в почве преимущественно в прочносвязанном состоянии. Изменения соотношения их форм во времени не наблюдается. Среди форм нахождения ^{144}Ce преобладает подвижная (легкорастворимая) форма. Отмечается увеличение во времени доли подвижной формы радиоактивного цезия в почвах стационаров, расположенных вблизи ЧАЭС.

7. Особенности поведения продуктов черновобльских выпадений связаны со специфическим состоянием радионуклидов (часть которых находится в составе труднорастворимых активных частиц), что снижает их миграционную способность по сравнению с радионуклидами глобальных выпадений. Однако постепенное разрушение активных частиц под влиянием природных факторов приводит к увеличению миграционной способности как самих частиц, так и выделяющихся из них радионуклидов, переходящих в относительно подвижные формы.

Основное содержание диссертации изложено в следующих опуб

ликованных работах:

1. Петряев Е. П., Овсянникова С. В., Лобкина И. Я., Капацевич В. В., Соколик Г. А., Рубинчик С. Я. Формы нахождения радиоактивных изотопов цезия и стронция в почвах южных районов Белоруссии // Тез. докл. Республиканской научно-практической конференции по радиобиологии. - Минск, 1988. - С. 128.

2. Овсянникова С. В., Петряев Е. П., Соколик Г. А., Лобкина И. Я., Капацевич В. В., Рубинчик С. Я. Формы нахождения и вертикальная миграция радионуклидов чернобыльского выброса в почвах // Тез. докл. I Всесоюз. радиобиологического съезда. - Пущино, 1989. - Т. 2. - С. 489-490.

3. Петряев Е. П., Соколик Г. А., Овсянникова С. В., Лейнова С. Л., Иванова Т. Г. Особенности вертикальной миграции радионуклидов выброса ЧАЭС в почвах типичных ландшафтов загрязненной территории БССР // Принципы и методы ландшафтно-геохимических исследований миграции радионуклидов: Тез. докл. Всесоюз. совещ. - М., 1989. - С. 63.

4. Петряев Е. П., Овсянникова С. В., Лобкина И. Я., Рубинчик С. Я., Соколик Г. А. Экспериментальное исследование форм нахождения радионуклидов в почвах загрязненных районов Белоруссии // Там же. - С. 104.

5. Петряев Е. П., Овсянникова С. В., Соколик Г. А., Рубинчик С. Я., Лобкина И. Я. Изменение подвижности радионуклидов в период 1987-1988 г. г. на загрязненной территории БССР // В сб.: Атомные электрические станции (Чернобыль 1986-1988 г. г.). - Чернобыль, 1989.

6. Петряев Е. П., Овсянникова С. В., Лобкина И. Я., Рубинчик С. Я. Формы нахождения радионуклидов в почвах загрязненных районов Белоруссии // Изв. АН БССР. - Сер. физ.-энерг. наук. - 1990. - N 4. - С. 65-69.

7. Петряев Е. П., Овсянникова С. В., Лобкина И. Я., Соколик Г. А., Рубинчик С. Я. Изменение состояния радионуклидов на загрязненной территории БССР // Там же. - С. 78-83.

8. Петряев Е. П., Овсянникова С. В., Соколик Г. А., Рубинчик С. Я., Лобкина И. Я. Изучение миграционных форм радионуклидов в почвах методом последовательного селективного выщелачивания // Геохимические пути миграции радионуклидов в биосфере: Тез.

докл. Всесоюз. конф. Научного Совета при ГЕОХИ АН СССР по программе "АЭС-ВО". - Гомель, 1990. - С. 35.

9. Петряев Е. П., Овсянникова С. В., Соколик Г. А., Любкина И. Я., Мошнская С. В. Об изменении форм нахождения радионуклидов на загрязненной территории БССР // Там же. - С. 54.

10. Петряев Е. П., Овсянникова С. В., Кильчицкая С. Л., Любкина И. Я., Рубинчик С. Я., Соколик Г. А. Роль органического вещества почвы в миграции радионуклидов чернобыльского выброса // Там же. - С. 53.

11. Петряев Е. П., Овсянникова С. В., Соколик Г. А., Рубинчик С. Я., Любкина И. Я. Изменение форм радионуклидов на загрязненной территории БССР // Тез. докл. VI Научной конференции по аналитической химии Прибалтийских республик, Белорусской ССР и Калининградской области. - Рига, 1990. - С. 174.

12. Петряев Е. П., Овсянникова С. В., Лейнова С. Л., Любкина И. Я., Соколик Г. А. Состояние радионуклидов чернобыльских выпадений на территории Белоруссии // Тез. докл. Республиканской научно-практической конференции по радиобиологии и радиэкологии. - Минск, 1990. - С. 129.

13. Петряев Е. П., Овсянникова С. В., Любкина И. Я., Соколик Г. А., Рубинчик С. Я. Состояние радионуклидов чернобыльского выброса в почвах Белоруссии // Геохимия техногенеза: Тез. докл. II Всесоюзного совещания. - Минск, 1991. - С. 241-243.

14. Петряев Е. П., Овсянникова С. В., Любкина И. Я., Рубинчик С. Я., Соколик Г. А. Основные тенденции в изменении состояния радионуклидов в почвах Белоруссии после Чернобыльской аварии // Проблемы ликвидации последствий аварии на Чернобыльской АЭС в агропромышленном производстве - пять лет спустя: итоги, проблемы и перспективы: Тез. докл. Всесоюз. конф. - Обнинск, 1991. - Т. 2. - С. 39-40.

15. Петряев Е. П., Овсянникова С. В., Любкина И. Я., Рубинчик С. Я., Соколик Г. А. Соотношение подвижных форм радионуклидов в почвах Белоруссии после Чернобыльской аварии // Создание систем машин для районов, пострадавших в результате аварии на Чернобыльской АЭС: Тез. докл. Координационного совещания. - Минск, 1991. - С. 25-26.

16. Петряев Е. П., Соколик Г. А., Иванова Т. Г., Морозов

Т. К., Овсянникова С. В., Пищалов В. Н. Миграционные свойства радионуклидов выброса ЧАЭС в аграрно-экологическом аспекте // Изв. АН БССР. - Сер. физ.-энерг. наук. - 1991. - № 3. - С. 24-30.

17. Петряев Е. П., Соколик Г. А., Овсянникова С. В., Лейнова С. Л., Иванова Т. Г. Формы нахождения и миграции радионуклидов выброса Чернобыльской АЭС в типичных ландшафтах Белоруссии // Информ. бюл. Белорус. комитет МАБ. - Минск, 1991. - № 1. - С. 84-88.

18. Петряев Е. П., Овсянникова С. В., Любкина И. Я., Соколик Г. А., Неокладнова Л. Н. Основные способы вертикального переноса радионуклидов в почвенном профиле после Чернобыльской аварии // Геохимические пути миграции искусственных радионуклидов в биосфере : Тез. докл. V Всесоюз. конф. - Пушкино, 1991. - С. 58.

19. Петряев Е. П., Овсянникова С. В., Любкина И. Я., Соколик Г. А., Рубинчик С. Я. Изменение во времени состояния радионуклидов чернобыльских выпадений в почве // Там же. - С. 59.

20. Петряев Е. П., Овсянникова С. В., Рубинчик С. Я., Любкина И. Я., Соколик Г. А. Влияние компонентов почвенного комплекса на подвижность радионуклидов цезия и стронция в почве // Там же. - С. 60.

21. Петряев Е. П., Овсянникова С. В., Рубинчик С. Я., Любкина И. Я., Соколик Г. А. Состояние радионуклидов чернобыльских выпадений в почвах Белоруссии // Изв. АН БССР. - Сер. физ.-энерг. наук. - 1991. - № 4. - С. 48-55.

22. Petryaev E. P., Sokolik G. A., Ovsyannikova S. V., Leynova S. L., Ivanova T. G. Forms of Occurrence and Migration of Radionuclides from Chernobyl NPP Accident in Typical Landscapes of Byelorussia // Proc. of Seminar on Comparative Assessment of the Environmental Impact of Radionuclides Released during Three Major Nuclear Accident: Kyshtym, Windscale, Chernobyl. - Luxembourg, 1990. - Commission of the European Communities. - 1991. - EUR 13574. - P. 185-210.

23. Петряев Е. П., Овсянникова С. В., Соколик Г. А., Любкина И. Я., Рубинчик С. Я. Особенности состояния чернобыльских радионуклидов в белорусских почвах за пределами 30-километровой зоны // В сб. докл. III Научно-технического совещания-конференции по основным результатам ликвидации последствий аварии на ЧАЭС (итоги шестилетней работы). - Чернобыль, 1992.

25263-1



Бел. аддзел
604 Дугамат.

Бел. аддзел



00000004 16 1250

2

Подл. к печати 31.04.92. . Формат 60x84/16.
Объем 1,0 печ.л. Заказ № 534 . Тираж 100 экз.
Отпечатано на ротапринте Белгосуниверситета.
220080, г. Минск, Бобруйская, 7.