

МИГРАЦИЯ РАДИОНУКЛИДОВ ЦЕЗИЯ В РАЗЛИЧНЫХ ГЛИНИСТЫХ ОТЛОЖЕНИЯХ

MIGRATION OF CAESIUM RADIONUCLIDES IN VARIOUS CLAYEY DEPOSITS

В.В. МАРТЬЯНОВ, к.т.н.,
Е.В. ШЕВЦОВА, к.т.н.,
Ю.Г. СКЛИФOSОВСКАЯ
(ГУП МосНПО «Радон»)

V.V. MARTYANOV, Candidate of Technical Science,
E.V. SHEVTSOVA, Candidate of Technical Science,
Y.G. SKLIFOSOVSKAYA
(SUE SIA Radon Moscow)

■ **Насколько пригодны глинистые отложения в качестве надежного геологического барьера? Ответ на этот вопрос помогает найти изучение их минералогического состава (особенно наличие в нем сорбентов или, наоборот, активных десорбентов), а также сорбционно-емкостные и фильтрационные характеристики.**

Специалисты ГУП МосНПО «Радон» совместно с сотрудниками ИГЕМ в апреле – сентябре 2007 года провели исследования миграции ¹³⁷Cs в глинистых отложениях на площадке предприятия. Эксперименты проводились с использованием реальных растворов, загрязненных цезием, изъятых из одного из хранилищ ТРО.

Для проведения исследований из разведочного шурфа были отобраны образцы покровных (prQ_{III}), серо-цветных болотных (lQ_{III}) и моренных суглинков (gQ_{III}ms) (рис. 1).

Основные аналитические работы включали гранулометрическое изучение отобранных образцов (распределение частиц и пор по размеру), расшифровку фазового состава глинистой фракции, определение химического состава и величины коэффициента распределения (Kd) для каждой пробы грунта с использованием реальных водных растворов, содержащих ¹³⁷Cs, а также поведения этого радионуклида при различных значениях pH.

Сначала определили количество глинистых минералов, характеризующих основные сорбционно-емкостные характеристики осадочных пород, долю примесей, а также удельную площадь поверхности и текстурные особенности глинистых частиц каждого вида суглинков.

Анализ наличия в образцах количества глинистых частиц (диаметром меньше 0,005 мм), показал, что покровные суглинки содержат 30% глинистых частиц, болотные суглинки – 12%, а моренные – 24%.

В результате анализа минералогического состава проб выяснилось, что глинистая фракция покровных суглинков представлена смектитом, иллитом, каолинитом и смешанослойным иллит-смектитом, болотных суглинков – хлоритом, вермикулитом, каолинитом и иллитом. В обоих случаях зафиксированы примеси неглинистых минералов –

■ **How reliable a geological barrier would clayey sediments make? This question could be answered with the help of studying the mineralogical properties of such geological deposits (particularly the presence of active sorbents or active desorbents in them), as well as their sorption capacity and filtration characteristics.**

During April-September 2007, experts from SUE SIA Radon Moscow, along with specialists from IGEM (Institute of Geology of Ore Deposits, Petrography, Mineralogy and Geochemistry) researched the pathways of ¹³⁷Cs migration in the clayey deposits on the Radon site. The experiments were performed on actual solutions contaminated with caesium, taken from one of the solid radwaste storage facilities.

A bore-hole was made on site, from which samples of blanket (prQ_{III}), greyish colored marsh (lQ_{III}) and moraine (gQ_{III}ms) clay loams were taken (fig. 1).

The core analysis work included granulometric study of the samples (distribution between sizes of particles and pores), decoding the phase composition of the clay fraction, determining the chemical composition and the distribution coefficient (Kd) for each soil sample using actual water solutions containing ¹³⁷Cs, as well as the behavior of this radionuclide under different pH values.

ТАБЛИЦА 1. РЕЗУЛЬТАТЫ ОПРЕДЕЛЕНИЯ ИЗОТЕРМЫ СОРБЦИИ ¹³⁷CS
TABLE 1. ¹³⁷CS SORPTION ISOTHERM MEASUREMENT RESULTS

Соотношение фаз, Т:Ж Phases ratio, solid : liquid	Вес грунта, г Soil weight, g	Удельная активность грунта, Бк/г Specific activity in soil, Bq/g	Удельная остаточная активность раствора, Бк/мл Expected residual activity of solution, Bq/ml		Kd расчетная Kd calculated	Kd фактическая Kd actual
			расчетная calculated	фактическая actual		
Покровные суглинки Blanket loams						
1:5	1,95	48,39±7,26	0,06	0,06±0,01	756,68	806,50
1:10	1,97	95,15±14,27	0,13	0,12±0,02	744,96	792,92
1:25	1,94	237,50±35,63	0,29	0,27±0,04	833,33	879,63
1:50	1,96	455,53±68,33	0,57	0,56±0,08	796,92	813,45
1:100	1,97	850,12±127,52	1,13	1,10±0,17	754,78	772,84
Болотные суглинки Marsh loams						
1:5	1,96	47,93±7,19	0,13	0,10±0,015	453,37	479,30
1:10	1,95	94,98±14,25	0,25	0,23±0,03	397,06	412,96
1:25	1,94	229,19±34,38	0,65	0,55±0,08	408,64	416,71
1:50	1,94	435,52±65,33	1,15	0,97±0,15	418,39	448,99
1:100	1,97	763,20±114,8	1,98	1,90±0,29	389,20	401,68
Моренные суглинки Moraine loams						
1:5	1,96	48,10±7,22	0,07	0,07±0,01	664,4	687,14
1:10	1,95	95,97±14,40	0,14	0,13±0,02	671,5	738,23
1:25	1,94	234,85±35,23	0,39	0,36±0,05	605,6	652,36
1:50	1,94	454,8±68,22	0,68	0,64±0,10	671,9	710,63
1:100	1,97	830,22±124,53	1,32	1,3±0,20	627,8	638,63

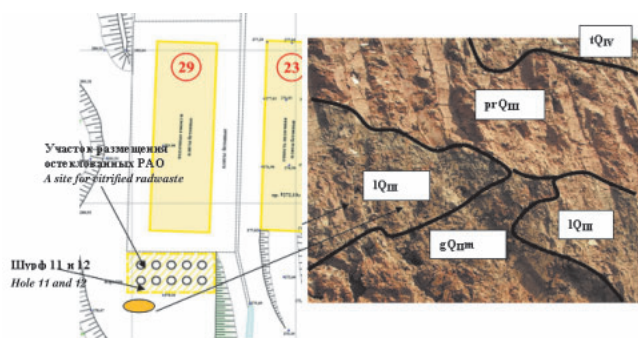


Рис. 1. Схема размещения разведочного шурфа
Fig. 1. The scheme of a bore-hole locations

кварца и полевого шпата. Глинистая фракция моренных суглинков состоит из смектита, иллита, каолинита, хлорита и смешанослойного иллит-смектита (примеси – кварц, полевой шпат и кальцит). Таким образом, в различных образцах суглинков, при близком минералогическом составе, отмечается отсутствие того или иного минерала.

Анализ структурных параметров образцов суглинков показал, что наибольшее значение величины удельной поверхности характерно для покровных суглинков ($108 \text{ м}^2/\text{г}$), наименьшее – для болотных суглинков ($30,3 \text{ м}^2/\text{г}$). При этом максимальный радиус пор зафиксирован у болотных суглинков ($89,2 \text{ А}$), а минимальный – у покровных ($25,4 \text{ А}$). Для моренных суглинков значения этих параметров составляют $86 \text{ м}^2/\text{г}$ и $51,1 \text{ А}$ соответственно.

Полученные данные свидетельствуют, что наилучшими сорбционными характеристиками должны обладать покровные суглинки (prQ_{III}): в этом виде почв больше содержание глинистых частиц и их удельная поверхность, а радиус пор – меньше.

Этот вывод подтвердили дальнейшие лабораторные и полевые исследования (таблицы 1, 2).

В частности, лабораторные исследования по определению величины коэффициента распределения ^{137}Cs в покровных, болотных и моренных суглинках показали, что покровные суглинки обладают лучшими сорбционными свойствами. Здесь среднее значение K_d ^{137}Cs составляет 753 мл/г , тогда как в болотных суглинках – 432 мл/г , в моренных – 685 мл/г .

При проведении полевого мониторинга было установлено, что наибольший вынос радионуклидов происходит на участках развития болотных суглинков (наименьшие значения сорбционных параметров), а наименьший – при контакте с покровными и моренными суглинками. Причем во всех случаях величина удельной активности коррелируется с увеличением значений pH, то есть с одним из основных признаков начала процесса выщелачивания бетонной матрицы.

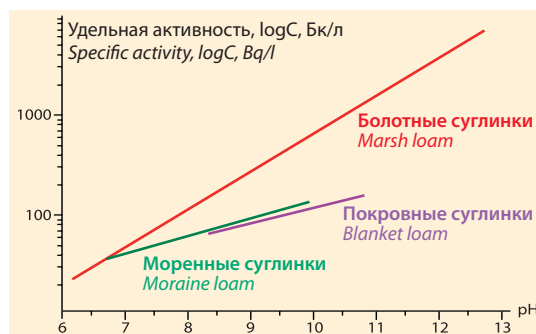


Рис. 2. Зависимость величины удельной активности ^{137}Cs от значений pH (болотные, моренные, покровные суглинки)
Fig. 2. Dependency between specific activity of ^{137}Cs and the pH value (for marsh, moraine and blanket clay loams)

First, the content of clayey materials that characterizes the main sorption capacities of the sediments was determined along with the content of impurities, specific area surface and textural particularities of the clayey particles of each clay loam type.

Analysis of clay particles (with diameter less than 0.005 mm) present in the samples has shown that the blanket loams contain 30% clay particles, marsh loams 12%, and moraine loams 24%.

As a result of mineralogical analysis of the samples it was established that the clay fraction of the blanket loams was made up of smectite, illite, kaolinite and mixed illite-smectite, and marsh loams were represented by chlorite, vermiculite, illite, and kaolinite. In both cases, non-clay impurities were recorded: quartz and feldspar. The clay fraction of moraine loams consisted of smectite, illite, kaolinite, chlorite and mixed illite-smectite (with quartz, feldspar and calcite present as impurities). Therefore, despite the

ТАБЛИЦА 2. ИНТЕГРАЛЬНЫЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ СУГЛИНКОВ
TABLE 2. INTEGRAL PROPERTIES OF CLAY LOAMS

Вмещающие породы Host rock	Средний радиус пор, А Average pore radius, A	Величина удельной поверхности, $\text{м}^2/\text{г}$ Specific surface area, m^2/g	% фракции размером <0,005 мм % of size fraction <0.005 mm	Kd, мл/г Kd, ml/g
Покровные суглинки Blanket loam	25,4	108	30	753
Болотные суглинки Marsh loam	89,2	30,3	12	432
Моренные суглинки Moraine loam	51,1	86	24	685

generally close mineralogical composition of the samples, certain minerals could be present in, or absent from, different loams.

Analysis of the structural parameters of the loam samples showed that the biggest specific surface area was demonstrated by blanket loams ($108 \text{ м}^2/\text{г}$), and the smallest by marsh loams ($30.3 \text{ м}^2/\text{г}$). The maximum pore radius was recorded in marsh loams (89.2 А), and the minimum in blanket loams (25.4 А). These corresponded to $86 \text{ м}^2/\text{г}$ and 51.1 А , respectively, in moraine loams.

The data that was obtained represents evidence that the best sorption properties are expected to be found in blanket loams (prQ_{III}): these soils have a larger proportion of clay particles and bigger specific area, whilst their pore radius is smaller.

This conclusion was further reinforced by continued laboratory and field research (Tables 1, 2).

In particular, laboratory research that was conducted to determine the ^{137}Cs distribution coefficient in blanket, marsh and moraine loams showed that blanket loams displayed better sorption properties. Their average K_d value for ^{137}Cs was 753 мл/г , whereas the corresponding parameter measured 432 мл/г in marsh loams, and 685 мл/г in moraine loams.

During field monitoring it was also established that the highest rate of radionuclide transfer was observed in marsh loam areas (lowest sorption values), and the smallest transfer occurred when the nuclide came into contact with blanket and moraine loams. It was also observed that in all cases the specific activity value correlated with increased pH value, i.e. with one of the key indicators that signal the start of concrete matrix leaching process.