

✓
БЕЛОРУССКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ

УДК 543:546.798 + 631.41 (043)

**КИМЛЕНКО
ИРИНА МИХАЙЛОВНА**

**ОЦЕНКА СОСТОЯНИЯ И ПОДВИЖНОСТИ ПЛУТОНИЯ И
АМЕРИЦИЯ В ЗАГРЯЗНЕННЫХ РАДИОНУКЛИДАМИ ПОЧВАХ
РЕСПУБЛИКИ БЕЛАРУСЬ**

специальность 02.00.02 – аналитическая химия

**Автореферат диссертации
на соискание ученой степени кандидата химических наук**

Минск – 2004

Работа выполнена в Белорусском государственном университете

Научный руководитель – кандидат химических наук
Соколик Галина Андреевна,
Белорусский государственный университет,
НИИ радиохимии

Научный консультант – доктор химических наук, профессор
Лещев Сергей Михайлович,
Белорусский государственный университет,
кафедра аналитической химии

Официальные оппоненты: доктор химических наук, профессор
Давыдов Юрий Петрович,
Объединенный Институт ядерных и энергетических исследований НАН Беларуси, лаборатория состояния радионуклидов в объектах окружающей среды
кандидат химических наук, старший научный сотрудник Бондарь Юрий Иванович,
Полесский государственный радиационно-экологический заповедник

Оппонирующая организация **Институт почвоведения и агрохимии
НАН Беларуси**

Защита состоится “ 16 ” ноября 2004 года в 10.00 часов на заседании совета по защите диссертаций Д 02.01.09 при Белорусском государственном университете по адресу: 220050, г. Минск, ул. Бобруйская, 5а, зал заседаний Ученого совета (корпус ректората БГУ).

Телефон ученого секретаря 209-55-58.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке Белорусского государственного университета.

Автореферат разослан “ ___ ” октября 2004 года

Ученый секретарь
совета по защите диссертаций,
доктор химических наук, доцент



Е.А. Стрельцов

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность темы диссертации. Испытания ядерного оружия и аварии на атомных станциях, нарушения при хранении и транспортировке радиоактивных веществ привели к загрязнению окружающей среды трансурановыми элементами (ТУЭ). В общей системе мероприятий по охране биосферы одно из важных мест принадлежит разработке и усовершенствованию методов контроля, позволяющих надежно идентифицировать радионуклиды, определять опасные уровни их содержания в природных объектах и оценивать возможность перераспределения радиоактивных веществ по компонентам экосистем. В свою очередь, информация о состоянии радионуклидов в природных системах необходима для разработки надежных и экономичных способов регулирования их подвижности с целью защиты окружающей среды и создания барьеров на пути поступления радионуклидов в организм человека.

Поведение плутония и америция в различных природных системах исследуется во многих научно-исследовательских центрах. В СНГ лидирующие позиции в разработке методов анализа ТУЭ занимают Институт геохимии и аналитической химии им. В.И. Вернадского (Москва) и Радиевый институт им. В.Г. Хлюпина (Санкт-Петербург). К настоящему моменту разработаны различные подходы и методы контроля природных объектов в районах расположения испытательных ядерных полигонов, радиохимических комбинатов и атомных станций, находящихся за пределами Республики Беларусь. Решение проблемы загрязнения радионуклидами конкретных территорий открывает перспективы для разработки и усовершенствования методов определения и исследования поведения радионуклидов в природных объектах с учетом характеристик миграционной среды в районе загрязнения. С этой точки зрения, зона отчуждения Чернобыльской АЭС (ЧАЭС) и прилегающая к ней территория являются уникальным научно-исследовательским полигоном. После катастрофы на ЧАЭС первоочередные усилия были направлены на изучение перераспределения в окружающей среде ^{137}Cs и ^{90}Sr . Поведение ТУЭ в природных системах исследовали в значительно меньших масштабах, чем необходимо для надежной оценки радиологической ситуации и прогнозирования ее изменения. Актуальность исследований ТУЭ обусловлена необходимостью создания научной базы для решения практических задач по управлению пострадавшими регионами и оценки возможности хозяйственной деятельности в районах с различным уровнем и характером радиоактивного загрязнения.

Связь работы с крупными научными программами, темами. Диссертационная работа выполнялась в рамках НИР (№№ гос. рег. 19972534, 199814, 20013542, 20015277), входящих в Госпрограммы по минимизации и преодолению последствий катастрофы на ЧАЭС на пе-

риод 1996 – 2000 гг. и на период 2001 – 2005 гг., одобренных решениями Коллегии Кабинета Министров РБ 12.09.95 № 12 и Президиума Совета Министров РБ 09.01.01 № 1; проекта МАГАТЭ (ВУЕ/5/003, 1995 – 1996 гг.); НИР (№ гос. рег. 1997330), финансируемой Фондом фундаментальных исследований РБ (договор Ф-95-190 от 01.02.96); НИР (№ гос. рег. 200184), входящей в Межвузовскую программу «Воздействие», утвержденную Министерством Образования РБ 17.03.99; НИР (№ гос. рег. 20012828), входящей в Госпрограмму ориентированных фундаментальных исследований «Ионизирующие излучения», утвержденной Постановлением Президиума НАНБ 05.07.01 № 94.

Цель и задачи исследования. Цель работы заключается в получении систематизированной информации о формах нахождения плутония и америция в почвах, отличающихся по структуре сорбционного комплекса, для оценки миграционной способности радионуклидов и определения способов снижения их подвижности в почвенно-растительном комплексе в условиях Республики Беларусь.

В соответствии с поставленной целью решались задачи:

- Определить основные характеристики сорбционного комплекса почв, распространенных на территории Беларуси, пострадавшей в результате аварии на ЧАЭС;
- Оценить уровни загрязнения почв радионуклидами $^{239,240}\text{Pu}$ и ^{241}Am ;
- Определить содержание плутония и америция в составе групп соединений почвенного комплекса, отличающихся подвижностью и биологической доступностью;
- Установить закономерности распределения радионуклидов в системе «твердая фаза почвы – поровый раствор» в зависимости от структуры почвенного комплекса;
- Определить состояние плутония и америция в поровых растворах;
- Показать возможность использования модельной системы «почва – вода – карбоксильная смола» для оценки биологической доступности и прогнозирования изменения подвижности плутония и америция при изменении важнейших характеристик миграционной среды;
- Исследовать влияние состава сорбционного комплекса почв на миграционные свойства ТУЭ, предложить способы снижения подвижности плутония и америция в почвах разного типа.

Объект и предмет исследования. Объект исследования – образцы дерново-подзолистых песчаных и супесчаных, аллювиальных дерновых супесчаных, торфяно-болотных почв, отобранные на территории контрольных участков, расположенных в зоне загрязнения ТУЭ чернобыльского происхождения (Хойникский район Гомельской области).

Предмет исследования – количественная оценка показателей подвижности плутония и америция в почвах.

Методология и методы проведенного исследования. Выполненное исследование основано на анализе состояния и подвижности плутония и америция в реальных и модельных системах «твердая фаза почвы – почвенный раствор» в сочетании с оценкой характеристик сорбционного комплекса почв. При решении поставленных задач использован комплекс методов исследования, включающий: химические и физико-химические методы (радиохимический анализ для определения содержания плутония и америция в образцах, ионообменная и гель-хроматография, химическое фракционирование почвенных компонентов, высокоскоростное центрифугирование, мембранная фильтрация, спектрофотометрия); методы математической статистики.

Научная новизна и значимость полученных результатов. Новизна данной работы заключается в совершенствовании способа оценки состояния и подвижности плутония и америция в почвенной среде на основе комплексного анализа распределения ТУЭ в реальных и модельных системах «твердая фаза почвы – почвенный раствор» с использованием химических реагентов в сочетании, не описанном в литературе. В качестве экстрагента при оценке биологической доступности и прогнозировании изменения подвижности ТУЭ при изменении характеристик почвенной среды впервые предложена карбоксильная смола (КБ-4).

Получена информация о содержании плутония и америция в составе групп соединений почвенного комплекса, отличающихся подвижностью в почвенной среде и биологической доступностью растениям. Результаты работы расширяют существующие представления о роли почвенных соединений в перераспределении ТУЭ в почвах.

Впервые получена информация о содержании $^{239,240}\text{Pu}$ и ^{241}Am и их состоянии в поровых растворах почв, которые доминируют на территории Беларуси, пострадавшей в результате аварии на ЧАЭС.

Определены коэффициенты распределения плутония и америция в системе «твердая фаза – поровый раствор» для почв, отличающихся по структуре сорбционного комплекса, при варьировании степени их увлажнения от 60 до 100% относительно полной влагоемкости. На основе полученных данных изученные почвы дифференцированы в соответствии с сорбционной способностью по отношению к $^{239,240}\text{Pu}$ и ^{241}Am . Выявлены «критические» группы почв с повышенной миграционной способностью плутония и америция. Установлены факторы, способствующие закреплению ТУЭ в твердой фазе почвенного комплекса.

Практическая значимость полученных результатов. Усовершенствованный способ оценки миграционной способности радионуклидов в почвенной среде в совокупности с модифицированным методом анали-

тического определения плутония и америция в природных объектах позволили получить и систематизировать данные по коэффициентам распределения радионуклидов в системе «твердая фаза почвы – почвенный раствор». Эти данные используются РЦРКМ Департамента по гидрометеорологии Министерства природных ресурсов и охраны окружающей среды РБ для прогнозирования миграции радионуклидов в почвах сети ландшафтно-геохимических полигонов, входящих в состав Национальной системы мониторинга окружающей среды РБ.

Результаты работы включены в базу данных радиационного мониторинга и используются для совершенствования прогнозов радиэкологического состояния окружающей среды, проведения мероприятий по природопользованию в радиоактивно загрязненных районах Беларуси. Многообразие природных условий исследованного региона (Хойникский район) позволяет экстраполировать результаты работы на территории других стран с близкими характеристиками почвенного покрова.

Предложен способ снижения миграционной способности радионуклидов в почвенно-растительном покрове, заключающийся во внесении в дерново-подзолистые почвы торфяных добавок, в составе которых преобладают малорастворимые органические и органоминеральные соединения, связывающие плутоний и америций.

Основные положения диссертации, выносимые на защиту:

- Химико-аналитическое обоснование способа оценки состояния и подвижности плутония и америция в почвенной среде путем анализа распределения радионуклидов в реальных и модельных системах «твердая фаза почвы – почвенный раствор»;
- Экспериментальные данные по влиянию количественного и качественного состава органических компонентов почв на состояние и подвижность плутония и америция в почвенной среде;
- Установленные закономерности по влиянию состава сорбционного комплекса почв на распределение плутония и америция в системе «твердая фаза почвы – почвенный раствор»;
- Способ дифференцирования почв в соответствии с сорбционной способностью по отношению к плутонию и америцию на основе коэффициентов распределения $^{239,240}\text{Pu}$ и ^{241}Am в системе «твердая фаза почвы – почвенный раствор»;
- Метод изучения состояния ТУЭ в почвенных растворах с использованием мембранных фильтров в сочетании с ионообменной хроматографией, позволяющий разделять компоненты раствора по степени дисперсности и химической природе;
- Метод изучения состояния и миграционной способности ТУЭ в системе «почва – растение» с использованием комплексообразующей катионообменной смолы, позволяющий прогнозировать биологическую

доступность и изменение подвижности ТУЭ при изменении характеристик почвенной среды.

Личный вклад соискателя. Участие автора в исследованиях, результаты которых включены в диссертацию, состояло в непосредственном планировании и проведении эксперимента, обработке и обсуждении полученных экспериментальных данных, подготовке материалов к опубликованию и представлению на научных конференциях.

Автор благодарит Соколик Г.А., Лещева С.М., Овсянникову С.В. и всех сотрудников НИИ радиохимии за сотрудничество, помощь и поддержку в ходе выполнения работы.

Апробация результатов диссертации. Результаты диссертации докладывались на Международных научных конференциях: “Экологический статус загрязненных радионуклидами территорий”, “Десять лет после Чернобыльской катастрофы”, “Фундаментальные и прикладные аспекты радиобиологии” “Озерные экосистемы, качество воды” (Минск, 1995, 1996, 1998, 2003); “Радиоактивность при ядерных взрывах и авариях” (Москва, 2000); “Биосфера и человечество” (Обнинск, 2000); “Пятнадцать лет Чернобыльской катастрофы” (Киев, 2001); III и IV Съездах по радиационным исследованиям (Пупчино, 1997; Москва, 2001); XIII Конференции по радиохимии (Прага, 1998); Конгрессе по радиоэкологии и экотоксикологии окружающей среды (Экс-Прованс, Франция, 2001); Конференции по радиоактивности в окружающей среде (Монако, 2002); VI Симпозиуме по загрязнению окружающей среды в Центральной и Восточной Европе и СНГ (Прага, 2003).

Опубликованность результатов. Основные результаты диссертации представлены в 15 статьях, опубликованных в научных журналах, из них 3 – в международных; 9 публикациях в сборниках материалов научных конференций; 6 тезисах докладов научных конференций. Общий объем публикаций составляет 153 страницы.

Структура и объем диссертации. Диссертационная работа состоит из введения, общей характеристики работы, 6 глав, заключения, списка использованных источников из 233 наименований, 5 приложений. Объем диссертации составляет 147 страниц, включая 33 таблицы (24 стр.), 18 рисунков (10 стр.), список использованных источников (18 стр.).

ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

В первой главе анализируются литературные данные о состоянии и поведении ТУЭ в окружающей среде. Рассмотрены особенности чернобыльских выпадений, совокупность применяемых методов определения ТУЭ в природных объектах, подходы к исследованию органических компонентов почв и их влияния на поведение ТУЭ в почвенной среде, количественные параметры, используемые для оценки подвижности радионуклидов. Обобщены данные по методам получения и составу поч-

венных растворов, состоянию ТУЭ в природных водах. Отмечена ограниченность информации о закономерностях распределения ТУЭ в системе «твердая фаза почвы — почвенный раствор» и состоянию радионуклидов в почвенных растворах.

Во второй главе обоснован способ оценки состояния и подвижности ТУЭ в почвенной среде путем анализа распределения радионуклидов в реальных и модельных системах «твердая фаза почвы — почвенный раствор» и описаны методики эксперимента.

Отбор почвенных и растительных образцов и определение характеристик сорбционного комплекса почв проводили в соответствии с общепринятыми методиками. Содержание плутония и америция в образцах определяли модифицированным в данной работе методом радиохимического анализа, разработанным ГЕОХИ им. В.И. Вернадского. Радионуклиды идентифицировали с помощью спектрометра АГРНА KING 676А. При изучении форм нахождения ТУЭ в почвах в качестве экстрагентов использовали 1 моль/л растворы хлорида калия, ацетата аммония, соляной кислоты и карбоксильную смолу КБ-4. Распределение ТУЭ по органическим фракциям почв исследовали с применением метода химического фракционирования органических компонентов (ОК) И.В. Тюрина в модификации В.В. Пономаревой — Г.А. Плотниковой. Молекулярно-массовый состав ОК почв и почвенных растворов изучали методом гель-хроматографии. Почвенные растворы выделяли методом высокоскоростного центрифугирования. При изучении состояния ТУЭ методы мембранной фильтрации и ионообменной хроматографии были адаптированы к почвенным растворам.

В третьей главе дана характеристика объектов исследования и приведены результаты определения уровней радиоактивного загрязнения исследованных почв по $^{239,240}\text{Pu}$ и ^{241}Am на территории $51^{\circ}\text{--}52^{\circ}$ с. ш., $29^{\circ}\text{--}30^{\circ}$ в. д. Установлено, что запас $^{239,240}\text{Pu}$ и ^{241}Am в почвенно-растительном покрове в радиусе 20-50 км от ЧАЭС составляет $1,0\text{--}7,6$ кБк/м². Определены основные показатели сорбционного комплекса радиоактивно загрязненных почв. Показано, что дерново-подзолистые песчаные почвы характеризуются наименьшей сорбционной емкостью: емкость катионного обмена (ЕКО) составляет 20-55 ммоль/кг, содержание ОК — 0,8-1,4%. Торфяно-болотные и торфяно-глеевые почвы характеризуются наибольшей сорбционной емкостью: ЕКО — 640-1040 ммоль/кг, содержание ОК — 35-50%. Дерново-подзолистые супесчаные, аллювиальные дерновые супесчаные и торфянистые почвы по сорбционным свойствам занимают промежуточное положение. Кислотность почв (pH_{KCl}) варьирует в интервале 3,9-6,3. Определены характеристики поровых растворов, выделенных из почв при варьировании степени их увлажнения от 60 до 100% от полной вла-

гоемкости (рН 3,4-7,0; $[K^+]$ — 2-150 мг/л, $[Ca^{2+}]$ — 2-520 мг/л, $[Mg^{2+}]$ — < 0,4-110 мг/л, $[Fe^{2+,3+}]$ — 1-80 мг/л, $[OK]$ — 3-2000 мг/л).

Установлен молекулярно-массовый состав органического вещества почв и почвенных растворов, соотношение фульвокислотных (ФК) и гуминовокислотных (ГК) составляющих, отличающихся по структуре и подвижности в почвенной среде. Сопоставлено относительное содержание в почвах наиболее мобильных фракций ФК₁, компоненты которых в основном представляют органическую часть почвенных растворов. В соответствии с уменьшением относительного содержания фракций ФК₁ почвы располагаются следующим образом: дерново-подзолистая песчаная (29%) > дерново-подзолистая супесчаная (15%) > аллювиальная дерновая супесчаная (13%) > торфяно-глебовая (9,5%) > торфянистая (6,1%). Установлено, что молекулярная масса (ММ) гумусовых веществ почв изменяется от $\leq 1\ 000$ до $\geq 150\ 000$ атомных единиц массы (а.е.м.), наблюдается значительный разброс в соотношении отдельных фракций гумусовых веществ в почвах разного типа. Показано, что в составе почвенных растворов преобладают ФК с ММ ≤ 1000 и ГК с ММ $\sim 2\ 400$ а.е.м. Обнаружено присутствие в почвенных растворах железо-органических комплексов разного состава и заряда.

В четвертой главе приведены установленные методом избирательного экстрагирования результаты определения содержания плутония и америция в составе групп природных соединений, отличающихся по степени закрепления в почве, подвижности и биологической доступности. Химические формы радионуклидов, сорбированные твердой фазой почвы по механизму ионного обмена, а также входящие в состав водорастворимых органоминеральных комплексов, относят к обменным формам. Они характеризуются максимальной миграционной способностью в почвенной среде. Показано, что наиболее подвижные соединения плутония и америция представляют собой преимущественно комплексные соединения радионуклидов с низкомолекулярными составляющими ФК и ГК фракций органического вещества почв.

Установлено, что основная часть плутония и америция (до 93%) находится в почвах в малоподвижном состоянии, а их содержание в обменных формах не превышает 7%. При этом америций обладает большей подвижностью, чем плутоний (содержание в обменной форме ^{241}Am составляет 0,4-7,0%; $^{239,240}Pu$ — 0,5-4,6 %). Показано, что, начиная с 1992 г., запас радионуклидов в обменных формах в исследованных почвах с течением времени практически не изменялся. В соответствии с уменьшением содержания плутония и америция в обменных формах почвы располагаются следующим образом: дерново-подзолистая песчаная (3,9-7,0%) \geq дерново-подзолистая супесчаная (3,7-5,8%) > аллювиальная дерновая супесчаная (2,9-5,0%) > торфяни-

стая (0,6–2,8%) ≥ торфяно-глеевая (0,4–0,7%). Подобное расположение почв в соответствии с уменьшением содержания фракций ФК₁ указывает, что компоненты этой фракции оказывают существенное влияние на формирование мобильных комплексов ТУЭ в почвах.

Установлено, что органическим компонентам принадлежит определяющая роль в закреплении плутония и америция в почве. Основная часть ^{239,240}Pu и ²⁴¹Am (до 80%) находится в составе высокомолекулярных фракций гумусовых веществ, связанных посредством Ca, Mg, Fe и Al с глинистыми минералами почв. Показано, что в дерново-подзолистой песчаной почве доля ^{239,240}Pu и ²⁴¹Am в мобильной ФК₁ фракции (6,5 и 18% соответственно) превышает долю радионуклидов в соответствующей фракции торфяно-глеевой почвы (1,1 и 2,8%). Величины отношений между относительными количествами ^{239,240}Pu и ²⁴¹Am в органических фракциях указывают на большую способность ГК связывать плутоний (Pu/Am > 1), а ФК – америций (Pu/Am < 1).

В пятой главе рассмотрены закономерности распределения ТУЭ в системе “твердая фаза почвы – почвенный поровый раствор”

Установлено, что в поровых растворах всех исследованных типов почв присутствует лишь незначительная часть плутония и америция по сравнению с их общим содержанием в почвах (от 0,03 до 1,2%, составляя в среднем 0,3%). Показано, что содержание ^{239,240}Pu и ²⁴¹Am в поровых растворах почв варьирует в широких пределах: от 0,007 до 0,88 Бк/л для ^{239,240}Pu и от 0,013 до 1,0 Бк/л для ²⁴¹Am (табл. 1).

Таблица 1

Содержание ТУЭ в почвах (A_n) и почвенных растворах ($A_{пр}$) на разной глубине почвенного профиля (h , см)

Тип почвы	h, см	A_n , Бк/кг	A_n , % ¹	$A_{пр}$, Бк/л	$A_{пр}$, % ²
Дерново-подзолистая песчаная	0-5	70 – 80	95 ± 1	0,54 – 0,88	95 ± 1
	5-10	3 – 5	3,5 ± 0,5	0,02 – 0,06	4,0 ± 1,0
	10-15	0,5 – 1,0	1,5 ± 0,5	0,007–0,014	1,0 ± 0,5
Аллювиальная дерновая супесчаная	0-5	120 – 130	85 ± 7	0,14 – 0,17	79 ± 9
	5-10	4,5 – 13	12 ± 5	0,03 – 0,13	16 ± 7
	10-15	2,0 – 2,5	3,0 ± 1,0	0,01 – 0,03	5,0 ± 1,0
Торфяно-глеевая	0-5	230 – 260	96 ± 1	0,64 – 1,0	97 ± 1
	5-10	6,5 – 7,5	2,5 ± 0,5	0,03 – 0,04	2,0 ± 1,0
	10-15	1,8 – 2,2	1,5 ± 0,5	0,009 – 0,013	1,0 ± 0,5

Примечания:

1 - % от содержания в (0-15)-см слое почвы;

2 - % от содержания в почвенном поровом растворе (0-15)-см слоя почвы.

Установлено, что основная часть ТУЭ находится в верхних (0-5)-см слоях почвенных профилей. Корреляция между относительным содержанием ТУЭ в почве и почвенном растворе в профиле почвы одного типа указывает на важную роль почвенных растворов в миграции ТУЭ. Показано, что чем выше в почвах содержание плутония и америция в обменных формах, тем больше содержится радионуклидов в поровых растворах. Подобная зависимость указывает на возможность дополнительного перехода в почвенный раствор элементов, адсорбированных на поверхности частиц почвы, при изменении характеристик среды.

Важным параметром, характеризующим сорбционную способность почв по отношению к радионуклиду и подвижность элемента в почвенной среде, является коэффициент распределения (K_d). Он представляет собой отношение между равновесными концентрациями радионуклида в твердой фазе и почвенном растворе (фактически — отношение между удельными активностями твердой почвенной фазы и почвенного раствора). Более высокие K_d соответствуют более высокой сорбционной емкости твердой фазы почвы по отношению к радионуклиду и более низкой способности радионуклида переходить в почвенный раствор. Величины K_d для изученных почв варьируют в широких пределах (от 90 до 3500 л/кг для $^{239,240}\text{Pu}$ и от 60 до 3000 л/кг для ^{241}Am) и свидетельствуют о большей способности плутония сорбироваться твердой фазой почв по сравнению с америцием (рис. 1).

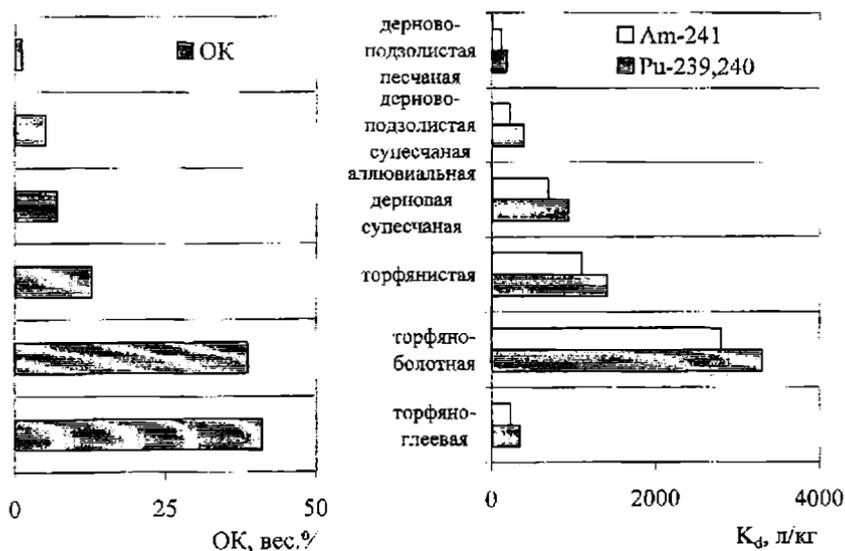


Рис. 1. Содержание органических компонентов (OK) в почвах и коэффициенты распределения $^{239,240}\text{Pu}$ и ^{241}Am (K_d)

Из полученных результатов следует, что почвы с более высоким содержанием органических компонентов, как правило, характеризуются более высокими K_d , т.е. большей сорбционной емкостью по отношению к радионуклидам. Самой низкой сорбционной способностью характеризуются дерново-подзолистые песчаные почвы (K_d в среднем составляет 180 л/кг для $^{239,240}\text{Pu}$ и 110 л/кг для ^{241}Am). В отдельных разновидностях торфяно-болотных почв при одинаковом общем содержании органического вещества K_d отличаются более чем на порядок, что, вероятно, связано с разным качественным составом органических компонентов.

Выявлена связь между коэффициентом K_d радионуклидов и отношением концентрации железа к концентрации органических компонентов в поровом растворе почв (R^2 варьирует в интервале 0,72 – 0,76), что указывает на возможность включения плутония и америция в состав железо-органических комплексов.

Установлено, что с увеличением степени увлажнения почв коэффициент K_d для плутония и америция уменьшается (рис. 2), что может быть обусловлено соответствующим увеличением концентрации органических комплексов железа в почвенном растворе.

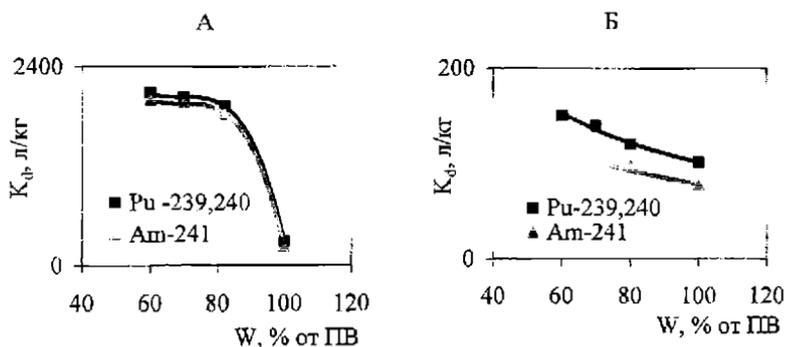


Рис. 2. Зависимость коэффициентов распределения ТУЭ (K_d) от степени увлажнения почвы (W , % от полной влагоемкости):
А – торфяно-глеевая; Б – дерново-подзолистая песчаная

Показано, что для плутония и америция K_d уменьшается при снижении $\text{pH}_{\text{КС}}$. Скорее всего, это связано с уменьшением стабильности органоминеральных комплексов, включающих в свой состав ТУЭ, при увеличении кислотности почвенной среды.

Методами статистического анализа показано, что относительное содержание ТУЭ в почвенном растворе зависит от совокупности следующих характеристик раствора: pH , концентрации органических ком-

понентов, кальция, калия и железа ($R^2 = 0,62 - 0,80$). При этом наиболее значимо влияние органических компонентов: чем выше концентрация ОК, тем больше содержание ТУЭ в растворе. Коэффициент K_d зависит от совокупности тех же свойств почвенного раствора ($R^2 = 0,65 - 0,74$) и среди них наиболее значимо влияние кальция: чем больше его концентрация в растворе, тем выше K_d .

Результаты исследования состояния радионуклидов указывают на существование в почвенных растворах химических форм плутония и америция, отличающихся по степени дисперсности и заряду, а значит, по миграционной способности и биологической доступности растениям. Установлено, что в изученных растворах в составе частиц размером 50–450 нм находится от 2 до 24 % $^{239,240}\text{Pu}$ и ^{241}Am относительно их содержания в почвенном растворе. Показано, что в почвенных водах, включающих частицы размером < 50 нм, ТУЭ в основном входят в состав анионных и нейтральных комплексов, что также характерно и для железа (табл. 2).

Таблица 2

Относительное содержание в почвенных растворах Pu , Am и Fe в составе катионных (+), анионных (–) и нейтральных (0) комплексов

Тип почвы	Элемент	(+)	(–)	(0)
		% от содержания в почвенном растворе (< 50 нм)		
Дерново-подзолистая песчаная	Pu	21	33	46
	Am	11	59	30
	Fe	47	36	17
Дерново-подзолистая супесчаная	Pu	27	6	67
	Am	31	17	52
	Fe	30	6	64
Торфянистая	Pu	52	37	11
	Am	51	41	8
	Fe	26	25	49
Торфяно-болотная	Pu	22	9	69
	Am	26	28	46
	Fe	44	9	47

В шестой главе представлены результаты исследования состояния ТУЭ в почвах с использованием карбоксильной смолы КБ-4, которая представляет собой монофункциональный комплексообразующий катионит. Активными центрами смолы являются две рядом расположенные карбоксильные группы. Взаимодействие почвы со смолой в водной среде при pH 7 подобно процессу, происходящему на границе почва – корневая система растения. По мере поглощения растением элементов из почвенного раствора нарушается равновесие между раствором и поверхностью почвенных частиц. В результате, дополнительное количество потенциально подвижных форм элементов, адсорбированных на поверхности почвенных частиц, переходит в раствор и становится реально подвижным. В присутствии смолы помимо комплексных соединений ТУЭ с низкомолекулярными органическими компонентами, обычно обнаруживаемых в почвенных растворах, из почвы в водную фазу переходят ТУЭ, входящие в состав гумусовых соединений Са и Mg. Смола разрушает связь последних с минеральными компонентами почвы. Условия, способствующие переходу в раствор гумусовых соединений Са и Mg, могут быть реализованы в почве в области корневого питания растений, где кислотность среды повышена. Это дает основание использовать систему «почва – вода – карбоксильная смола» в качестве модельной, имитирующей систему «твердая фаза почвы – почвенный раствор – растение». Модельная система «почва – вода – смола» апробирована при изучении состояния ТУЭ в почвах, отличающихся по структуре сорбционного комплекса.

Кинетические исследования десорбции ТУЭ из почвы в раствор показывают, что в состоянии равновесия модельной системы в присутствии смолы в водную фазу переходит до 40% содержащихся в почвах ТУЭ. Показано, что в растворе, несмотря на преобладание ФК компонентов, ТУЭ содержатся преимущественно во фракции ГК.

Установлено, что содержание ТУЭ и ОК в растворах модельных систем «почва – вода – смола» линейно связаны (рис.3). Из полученных зависимостей следует, что при отсутствии органических компонентов в растворе ($[ОК] \rightarrow 0$) из дерновой почвы плутоний и америций практически не переходят в раствор. В системе с дерново-подзолистой почвой даже при отсутствии органических компонентов в растворе содержание в нем ТУЭ не снижается до нуля. Это является следствием существенных отличий качественного состава органических компонентов и состояния радионуклидов в почвах. Показано, что в дерновой почве гумусовые вещества, связанные с минеральной частью почвенного комплекса посредством Са и Mg, составляют около 10% от общего содержания ОК почвы, а в дерново-подзолистой — менее 0,1%.

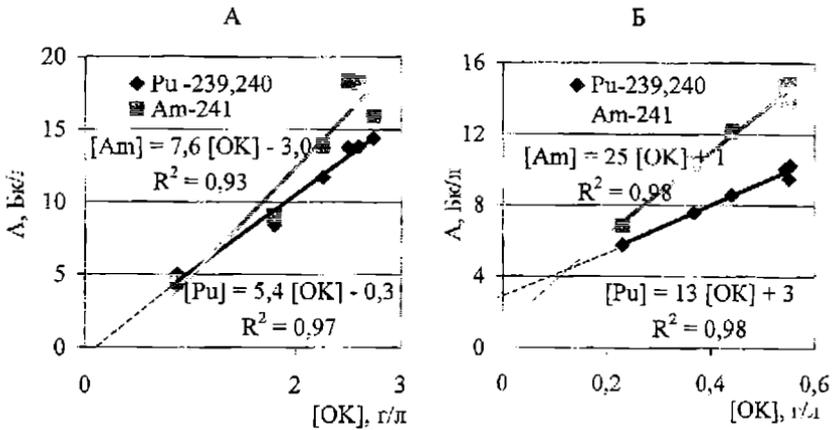


Рис. 3. Зависимость содержания ТУЭ в водной фазе системы «почва – вода – смола» (А) от концентрации ОК в растворе ([OK]): А – аллювиальная дерновая супесчаная; Б – дерново-подзолистая песчаная

Характер изотерм сорбции плутония и америция на смоле также свидетельствует о заметных отличиях в состоянии ТУЭ в почвах в зависимости от состава органических компонентов. По-видимому, при содержании в почве $OK \geq 7\%$ плутоний и америций присутствуют в почвенном растворе в составе органоминеральных комплексов на основе железа, ФК и ГК. При содержании в почве $OK \leq 1\%$ значительно увеличивается вероятность протекания процессов гидролиза соединений ТУЭ в растворе, и, наряду с существованием органических комплексов плутония и америция, в растворе могут присутствовать продукты гидролиза их соединений. Отличия в состоянии ТУЭ обуславливают неодинаковую подвижность и биологическую доступность элементов в почвах.

Данные по распределению плутония и америция в системе «почва – вода – карбоксильная смола» сопоставлены с результатами исследования реальных систем «твердая фаза почвы – почвенный раствор – растение». Показано, что величины коэффициентов накопления $^{239,240}\text{Pu}$ и ^{241}Am растениями луговой злаково-осоковой ассоциации, произрастающими на изученных почвах в природных условиях, и карбоксильной смолой на начальном этапе модельного эксперимента ($t = 1$ сутки) одного порядка (табл.3). Это означает, что смола может быть использована для оценки запаса биологически доступных соединений радионуклидов в почве.

Коэффициенты накопления ТУЭ смолой (K_n) в модельной системе и растительной биомассой (K_n') в природных условиях

Тип почвы	K_n (смола)		K_n' (растительность)	
	$^{239,240}\text{Pu}$	^{241}Am	$^{239,240}\text{Pu}$	^{241}Am
Аллювиальная дерново-песчаная	0,005	0,032	$0,009 \pm 0,001$	$0,020 \pm 0,001$
Дерново-подзолистая песчаная	0,040	0,060	$0,030 \pm 0,005$	$0,050 \pm 0,010$

Метод с использованием смолы КБ-4 предложен в качестве альтернативы методу селективного экстрагирования растворами кислот, традиционно применяемому для оценки запаса в почве потенциально подвижных и биологически доступных соединений радионуклидов. Показано, что, количество ТУЭ, извлекаемых из почвы раствором 1 моль/л HCl и КБ-4, сопоставимо (рис. 4). Больше извлечение америция раствором кислоты по сравнению с карбоксильной смолой, вероятно, связано с разрушением его соединений, неустойчивых в кислотной среде, а меньшее извлечение плутония – его более высокой склонностью к образованию комплексных соединений со смолой.

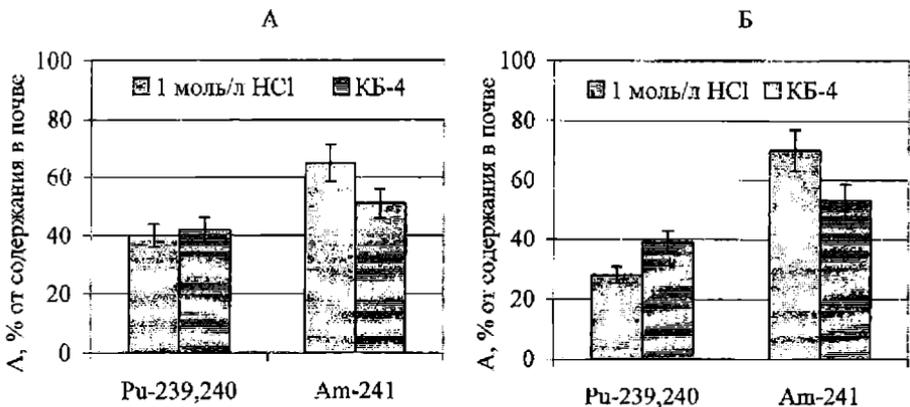


Рис. 4. Степень извлечения $^{239,240}\text{Pu}$ и ^{241}Am из почв КБ-4 и 1 моль/л HCl: А – аллювиальная дерновая супесчаная; Б – дерново-подзолистая песчаная

Таким образом, метод на основе комплексообразующей катионообменной смолы так же, как и метод селективного экстрагирования кислотными реагентами, позволяет оценивать количество биологически доступных растениям соединений элементов и прогнозировать измене-

ние подвижности радионуклидов при увеличении кислотности почвенной среды (выпадение кислотных дождей, внесение некоторых мелиорантов и т.д.). При этом, если традиционно применяемые для оценки запаса биологически доступных соединений радионуклидов кислотные реагенты значительно изменяют рН почвы и могут разрушать многие органоминеральные и минеральные компоненты, то карбоксильная смола существенно не изменяет рН среды. Условия проведения модельного эксперимента были максимально приближены к природным. Кроме того, в отличие от кислотного экстрагирования использование карбоксильной смолы позволяет получать информацию о состоянии радионуклидов в почвах и почвенных растворах.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Основные выводы настоящей работы сводятся к следующему:

1. Усовершенствованы методика аналитического определения плутония и америция в природных объектах и способ оценки состояния и подвижности радионуклидов в почвенной среде на основе комплексного анализа распределения элементов в реальных системах «твердая фаза почвы — почвенный раствор» и в модельных системах с использованием растворов экстрагентов и ионообменных смол. Модифицированные методики апробированы на загрязненных в результате аварии на ЧАЭС образцах почв, сорбционные свойства которых изменяются в широком диапазоне [1, 5-8].
2. Показано, что основная часть плутония и америция находится в почвах в малоподвижном состоянии, органическим компонентам принадлежит определяющая роль в их закреплении. Установлено, что америций более подвижен, чем плутоний, что может быть обусловлено более высокой склонностью америция к образованию соединений с низкомолекулярными фульвокислотами, а плутония — с высокомолекулярными гуминовыми кислотами. Низкая интенсивность процессов геохимической и биологической миграции плутония и америция обусловлена, в частности, невысоким содержанием радионуклидов в почвенных растворах, не превышающим десятых долей процента от общего количества каждого элемента в почве [1-9, 16-18, 25-30].
3. Впервые показано, что модельная система «почва — вода — карбоксильная смола» может быть использована для изучения состояния и миграционной способности трансурановых элементов и других тяжелых металлов в почве и системе «почва-растение», а также для прогнозирования изменения подвижности элементов при изменении характеристик почвенной среды, обусловленном вмешательством человека и неблагоприятными экологическими факторами [14, 15].

4. Предложен и апробирован метод изучения состояния плутония и америция в почвенных растворах, позволяющий разделять компоненты раствора по степени дисперсности и химической природе, с помощью мембранных фильтров в сочетании с ионообменной хроматографией. Показано, что миграционная способность плутония и америция в почве зависит от характера распределения радионуклидов по отличающимся степенью дисперсности компонентам почвенного раствора и от содержания в почвенном растворе катионных, анионных и электронейтральных железо-органических комплексов, включающих в свой состав трансурановые элементы [12, 13].

5. Впервые для условий Беларуси установлены коэффициенты распределения плутония и америция в системе «твердая фаза – поровый раствор почвы», являющиеся мерой сорбционной способности почв по отношению к радионуклидам. На основе полученных коэффициентов распределения почвы дифференцированы в соответствии с миграционной способностью плутония и америция: *дерново-подзолистые песчаные* \geq *дерново-подзолистые супесчаные* $>$ *торфяно-глеевые* $>$ *аллювиальные дерновые супесчаные* \geq *минерализованные торфянистые* $>>$ *торфяно-болотные* [10, 11, 21, 23].

6. Полученные результаты позволяют прогнозировать отсутствие в ближайшие десятилетия значительных изменений в состоянии, подвижности и биологической доступности плутония и америция в природных комплексах Беларуси. Вместе с тем, в периоды дождей и паводков следует ожидать увеличения подвижности и биологической доступности радионуклидов. Показано, что кислые дерново-подзолистые и торфяно-глеевые почвы отличаются повышенной миграционной способностью плутония и америция по сравнению с другими типами почв и составляют критическую группу. Предложен простой, экономичный, экологически безопасный способ снижения миграционной способности радионуклидов в почвенной среде [2, 8, 19, 20, 22, 24].

**СПИСОК РАБОТ, ОПУБЛИКОВАННЫХ
ПО ТЕМЕ ДИССЕРТАЦИИ
СТАТЬИ**

1. Овсянникова С.В., Соколик Г.А., Эймонт Е.А., Кильчицкая С.Л., Жукович Н.В., Кимленко И.М., Рубинчик С.Я. Содержание Cs-137, Sr-90, Pu-239, 240, Am-241 в почвенной влаге как критерий подвижности радионуклидов // Доклады НАН Беларуси. — 1998. — Т. 42, № 3. — С. 109-116.
2. Соколик Г.А., Овсянникова С.В., Кильчицкая С.Л. Кудельский А.В., Эйсмонт Е.А., Кимленко И.М. Влияние влажности почв на поступление радионуклидов в почвенные растворы // Доклады НАН Беларуси. — 1999. — Т. 43, № 4. — С. 87-91.
3. Соколик Г.А., Овсянникова С.В., Кильчицкая С.Л., Эйсмонт Е.А., Жукович Н.В., Кимленко И.М., Дуксина В.В., Рубинчик С.Я. Миграция ^{137}Cs , ^{90}Sr , $^{239,240}\text{Pu}$ и ^{241}Am в системе "почва - почвенный раствор - растение" Звено "почва - почвенный раствор" // Доклады НАН Беларуси. — 1999. — Т. 43, № 2. — С. 103-109.
4. Овсянникова С.В., Соколик Г.А., Эйсмонт Е.А., Кильчицкая С.Л., Кимленко И.М. Жукович Н.В., Рубинчик С.Я. Почвенные поровые растворы в процессах миграции ^{137}Cs , ^{90}Sr , $^{239,240}\text{Pu}$ и ^{241}Am // Геохимия. — 2000. — № 1. — С. 222-234.
5. Соколик Г.А., Лейнова С.Л., Иванова Т.Г., Жукович Н.В., Овсянникова С.В., Кимленко И.М., Дуксина В.В. Физико-химическое состояние трансурановых элементов в почвенно-растительном покрове и возможность их накопления в организме человека // Вести НАН Беларуси. Сер. биол. наук. — 2000. — № 1. — С. 77-82.
6. Соколик Г.А., Кильчицкая С.Л., Иванова Т.Г., Лейнова С.Л., Жукович Н.В., Кимленко И.М. Оценка биологической доступности плутония и америция чернобыльского выброса // Вести НАН Беларуси. Сер. физ.-тсх. наук. — 2000. — № 1. — С. 142-148.
7. Соколик Г.А., Овсянникова С.В., Кимленко И.М. Влияние органических компонентов почв на подвижность плутония и америция Доклады НАН Беларуси. — 2001. — Т. 45, №1. — С.107-112.
8. Sokolik G.A., Ivanova T.G., Leinova S.L., Ovsiannikova S.V., Kimlenko I.M. Migration ability of radionuclides in soil-vegetation cover of Belarus after Chernobyl accident // Environment International. 2001. — Vol. 26, № 3. — P. 183-187.
9. Sokolik G., Ovsiannikova S., Kimlenko I. Soil organic matter and migration properties of $^{239, 240}\text{Pu}$ and ^{241}Am // Radioprotection-Colloques. — 2002. — Vol. 37, C1. — P 283-288.
10. Sokolik G., Ovsiannikova S., Kimlenko I. Distribution and mobility of ^{137}Cs , ^{90}Sr , $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{241}Am in solid phase-interstitial soil solution sys-

- tem // Radioprotection-Colloques. — 2002. — Vol. 37, C1. — P 259-264.
11. Соколик Г.А., Кимленко И.М., Овсянникова С.В. Миграционные свойства $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{241}Am в почвах с различным сорбционным комплексом // Вести НАН Беларуси. Сер. биол. наук. — 2002. — № 4. — С. 74-77.
 12. Соколик Г.А., Овсянникова С.В., Кимленко И.М. Органические компоненты и состояние плутония и америция в почвах и почвенных растворах // Доклады НАН Беларуси. — 2002. — Т. 46, № 3. С. 111-116.
 13. Соколик Г.А., Овсянникова С.В., Кимленко И.М. Влияние органических компонентов на состояние плутония и америция в почвах и почвенных растворах // Радиохимия. — 2003. — Т. 45, № 2. — С. 160-164.
 14. Соколик Г.А., Овсянникова С.В., Кимленко И.М. Поведение плутония и америция в системе «почва – вода – карбоксильная смола» // Доклады НАН Беларуси. — 2003. — Т. 47, № 3. — С. 74-77.
 15. Соколик Г.А., Овсянникова С.В., Кимленко И.М. Распределение Pu и Am в системе «почва – вода – карбоксильная смола» // Радиохимия. — 2004. — Т. 46, № 1. — С. 84-86.

МАТЕРИАЛЫ КОНФЕРЕНЦИЙ

16. Соколик Г.А., Овсянникова С.В., Лейнова С.Л., Иванова Т.Г., Кимленко И.М. Захаренков В.В. Состояние и подвижность плутония и америция в почвенно-растительном покрове загрязненных территорий Беларуси // Радиоактивность при ядерных взрывах и авариях: Труды Межд. конф.: В 2 т. / Ин-т глоб. климата и экологии. — СПб., 2000. — Т.2. — С.107-113.
17. Кимленко И.М. Подвижность плутония и америция в почвенных средах разного состава // Биосфера и человечество: Мат-лы конф., посвященной 100-летию со дня рождения Н.В. Тимофеева-Ресовского. — Обнинск, 2000. — С.167-171.
18. Соколик Г.А., Овсянникова С.В. Кимленко И.М., Захаренкова Н.В. Роль почвенных поровых растворов в накоплении плутония и америция растительностью естественных и аграрных экосистем // Современные проблемы радиозкологии: Сб. мат-лов науч.- практ. конф. / НАНБ. Ин-т радиобиологии. — Минск, 2002. — С. 114-117.
19. Соколик Г.А., Иванова Т.Г., Лейнова С.Л., Захаренкова Н.В., Кимленко И.М., Захаренков В.В. Поведение плутония и америция в почвенно-растительном покрове южных районов Беларуси // Современные проблемы радиозкологии: Сб. материалов науч.-практ. конф. / НАНБ. Ин-т радиобиологии. — Минск, 2002. — С. 117-119.

20. Sokolik G.A., Ovsiannikova S.V., Kimlenka I.M., Leinova S.L., Ivanova T.G., Zaharenkov V.V. Change of plutonium and americium mobility in natural and agrarian ecosystem // Radioactivity in the Environment: Proceed. of Int. Conf. / Int. Union of Radioecology, IAEA. — Monaco, 2002. — P.1-4.
21. Соколик Г.А., Овсянникова С.В., Кимленко И.М., Рубинчик С.Я., Луксина В.В. Анализ подвижности Cs-137, Sr-90, Pu-239,240 и Am-241 по результатам исследования распределения между твердой фазой и поровыми водами почв // Пятнадцать лет Чернобыльской катастрофы. Опыт преодоления: Сб. мат-лов Межд. конф. Чернобыльинтеринформ. Киев, 2002. — С. 422-434.
22. Соколик Г.А., Лейнова С.Л., Иванова Т.Г., Захаренков В.В., Кимленко И.М., Черевко Е.С. Миграционная способность плутония и амриция чернобыльского выброса в почвенно-растительном покрове Беларуси // Пятнадцать лет Чернобыльской катастрофы. Опыт преодоления: Сб. мат-лов Межд. конф. / Чернобыльинтеринформ.— Киев, 2002. — С. 472-482.
23. Соколик Г.А., Овсянникова С.В., Кимленко И.М., Рубинчик С.Я. Сорбционные процессы и миграция ^{137}Cs , ^{90}Sr , $^{239,240}\text{Pu}$ и ^{241}Am в системе «твердая фаза – раствор» в почвах водосборов озерных экосистем // Озерные экосистемы, биологические процессы, антропогенная трансформация, качество воды: Мат-лы II Межд. науч. конф. / БГУ — Минск, 2003 г. — С. 73-76.
24. Kimlenka I.M., Sokolik G.A., Ovsiannikova S.V., Ivanova T.G., Leinova S.L., Zakharenkov V.V. Restriction of plutonium and americium mobility in contaminated areas of Belarus // Environmental contamination in Central and Eastern Europe and the Commonwealth of Independent States: Proceed. of VI Int. Symposium and Exhibition / Florida State University. — Prague, 2003. — P 1-5.

ТЕЗИСЫ ДОКЛАДОВ КОНФЕРЕНЦИЙ

25. Петряев Е.П., Соколик Г.А., Кильчицкая С.Л., Иванова Т.Г., Жукович Н.В., Морозова Т.К., Микулик (Кимленко) И.М. Миграционная способность альфа-излучающих радионуклидов в наиболее распространенных типах белорусских почв // Экологический статус загрязненных радионуклидами территорий: Тез. докл. Межд. раб. сов., Минск, 19-20 апреля 1995 г. / МЧС РБ, ЮНЕСКО, НАНБ. — Минск, 1995. — С. 99.
26. Петряев Е.П. Соколик Г.А., Иванова Т.Г., Лейнова С.Л., Луксина В.В., Рубинчик С.Я., Жукович Н.В., Кимленко И.М. Прогнозирование и закономерности трансформации и поведения чернобыльских выпадений в почвенно-растительном покрове // Десять лет после

2. Юг 113817

- Чернобыльской катастрофы: Тез. докл. Межд. науч. конф., Минск, 28-29 февраля 1996 г. / МЧС РБ, НАНБ. — Минск, 1996. — С. 235.
27. Соколик Г.А., Овсянникова С.В., Кильчицкая С.Л., Эйсмонт Е.А., Кимленко И.М., Захаренков В.В. Поровые растворы — важное звено миграции радионуклидов в системе “почва — растение” // III Съезд по радиационным исследованиям: Сб. тез. докл.: В 2 т., Пушино, 14-17 октября 1997 г. — Москва, 1997. — Т.2. — С. 482.
28. Kilchitskaya S.L., Sokolik G.A., Ivanova T.G., Leinova S.L., Kimlenko I.M., Zhukovich N.V., Duksina V.V. The complex-forming and sorption processes of transuranium elements in the different soil types // 13-th Radiochemical Conference: Abstracts of the paper, Marianske Lazne - Jachymov, 19-24 April 1998 / Czech Chemical Society, I.M. Spectroscopic Society, IAEA. — Prague, 1998. — P 94.
29. Соколик Г.А., Кильчицкая С.Л., Лейнова С.Л., Иванова Т.Г., Жукович Н.В., Кимленко И.М., Дуксина В.В. Анализ поведения трансурановых элементов в различных экосистемах // Фундаментальные и прикладные аспекты радиобиологии: Тез. докл. Межд. науч. конф., Минск, 16-17 апреля 1998 г. / МЧС РБ, НАНБ, Комиссия парламентского собрания союза Беларуси и России по вопросам экологии, природопользования и ликвидации последствий аварий, Ин-т радиобиологии, Мед. радиол. науч. Центр РАМН — Минск, 1998. — С. 230.
30. Соколик Г.А., Лейнова С.Л., Иванова Т.Г., Кимленко И.М., Захаренков В.В. Радиоактивное загрязнение окружающей среды и накопление основных дозообразующих радионуклидов в организме человека // IV съезд по радиационным исследованиям: Сб. тез. докл.: В 2 т., Москва, 20-24 ноября 2001 г. — Москва, 2001. — Т.2. — С. 755.

РЕЗЮМЕ

Кимленко Ирина Михайловна

Оценка состояния и подвижности плутония и америция в загрязненных радионуклидами почвах Республики Беларусь

Ключевые слова: *плутоний, америций, состояние, подвижность, почва, почвенный раствор, коэффициент распределения, ионообменная хроматография, карбоксильная смола, гумусовые кислоты*

Объект исследования: почвы, отличающиеся по структуре сорбционного комплекса, загрязненные плутонием и америцием чернобыльского происхождения. Предмет исследования: количественная оценка показателей подвижности радионуклидов в почвах.

Цель работы: получение систематизированной информации о состоянии плутония и америция в почвах для оценки подвижности радионуклидов и определения способов ее снижения в почвенно-растительном комплексе в условиях Беларуси.

Модифицирована методика аналитического определения плутония и америция в природных объектах. Усовершенствован способ оценки состояния и подвижности радионуклидов в почвенной среде на основе комплексного анализа распределения элементов в реальных и модельных системах «твердая фаза почвы – почвенный раствор». Применены методы ионообменной и гель-хроматографии, спектрофотометрии, высокоскоростного центрифугирования, математической статистики. Получена информация о содержании $^{239,240}\text{Pu}$ и ^{241}Am в составе групп соединений почвенного комплекса, отличающихся подвижностью в почвах и биологической доступностью растениям. Впервые показано, что модельная система «почва – вода – карбоксильная смола» может быть использована для изучения состояния и миграционной способности трансурановых элементов и других тяжелых металлов в почве и системе «почва-растение». Впервые получена информация о содержании и состоянии плутония и америция в поровых растворах почв Беларуси. Определены коэффициенты распределения радионуклидов в системе «твердая фаза почвы – почвенный раствор», являющиеся мерой сорбционной способности почв по отношению к радионуклидам, в условиях увлажнения, типичных для Беларуси. Выявлены основные факторы, определяющие состояние плутония и америция в почвах. Результаты работы включены в Республиканскую базу данных радиационного мониторинга и используются при оценке параметров вертикальной миграции радионуклидов, совершенствовании прогнозов радиозоологического состояния окружающей среды.

Область применения: планирование природопользования и хозяйственной деятельности в радиоактивно загрязненных районах, аналитическая химия тяжелых поливалентных металлов.

РЭЗЬЮМЭ

Кімленка Ірына Міхайлаўна

Ацэнка стану і рухавасці плутонію і амерыцыю

ў забруджаных радыенуклідамі глебах Рэспублікі Беларусь

Ключавыя словы: *плутоній, амерыцый, стан, рухавасць, глеба, глебавы раствор, каэфіцыент размеркавання, іонаабменная храматаграфія, карбаксільная смала, гумусавыя кіслоты*

Аб'ект даследавання: глебы, якія адрозніваюцца па структуры сарбцыйнага комплексу і забруджаны плутоніем і амерыціем чарнобыльскага паходжання. Прадмет даследавання: колькасная ацэнка паказчыкаў рухавасці радыенуклідаў у глебах.

Мэта працы: атрыманне сістэматызаванай інфармацыі аб стану плутонію і амерыцыю ў глебах для ацэнкі рухавасці радыенуклідаў і вызначэння спосабаў яе зніжэння ў глебава-раслінным комплексе ва ўмовах Беларусі.

Мадыфікавана метадка аналітычнага выяўлення плутонію і амерыцыю ў прыродных аб'ектах. Удасканалены спосаб ацэнкі стану і рухавасці радыенуклідаў у глебавым асяроддзі на аснове комплекснага аналізу размеркавання элементаў у рэальных і мадэльных сістэмах «цвёрдая фаза глебы – глебавы раствор». Выкарыстаны метады іонаабменнай і гель-храматаграфіі, спектрафотаметрыі, высакаскораснага цэнтрыфугавання, матэматычнай статыстыкі. Атрымана інфармацыя аб колькасці $^{239,240}\text{Pu}$ і ^{241}Am у складзе груп злучэнняў глебавага комплексу, якія адрозніваюцца рухавасцю ў глебах і біялагічнай даступнасцю раслінам. Упершыню паказана, што мадэльная сістэма «глеба – вада – карбаксільная смала» можа быць выкарыстана для даследавання стану і міграцыйнай здольнасці плутонію і амерыцыю і іншых цяжкіх металаў у глебе і сістэме «глеба - расліна». Упершыню атрымана інфармацыя аб колькасці і стану плутонію і амерыцыю ў паравых растворах глебаў Беларусі. Вызначаны каэфіцыенты размеркавання радыенуклідаў у сістэме «цвёрдая фаза глебы – глебавы раствор», якія з'яўляюцца мерай сарбцыйнай здольнасці глебаў у адносінах да радыенуклідаў, ва ўмовах увільгатнення, тыповых для Беларусі. Выяўлены асноўныя фактары, якія вызначаюць стап плутонію і амерыцыю ў глебах. Вынікі працы ўключаны ў Рэспубліканскую базу дадзеных радыяцыйнага маніторынгу і выкарыстоўваюцца пры ацэнцы параметраў вертыкальнай міграцыі радыенуклідаў, удасканальванні прагнозаў радыеэкалагічнага стану навакольнага асяроддзя.

Галіна выкарыстання: планаванне прыродавыкарыстання і гаспадарчай дзейнасці ў радыеактыўна забруджаных раёнах, аналітычная хімія цяжкіх полівалентных металаў.

SUMMARY

Kimlenka Iryna M.

The estimation of plutonium and americium state and mobility in soils of the Republic of Belarus contaminated by radionuclides

Keywords: *plutonium, americium, state, mobility, soil, soil solution, distribution coefficient, ion-exchange chromatography, carboxylic resin, humus acids*

The objects of investigation were soils differing in the structure of sorption complex and contaminated by plutonium and americium of Chernobyl origin. The subjects of investigation were quantitative indices of the radionuclides mobility in soils.

The aim of investigation was to obtain systematic information on the state of plutonium and americium in soils in order to estimate the radionuclides mobility and to find out the ways to decrease it for soil-vegetation cover in Belarusian conditions.

The method of analytical determination of plutonium and americium in environmental objects has been modified. The method of estimation of radionuclide state and mobility in soil media basing on the combined analysis of radionuclide distribution in the real and model «solid soil phase – soil solution» systems has been upgraded. The methods of ion-exchange and gel-chromatography, spectrophotometry, high-speed centrifugation, mathematical statistics have been used. The information on $^{239,240}\text{Pu}$ и ^{241}Am content in the composition of soil complex compounds, differing in mobility in soils as well as biological availability to plants has been obtained. It has been shown for the first time that the model system “soil - water - carboxylic resin” can be used for the investigation of state and migration ability of plutonium and americium and other heavy metals in soil and in the “soil-plant” system. The information on content and speciation of plutonium and americium in pore solutions of Belarusian soils has been obtained for the first time. The distribution coefficients of radionuclides in the «solid soil phase – soil solution» system (a criterion of sorption ability of soils to radionuclides) have been determined for the humidification conditions characteristic for Belarus. The main factors, controlling plutonium and americium speciation in soils, have been established. The results of the work have been included in the Republic database of radiation monitoring and are used for estimation of parameters of radionuclides vertical migration, modification of prognosis of the radioecological state of the environment.

Application field: planning of natural recourses use and economical activity in the radioactively contaminated regions, analytical chemistry of heavy polyvalent metals.

Подписано в печать 08.10.2004. Формат 60×84 1/16.
Тираж 100 экз. Зак. № 876.

Отпечатано с готового оригинала-макета заказчика
в Республиканском унитарном предприятии
«Издательский центр Белорусского государственного университета».
Лицензия на полиграфическую деятельность № 02330/0056850 от 30.04.2004.
220030, Минск, ул. Красноармейская, 6.