

ДЕГРАДАЦИЯ, ВОССТАНОВЛЕНИЕ И ОХРАНА ПОЧВ

УДК 63135:631.438.2

ЭФФЕКТ КОНЦЕНТРИРОВАНИЯ ^{137}Cs ОРГАНО-МИНЕРАЛЬНЫМИ ЧАСТИЦАМИ КРУПНОЗЕРНИСТЫХ ГРАНУЛОМЕТРИЧЕСКИХ ФРАКЦИЙ ПЕСЧАНЫХ ПОЧВ, ЗАГРЯЗНЕННЫХ В РЕЗУЛЬТАТЕ АВАРИИ НА ЧЕРНОБЫЛЬСКОЙ АЭС*

© 2006 г. В. Е. Попов

24903И, г. Обнинск, Калужская обл., пр. Ленина, 82

Государственный учреждение НПО "Тайфун"

Поступила в редакцию 17.06.2003 г.

Обнаружен эффект концентрирования ^{137}Cs темноокрашенными частицами крупнозернистых фракций песчаных почв. В песчаных фракциях и во фракции крупной пыли эти частицы содержали до 94% фракционного запаса ^{137}Cs , хотя их относительная масса в основном не превышала 1-5%. При этом концентрация ^{137}Cs в "темных" частицах превышала его концентрацию в "светлых" частицах до 400 раз. На присутствие ил инистых минералов в "темных" частицах указывают высокие значения потенциала селективной сорбции ^{137}Cs ($\text{RIP}(\text{K}) = 1600\text{-}4600 \text{ мМ/КГ}$).

ВВЕДЕНИЕ

В математических моделях, предложенных Абсалом с соавт. [14, 15], процентное содержание глины (частицы с диаметром $<0.002 \text{ мМ}$) используется в качестве основного почвенного параметра для расчета концентрации ^{137}Cs в поровом растворе. Значение содержания глины, необходимого для сорбции ^{137}Cs , обосновывается как соображениями этого плана (площадь поверхности мелких частиц значительна выше площади поверхности крупных), так и данными лабораторных исследований [20]. Для суглинистых и глинистых почв такой подход является правомерным, так как фракция физической глины (частицы диаметром $<0.01 \text{ мМ}$) в этих почвах составляет более 20%. Однако в песчаных и супесчаных почвах крупнозернистые фракции доминируют. Поэтому, несмотря на слабую сорбцию ^{137}Cs неглинистыми минеральными компонентами крупнозернистых фракций, значительная часть запаса ^{137}Cs может находиться во фракции физического песка (на частицах с диаметром $>0.01 \text{ мМ}$). В отличие от глинистых минералов сорбция ^{137}Cs органическим веществом почвы носит неселективный характер и является определяющим фактором его поглощения только в некоторых торфяных почвах с содержанием органического вещества более 80% [23]. Вместе с тем органическое вещество способно экранировать минеральные частицы, предотвращая сорбцию радионуклидов [2, 11]. Важным свойством органического вещества также является его участие в формировании органи-

минеральных комплексов в почве. Результаты работ по изучению распределения ^{137}Cs между различными гранулометрическими фракциями почв свидетельствуют о том, что основная доля ^{137}Cs в почве обычно связывается пылеватыми и илными частицами [19, 22]. Такое поведение ^{137}Cs связывают с величиной удельной поверхности почвенных частиц [18]. Вместе с тем в почвах 30-километровой зоны ЧАЭС обнаружено обогащение ^{137}Cs крупнозернистых гранулометрических фракций. Предполагается, что такое обогащение происходит за счет фрагментированного реакторного топлива различной степени дисперсности [1, 6]. Процесс механического переноса ^{137}Cs по профилю почвы в значительной степени также зависит от размера загрязненных частиц почвы. Важность этого процесса для верхнего слоя почвы была показана в литературе [3, 7]. Следует отметить, что интерпретация уже существующих данных затрудняется тем, что под распределением ^{137}Cs по фракциям гранулометрического состава зачастую понимается его распределение по фракциям агрегатного состава. Например, в работе Круглова с соавт. [6] был использован метод сухого просеивания, который является методом определения именно фракций агрегатного состава. Основным отличием между гранулометрическим и агрегатным анализами, как известно, является этап подготовки проб почвы. При гранулометрическом анализе для дезагрегирования почву подвергают физическому или химическому воздействию. Использование химических методов, например, стандартного международного метода "А" (сжигание перекисью водорода) или кислотно-щелочного действия на

* Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (грант № 02-05-81008).

Таблица 1. Свойства исследованных почв

Показатель	Почва			
	АДК	АЛК	ДГ	СП
Частицы >0,01 мм, %	93	81	86	96
C орг, %	1.39 ± 0.05	8.8 ± 0.8	8.3 ± 0.6	0.62 ± 0.03
pH водный	5.0	6.3	4.0	4.3
pH KCl	4.1	5.2	2.7	3.1
N _r , мг-экв/100 г	4.7 ± 0.1	8.8 ± 0.2	25.2 ± 0.3	5.2 ± 0.2
EKO, мг-экв/100 г	7.6 ± 0.2	49.8 ± 0.9	38.4 ± 0.8	5.7 ± 0.2
Ca _w , mM	0.22 ± 0.03	2.4 ± 0.2	0.27 ± 0.05	0.10 ± 0.01
Mg _w , mM	0.06 ± 0.01	1.09 ± 0.01	0.09 ± 0.03	0.030 ± 0.005
K _w , mM	0.187 ± 0.007	0.133 ± 0.004	0.182 ± 0.003	0.033 ± 0.001
Ca _{EX} , мг-экв/100 г	1.80 ± 0.03	25.15 ± 0.07	2.45 ± 0.04	0.95 ± 0.05
Mg _{EX} , мг-экв/100 г	0.43 ± 0.03	6.5 ± 0.2	0.477 ± 0.005	0.07 ± 0.02
K _{EX} , мг-экв/100 г	0.23 ± 0.01	0.29 ± 0.01	0.29 ± 0.01	0.049 ± 0.002
PAR ^{III}	0.35	0.07	0.30	0.09
RIP(K), мм/кг	300 ± 80	1130 ± 110	1020 ± 30	310 ± 40
¹³⁷ Cs _{EX} ^{RIP} , %	28.3 ± 1.1	26.5 ± 0.1	25.7 ± 0.6	28.1 ± 0.8
¹³⁷ Cs _{EX} ^{nat} , %	4.5 ± 0.8	1.3 ± 0.2	0.7 ± 0.2	1.1 ± 0.3

почву по Качинскому [4] нельзя признать безупречным, так как они могут вызывать десорбцию ¹³⁷Cs и его перераспределение из одних фракций на другие за счет вторичной сорбции. В результате может происходить обогащение мелкозернистых фракций ¹³⁷Cs за счет преобладания их удельной площади поверхности по сравнению с грубозернистыми фракциями. На наш взгляд, такой метод физического дезагрегирования, как метод мокрого растирания, представляется наиболее приемлемым компромиссом при изучении распределения ¹³⁷Cs по гранулометрическим фракциям песчаных и супесчаных некарбонатных почв. С помощью этого метода основная часть почвенных агрегатов разрушается за исключением некоторых из них, которые являются водонепроницаемыми и устойчивыми к механическому воздействию. Темный цвет этих частиц позволяет предполагать наличие глинистых минералов, склеенных гумусовыми цементами, которые могут селективно сорбировать ¹³⁷Cs и, следовательно, могут быть обогащены ¹³⁷Cs по сравнению с чисто минеральными частицами такого же размера. При использовании метода мокрого растирания не происходит химического воздействия на почву и исходное распределение ¹³⁷Cs по гранулометрическим фракциям остается ненарушенным.

Целью настоящей работы являлось изучение распределения ¹³⁷Cs по гранулометрическим фракциям загрязненных в результате аварии на Чернобыльской АЭС песчаных и супесчаных

почв, отобранных в период с 1986 по 1999 гг., а также оценка вклада темноокрашенных органико-минеральных частиц в сорбцию ¹³⁷Cs крупнозернистыми фракциями и изучение их способности селективно сорбировать ¹³⁷Cs.

ОБЪЕКТЫ И МЕТОДЫ ИССЛЕДОВАНИЯ

Почвы. Аллювиальная дерновая кислая рыхло-песчаная почва (АДК) была отобрана в 11 км к юго-западу от ЧАЭС в июле 1986 г. на естественном сухом лугу в пойме реки Припять вблизи села Староселье, а аллювиальная луговая кислая супесчаная почва (АЛК) была отобрана в нижней части склона прируслового вала реки Припять на естественном лугу в июле 1987 г. в 18 км к северо-востоку от ЧАЭС. Оба образца были отобраны из верхней части гор. А1 (0–3 см). Почвы высушивали и просеивали через сито 1 мм. В воздушно-сухом состоянии эти образцы хранились при комнатной температуре и были в дальнейшем использованы для химического анализа и экспериментов. Дерново-глессвая супесчаная почва (ДГ) (слой 0–5 см из гор. А1) и слабоподзолистая рыхло-песчаная почва (СП) (слой 2–3 см, гор. Oh) были отобраны вблизи села Заборье Красногорского р-на Брянской области в мае 1999 г. Образцы ДГ были взяты в прибрежной части оз. Святое, расположенного в 2 км к северу от села, а СП – в прилегающем к озеру сосновом лесу, расположенном на первой надпойменной террасе реки Беседь. Свойства почв приведены в табл. 1.

Сорбенты. В качестве аналога свежего опада были использованы высушенные зеленые листья ежи сборной (*Dactylis glomerata* L.), которые были отобраны в возрасте 3–4 недель в естественном лесу в 2004 г. В качестве аналога угледободных частиц был использован активированный уголь марки МС.

Определение форм нахождения ^{137}Cs в почве. Для определения обменно-сорбированного ^{137}Cs в естественных почвах ($^{137}\text{Cs}_{\text{ex}}^{\text{nat}}$) и через 1 сутки после его внесения в почвенную суспензию ($^{137}\text{Cs}_{\text{ex}}^{\text{nat}}$) использовали метод экстракции почвы 1 М ацетатом аммония при соотношении жидкой и твердой фазы 10:1 для $^{137}\text{Cs}_{\text{ex}}^{\text{nat}}$ и 50:1 для $^{137}\text{Cs}_{\text{ex}}^{\text{RIP}}$.

Для определения потенциала селективной сорбции ^{137}Cs в почвах (RIP(K)) применялся метод, разработанный в работе Ваутерса с соавт. [24], основанный на сорбции ^{137}Cs почвой при блокировании поверхности сорбционных центров RES. Образец почвы уравнивается с раствором, содержащим K и Ca с концентрациями 0.5 мМ и 100 мМ, соответственно (PAR = 0.05). После трехкратного насыщения и центрифугирования в течение двух суток образцы почвы уравниваются с раствором K-Ca (PAR = 0.05) в присутствии ^{137}Cs . После встряхивания почвенной суспензии в течении 24 часов и центрифугирования измеряют концентрацию ^{137}Cs в надосадочной жидкости и рассчитывают селективную сорбцию ^{137}Cs .

Химический анализ почвы. Содержание органического углерода в почвах методом мокрого сжигания, гидrolитическую кислотность (Нг), рН водной и солевой вытяжек определяли по известным методикам [12]. Емкость катионного обмена определяли по методу Бобко-Аскинази-Алсиппа в модификации ЦИНАО [11]. Содержание металлов в водной и солевой вытяжках измеряли по стандартным методикам [8–10].

Измерение ^{137}Cs в почве и растворах определяли с помощью гамма-спектрометра CompuGamma 1282 (LKB Wallac).

Разделение почвенных образцов на гранулометрические фракции производили методом отмучивания в стоячей воде [4]. Для дезагрегирования образцов использовали метод мокрого растирания. Высушенную и не подвергшуюся никаким химическим обработкам почву размалывали и просеивали через сито 1 мм. Неразложившиеся и полуразложившиеся органические остатки удаляли с помощью электризации образца почвы в пластмассовой чашке Петри. Подготовленную таким образом почву, увлажненную до состояния густой пасты, расти-

рали в течение 15 минут в фарфоровой ступке пестиком с резиновым наконечником. Затем добавляли дистиллированную воду, отстаивали суспензию в течение 1 минуты и декантировали на сито с диаметром отверстий 0.25 мм. Процесс добавления воды и декантирования повторяли до полного осветления надосадочной жидкости. Затем промытую крупнозернистую фракцию переносили на сито и после промывания водой при легком растирании частицы почвы с сита помещали в стаканчик и высушивали до абсолютно сухого веса. Водную суспензию с гранулометрическими фракциями менее 0.25 мм помещали в стеклянный цилиндр. Взмучивали и после соответствующего времени отстаивания гранулометрические фракции отбирали Г-образной трубкой с соответствующей глубиной. Время отстаивания и глубину взятия проб рассчитывали по формуле Стокса. Учитывая возможную десорбцию ^{137}Cs в течение суточного настанвания (как показано в [13], при коэффициенте диффузии ^{137}Cs 10^{-14} см²/с время его десорбции на 90% из частиц с диаметром 0.001 мм составит всего 2 суток, в то время как его десорбция из частиц диаметром 0.01 мм составит уже 7 месяцев), илстую фракцию почвы не отбирали, а начинали отделение с фракции <0.005 мм. Для удобства сравнения получаемых результатов с зарубежными данными был введен отбор фракции 0.01–0.02 мм. Некоторые крупнозернистые фракции были дополнительно разделены на “светлые” (минеральные) и “темные” (органоминеральные). Для этого слитые фракции помещались в фарфоровые чашки с небольшим количеством воды. Чашки слегка покачивали. В результате этого темные частички почвы концентрировались по краю почвенной “лепешки”. Их отбирали пипеткой и переносили во вторую фарфоровую чашку. Процедуру повторяли до полного удаления темных частиц из первоначального образца. Так как выделенная фракция, обогащенная темными частицами, содержала некоторое количество светлых частиц, описанную выше процедуру повторяли еще два раза. Затем выделенные “темные” органо-минеральные почвенные частицы высушивали и взвешивали. Светлые частицы, оставшиеся после выделения темных частиц, объединяли во фракцию “светлых” частиц. Гранулометрический анализ образцов проводили в 4-кратной повторности.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Несмотря на то что изученные почвы являются песчаными и супесчаными по гранулометрическому составу (в АДК и СП преобладают песчаные фракции (80–85% от массы почвы), а в АЛК и ДГ преобладает фракция крупной пыли (50–60% от массы почвы)), они сильно отличаются как по содержанию органического углерода, так

Таблица 2. Содержание ^{137}Cs в гранулометрических фракциях почв

Почва	Фракция, мм	M_i	$M_{i\text{Cum}}$	$A_i, ^{137}\text{Cs},$ Бк/г	$A_{i\text{Cum}}, \%$	F_i
		%				
30-км зона Чернобыльской АЭС						
АДК	0.25–1	11.3 ± 1.2	11	0.26 ± 0.09	0.4	0.04 ± 0.01
	0.05–0.25	75 ± 4	86	2.3 ± 1.3	25	0.3 ± 0.2
	0.02–0.05	6.8 ± 0.6	93	28 ± 8	52	4.0 ± 1.2
	0.01–0.02	2.6 ± 1.5	95	47 ± 18	69	6.7 ± 4.6
	0.005–0.01	2.0 ± 0.3	97	45 ± 9	82	6.4 ± 1.6
	<0.005	2.7 ± 1.1	100	47 ± 13	100	6.7 ± 3.3
АЛК	0.25–1	0.3 ± 0.1	1	75 ± 5	0.5	1.9 ± 0.6
	0.05–0.25	30.0 ± 2.9	30	9.8 ± 0.6	8	0.25 ± 0.03
	0.02–0.05	35.8 ± 1.7	66	48 ± 2	51	1.2 ± 0.1
	0.01–0.02	14.9 ± 0.9	81	49 ± 6	70	1.2 ± 0.2
	0.005–0.01	9.8 ± 1.8	91	52 ± 5	82	1.3 ± 0.3
	<0.005	9.2 ± 1.6	100	76 ± 2	100	1.9 ± 0.3
Брянская область						
ДГ	0.25–1	4.2 ± 1.9	4	9 ± 12	1	0.3 ± 0.3
	0.05–0.25	22 ± 3	26	6.3 ± 0.3	5	0.20 ± 0.03
	0.02–0.05	44.3 ± 0.8	70	20 ± 3	33	0.6 ± 0.1
	0.01–0.02	15.5 ± 0.2	86	43.8 ± 0.7	54	1.36 ± 0.03
	0.005–0.01	6.7 ± 0.1	92	72.5 ± 0.6	69	2.25 ± 0.04
	<0.005	7.6 ± 0.5	100	132 ± 6	100	4.1 ± 0.3
СП	0.25–1	39.5 ± 0.7	40	1.1 ± 0.5	2	0.06 ± 0.05
	0.05–0.25	43.8 ± 0.6	83	4.2 ± 0.9	12	0.22 ± 0.04
	0.02–0.05	8.7 ± 0.3	92	58 ± 7	38	3.0 ± 0.4
	0.01–0.02	4.1 ± 0.3	96	102 ± 9	60	5.3 ± 0.6
	0.005–0.01	1.6 ± 0.2	98	137 ± 9	72	7.1 ± 1.0
	<0.005	2.3 ± 0.2	100	240 ± 15	100	12.5 ± 1.3

и по условиям трансформации ^{137}Cs . В почвах с преобладанием песчаных фракций содержалось 0.6–1.4% органического углерода, а в супесчаных – 8–9%. Эти же почвы обладают и большей способностью селективно сорбировать ^{137}Cs : потенциал селективной сорбции $\text{RIP}(\text{K})$ составляет величину порядка 1000 мМ/кг по сравнению с 300 мМ/кг для песчаных почв. Потенциал селективной сорбции изменяется в лабораторных условиях при значении PAR 0.05. Для естественных условий величина PAR^{nat} для АЛК и СП составляет близкую для лабораторных условий величину 0.07–0.09. Однако содержание калия в АДК и ДГ существенно выше ($\text{PAR}^{\text{nat}} = 0.30\text{--}0.35$). При одинаковом составе почвы скорость фиксации при большей величине PAR^{nat} должна быть ниже, чем при меньшей величине этого параметра из-за конкуренции ^{137}Cs с ионами калия за места адсорбции. Доля обменно-сорбированного ^{137}Cs в

АДК при величине $\text{PAR}^{\text{nat}} = 0.35$ составляет 4.5%, в то время как в почвах с меньшей величиной PAR^{nat} доля обменно-сорбированного $^{137}\text{Cs}_{\text{ex}}^{\text{nat}}$ не превышает 1%. Следует отметить, что образцы почвы из зоны ЧАЭС (АДК и АЛК) были отобраны в 1986–1987 гг. Поэтому значительная часть активности в них может находиться в виде частиц реакторного топлива, так как в сухих почвах их деструкция существенно замедляется. В свою очередь в почвах Брянской области горячие частицы конденсатного происхождения должны были уже полностью раствориться к 1999 г., учитывая, что все исследованные почвы кислые и имеют значение pH_{KCl} от 3 до 5 (табл. 1).

В табл. 2 приведены данные по величине процентного содержания каждой гранулометрической фракции M_i , величине кумулятивного запаса массы фракции $M_{i\text{Cum}}$, удельной активности ^{137}Cs во фракции A_i , а также величине кумулятивного

Таблица 3. Содержание ^{137}Cs в "светлых" (W) и "темных" (B) частицах

Почва	Фракция, мм	M_{1W}	M_{1B}	A_{1W}	A_{1B}	A_{1B}/A_{1W}
		%		Бк/г		
30-километровая зона Чернобыльской АЭС						
АДК	Орг.*				50 ± 5	
	0.25–1.00	10.7 ± 0.1	0.5 ± 0.1	0.17 ± 0.01	5.3 ± 1.9	31
	0.05–0.25	73.4 ± 0.7	1.67 ± 0.08	0.50 ± 0.07	200 ± 80	400
АЛК	Орг.*				290 ± 120	
	0.25–1.00	0.23 ± 0.06	0.04 ± 0.02	72 ± 3	77 ± 5	1.1
	0.05–0.25	26 ± 3	3.9 ± 0.6	1.0 ± 0.3	69 ± 4	71
	0.02–0.05	16.2 ± 0.9	14.9 ± 0.9	15.3 ± 0.7	76 ± 6	5
Брянская область						
ДГ	Орг.*				44 ± 13	
	0.05–0.25	19.3 ± 0.3	2.5 ± 0.2	2.5 ± 0.2	33 ± 3	13
СП	Орг.*				175 ± 80	
	0.25–1.00	39 ± 3	0.20 ± 0.03	1.0 ± 0.1	22 ± 2	21
	0.05–0.25	43 ± 3	0.6 ± 0.1	2.1 ± 0.2	148 ± 16	69
	0.02–0.05	6.1 ± 0.4	2.6 ± 0.2	12 ± 2	167 ± 20	14

* Орг. – неразложившиеся органические остатки, удаленные из почвы с помощью электризации.

запаса ^{137}Cs в гранулометрических фракциях $A_{i\text{Сум}}$. Для количественной характеристики неравномерности распределения ^{137}Cs по почвенным фракциям разного размера приведен безразмерный показатель F_i , предложенный в работе Круглова с соавт. [6]. Он определяется как отношение доли фракции конкретного размера в суммарной активности образца к массовой доле этой фракции в почве. Значение $F_i > 1$ указывает на обогащение ^{137}Cs данной фракции по сравнению с его средней концентрацией в почве. В изученных образцах преобладает фракция физического песка, которая изменяется от 85 до 95%. Для почв, отобранных в 30-километровой зоне Чернобыльской АЭС, во фракции физического песка содержалось 70–80% от запаса ^{137}Cs (АДК и АЛК). Для почв из загрязненных районов Брянской области во фракции физического песка содержалось 55–60% запаса ^{137}Cs (ДГ и СП). Даже в рамках классификации ФАО / ЮНЕСКО [12] во фракциях грубее грубой пыли с диаметром более 0.02 мм содержалось 52% ^{137}Cs в АДК и 57% в АЛК.

Для почв из зоны ЧАЭС характерно равномерное обогащение гранулометрических фракций за исключением песчаной фракции. Величина F_i для крупнопылеватой фракции и мельче составляет величину 4–7 для АДК и 1.2–1.9 для АЛК. В АЛК из зоны ЧАЭС также наблюдается обогащение ^{137}Cs фракции крупного и среднего песка ($F_i = 1.9$). Обогащение этой фракции ^{137}Cs , по-видимому, свидетельствует о присутствии в ней частиц фрагментированного реакторного

топлива. Со времени отбора образцов в 1986–1987 гг. эти частицы, по-видимому, остались в нарушенном состоянии в воздушно-сухой почве. Несмотря на то что основная часть запаса ^{137}Cs в почвах Брянской области находится на фракции физического песка, наблюдается постепенное увеличение концентрации ^{137}Cs с уменьшением диаметра почвенных частиц и, соответственно, постепенное обогащение более мелкозернистых фракций. Для СП значение F_i для фракции <0.005 мм достигает 12.5. Такое поведение ^{137}Cs можно объяснить тем, что мелкопылеватая и илистая фракции в дерново-подзолистых почвах представлены в основном глинистыми минералами, которые слабо ассоциированы с гумусом [5], который может экранировать поверхность глинистых минералов для ^{137}Cs в других почвах [16]. Из приведенных данных следует, что в песчаных и супесчаных почвах до 2/3 запаса ^{137}Cs сосредоточено на песчаных фракциях и фракции крупной пыли, то есть во фракции физического песка. Вместе с тем, принимая во внимание приведенные ниже данные, можно сделать вывод о том, что кварцевая составляющая песчаных фракций действительно практически не поглощает ^{137}Cs . Поглощение ^{137}Cs этими фракциями во многом обусловлено наличием незначительного количества "темных" органико-минеральных частиц.

"Темные" и "светлые" частицы были отображены визуально из крупнозернистых фракций исследованных почв. Данные по относительному

Таблица 4. Селективная сорбция ^{137}Cs сорбентами

Почва	Фракция, мм	RIP(K) _W	RIP(K) _B	$^{137}\text{Cs}_{\text{ex W}}^{\text{RIP}}$	$^{137}\text{Cs}_{\text{ex B}}^{\text{RIP}}$	$C_{\text{орг}}^{\text{B}}$
		мМ/кг		%		
30-километровая зона Чернобыльской АЭС						
АДК	Орг.*		1790 ± 90		30 ± 2	15.0 ± 0.3
	0.05–0.25	51.2 ± 0.7	3750 ± 60	31 ± 2	48.7	
АЛК	Орг.*		890 ± 80		26 ± 5	12.1 ± 0.8
	0.25–1.00	160 ± 10	2770 ± 80	73 ± 5	29 ± 3	
	0.05–0.25	28 ± 4	3400 ± 110	35 ± 3	25.4 ± 0.9	
	0.02–0.05	130 ± 40	4560 ± 130	30 ± 2	24.8 ± 0.7	
Брянская область						
ДГ	Орг.*		800 ± 260		26 ± 1	32 ± 2
	0.05–0.25	70 ± 4	1640 ± 90	28 ± 2	43 ± 3	
СП	Орг.*		1300 ± 230		28 ± 2	10.3 ± 0.9
	0.05–0.25	52 ± 3	1610 ± 20	31 ± 1	28 ± 4	
	0.02–0.05	515 ± 25	3100 ± 330	26 ± 3	32 ± 3	
Селективная сорбция ^{137}Cs некоторыми сорбентами						
ЗП*			8 ± 2		49 ± 3	18 ± 2
УГ**			16 ± 2		60 ± 2	

* Высушенные зеленые листья ежи сборной (*Dactylis glomerata* L.).

** Активированный уголь марки МС.

содержанию в почве массы различных частиц M_i , их удельной радиоактивности A_i и отношению удельных радиоактивностей “темных” и “светлых” частиц A_{iB}/A_{iW} приведены в табл. 3 (сумма M_{iW} и M_{iB} соответствует величине M_i в табл. 2). В почвах из 30-километровой зоны ЧАЭС масса “темных” органико-минеральных частиц в крупнозернистых фракциях составляет незначительную часть, однако они значительно обогащены ^{137}Cs . Так, несмотря на то что масса “темных” частиц M_{iB} во фракции 0.25–1.0 мм составила в АДК 4.5%, в ней содержалось 60% фракционного запаса ^{137}Cs . Во фракции 0.05–0.25 мм в “темных” частицах содержалось уже 90% фракционного запаса ^{137}Cs на 2% ее массы во фракции. При этом удельная радиоактивность этих частиц была в 400 раз выше по сравнению со “светлыми” частицами. За исключением фракции 0.25–1.00 мм аналогичные результаты получены и для АЛК. Высокая удельная активность крупного песка в этой почве, возможно, обусловлена наличием зерен зеленого цвета, имеющего более высокие сорбционные характеристики по отношению к ^{137}Cs , чем частицы кварца. Для почв Брянской области также наблюдается эффект концентрирования ^{137}Cs “темными” частицами. При этом во всех фракциях концентрация ^{137}Cs в “темных” частицах превышала его концентрацию в “светлых” частицах в 10–20 и более раз.

Эффект концентрирования ^{137}Cs “темными” частицами подтверждается их способностью селективно сорбировать ^{137}Cs . Потенциалы селективной сорбции ^{137}Cs для частиц RIP(K), измеренные по методике Вотерса с соавт. [24], а также доля сорбированного по механизму ионного обмена $^{137}\text{Cs}_{\text{ex}}^{\text{RIP}}$ приведены в табл. 4. “Темные” частицы обладают большей селективной сорбцией по сравнению со “светлыми” частицами. Так, величина селективной сорбции RIP(K)_B составила 1300–4500 мМ/кг, а RIP(K)_W – 30–500 мМ/кг. При этом селективная сорбция ^{137}Cs увеличивается с уменьшением диаметра частиц. Например, величина RIP(K)_B для АЛК увеличивается с 2770 ± 80 до 4560 ± 130 при уменьшении диаметра частиц с 0.25–1.00 мм до 0.02–0.05 мм.

Устойчивые к механическому воздействию и водонепроницаемые “темные” частицы могут быть в принципе представлены частицами свободного гумуса, углеподобными частицами и органико-минеральными частицами (первичные и вторичные минералы, склеенные гумусовыми цеменами). Экспериментальные данные свидетельствуют о том, что содержание органического углерода в “темных” частицах $C_{\text{орг}}^{\text{B}}$ составляет 7–34% (табл. 4), что существенно меньше его содержания в чистых гумусовых веществах. Селективная сорбция ^{137}Cs ,

измеренная для активированного угля МС (как аналога угледобных частиц), была крайне незначительна (около 16 мМ/кг), а высокая селективная сорбция ^{137}Cs "темными" частицами (величина $\text{RIP}(K)$ изменяется от 1600 до 4600 мМ/кг) свидетельствует о значительном содержании в них глинистых минералов.

Одним из возможных механизмов образования "темных" органо-минеральных частиц с высоким содержанием ^{137}Cs является процесс трансформации в почве органических растительных остатков. В табл. 3 приведены значения $A_{\text{в}}$ слабо разложившихся органических остатков, удаленных из почвы с помощью электризации при подготовке образцов к гранулометрическому анализу и отмытых от частичек почвы водой. Содержание ^{137}Cs в них находилось на уровне его содержания в "темных" органо-минеральных частицах или превышало эти уровни. Такие высокие концентрации ^{137}Cs , по-видимому, обусловлены следующими факторами: 1) биоконцентрированием ^{137}Cs растениями, 2) заполнением пустот полуразложившихся растительных остатков илстыми частицами почвы, которые имеют самую высокую удельную радиоактивность в почве, 3) для отобранных в 1986–1987 гг. из 30-километровой зоны ЧАЭС образцов почв загрязнением растений ^{137}Cs с атмосферными выпадениями. О влиянии биоконцентрирования говорят данные о селективной сорбции ^{137}Cs растительными остатками (табл. 4), которая в несколько раз ниже, чем селективная сорбция ^{137}Cs "темными" частицами, несмотря на то что удельная радиоактивность этих остатков зачастую выше, чем в "темных" органо-минеральных частицах. Сорбция ^{137}Cs сухими остатками зеленых растений крайне незначительна ($\text{RIP}(K) = 8$ мМ/кг). О том, что слабо разложившиеся растительные остатки содержат какое-то количество илстых частиц, свидетельствует величина доли обменно-сорбированного $^{137}\text{Cs}_{\text{ex B}}^{\text{RIP}}$ для растительных остатков, которая практически идентична значениям, определенным для минеральной части почв (25–30%).

ВЫВОДЫ

1. От двух третей до половины запаса ^{137}Cs в песчаных и супесчаных почвах, подвергшихся радиоактивному загрязнению в результате катастрофы на Чернобыльской АЭС, содержалось на гранулометрических фракциях физического песка (частицах более 0.01 мм). Использование в математических моделях, предложенных Absalom, J.P et al. [14, 15], в качестве основного почвенного параметра для расчета концентрации ^{137}Cs в поровом растворе только процентное содержание глины (частиц с диаметром <0.002 мм) не являет-

ся вполне правомерным для супесчаных и песчаных почв.

2. Несмотря на то что органо-минеральные частицы в изученных крупнозернистых фракциях почв составляют в основном только 1–5 весовых процента, в них содержалось до 90% фракционного запаса ^{137}Cs . Концентрация ^{137}Cs в "темных" частицах превышала его концентрацию в "светлых" частицах до 400 раз.

3. "Темные" частицы, по-видимому, в основном представлены органо-минеральными частицами, содержащими глинистые минералы. На это указывают высокие значения потенциала селективной сорбции ^{137}Cs ($\text{RIP}(K)_{\text{в}} = 1600\text{--}4600$ мМ/кг), характерные для глинистых минералов.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 02-05-81008).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Бондарь Ю.И., Шманай Г.С., Максимова Т.П. Распределение радионуклидов по фракциям дерново-подзолистой почвы ближней зоны ЧАЭС // Вестн. Академии Наук Белорусской ССР. Серия Химич. Навук. 1991. № 5. С. 86–90.
2. Бондарь Ю.И., Ивашикевич Л.С., Шманай Г.С., Калинин В.Н. Влияние органического вещества на сорбцию ^{137}Cs почвами // Почвоведение. 2003. № 8.
3. Булгаков А.А., Коноплев А.В., Попов В.Е., Бобовникова Ц.И., Сиверина А.А., Шкуратова И.Г. Механизмы вертикальной миграции долгоживущих радионуклидов в почвах 30-километровой зоны ЧАЭС // Почвоведение. 1990. № 10. С. 14–19.
4. Ваюнина А.Ф., Корчагина З.А. Методы исследования физических свойств почв и грунтов. М.: Высшая школа, 1973. 399 с.
5. Воронин А.Д. Основы физики почвы. М.: Изд-во МГУ, 1986. 244 с.
6. Круглов С.В., Васильева Н.А., Куринов А.Д., Алексахин Р.М. Распределение радионуклидов чернобыльских выпадений по фракциям гранулометрического состава дерново-подзолистых почв // Почвоведение. 1995. № 5. С. 551–557.
7. Попов В.Е., Кутняков И.В., Жирнов В.Г., Вирченко Е.П., Сиверина А.А., Бобовникова Ц.И. Вертикальное распределение ^{90}Sr и ^{137}Cs в аллювиальных дерновых почвах ближней зоны Чернобыльской АЭС // Почвоведение. 1994. № 1. С. 40–44.
8. Почвы. Методы определения кальция и магния в водной вытяжке. ГОСТ 26428-85. 2. Определение кальция и магния атомно-абсорбционным методом.
9. Почвы. Методы определения натрия и калия в водной вытяжке. ГОСТ 26427-85.
10. Почвы. Определение обменного кальция и обменного (подвижного) магния методами ЦИНАО. ГОСТ 26487-85.
11. Почвы. Определение емкости катионного обмена по методу Бобко–Аскинази–Алешина в модификации ЦИНАО (ГОСТ 17.4.4.01-84).

12. Практикум по агрохимии / Под ред. В.Г. Минсва. М.: Изд-во МГУ. 1989. 304 с.
13. Прохоров В.М. Миграция радиоактивных загрязнений в почвах. Физико-химические механизмы и моделирование / Под ред. Р.М. Алексахина. М.: Энергоиздат, 1981. 98 с.
14. Absalom J.P., Young S.D., Grout N.M.J., Nisbet A.F., Woodman R.F.M., Smolders E., Gillett A.G. Predicting soil to plant transfer of radiocaesium using soil characteristics // *Environmental Science and Technology*. 1999. V. 33. P. 1218–1223.
15. Absalom J.P., Young S.D., Grout N.M.J., Sanchez A., Wright S.M., Smolders E., Nisbet A.F., Gillett A.G. Predicting the transfer of radiocaesium from organic soils to plants using soil characteristics // *J. of Environmental Radioactivity*. 2001. V. 52. № 1. P. 31–43.
16. Dumat C., Staunton S. Reduced adsorption of caesium on clay minerals caused by various humic substances // *J. of Environmental Radioactivity*. 1999. V. 46. № 2.
17. Guidelines for soil description. 3rd Edition. 1990. FAO, Rome. 70 p.
18. He Q., Walling D.E. Interpreting particle size effects in the adsorption of ¹³⁷Cs and unsupported ²¹⁰Pb by mineral soils and sediments // *J. of Environmental Radioactivity*. 1996. V. 30. № 2. P. 117–137.
19. Livens F.R., Baxter M.S. Particle size and radionuclide levels in some west Cumbrian soils // *Science of the Total Environment*. 1988. V. 70. P. 1–17.
20. Sawhney B.L. Selective sorption and fixation of cations by clay minerals. A review // *Clays and Clay Minerals*. 1972. V. 20. P. 93–100.
21. Staunton S., Levaric P. Cs adsorption on the clay-sized fraction of various soils: effect of organic matter destruction and charge compensating cation // *J. of Environmental Radioactivity*. 1999. V. 45. № 2. P. 161–172.
22. Surbeck H., Voelkel H. Radionuclide content vs grain size in soil samples // *The Science of the Total Environment*. 1988. V. 69. P. 379–389.
23. Valke E., Cremers A. Sorption-desorption dynamics of radiocaesium in organic matter soils // *The Science of the Total Environment*. 1994. V. 157. P. 275–283.
24. Wauters J., Elsen A., Cremers A., Konoplev A.V., Bulgakov A.A., Comans R.N.J. Prediction of solid/liquid distribution coefficients of radiocaesium in soils and sediments. Part one: A simplified procedure for the solid phase characterisation. *Applied Geochemistry*. 1996. V. 11. P. 589–594.

Effect of ¹³⁷Cs Accumulation by Organomineral Coarse Particles in Sandy Soils Contaminated during the Chernobyl NPP Accident

V. E. Popov

Dark-colored particles in the coarse fractions of sandy soils are found to concentrate ¹³⁷Cs. These particles comprised up to 94% of the ¹³⁷Cs fractional amount in the sand and coarse-silt fractions, although their relative mass did not exceed 1-5%. The concentration of ¹³⁷Cs in the dark-colored particles exceeds that in the light-colored particles by nearly 400 times. The high values of the radiocesium interception potential (RiP(K) = 1300-4500 mM/kg) indicate the presence of clay minerals in the dark particles.