

ИСПОЛЬЗОВАНИЕ РАДИОАКТИВНЫХ ТРАССЕРОВ ДЛЯ ИЗУЧЕНИЯ ДИФфуЗИОННЫХ ПРОЦЕССОВ В ПОРИСТЫХ СРЕДАХ

Серия лабораторных экспериментов по изучению диффузии радиоактивных трассеров (^{90}Sr , ^{36}Cl) была выполнена на образцах кембрийских глин. Использование радиоактивных изотопов позволяет избежать наложения осмотических процессов, изменения миграционных форм элементов и других явлений при проведении диффузионного эксперимента. При этом оцениваются коэффициенты самодиффузии отдельных ионов, в то время как при традиционной постановке экспериментов оцениваются бинарные коэффициенты диффузии. Изучена зависимость коэффициентов диффузии от концентрации раствора и градиента концентраций.

A number of laboratory experiments to study radioactive tracers (^{90}Sr , ^{36}Cl) diffusion has been carried out on Cambrian clays samples. The use of radioactive tracers offers osmotic processes elimination, this also permitting to avoid a change in element speciation in solution and other phenomena, while making the diffusion experiment. In this case self-diffusion coefficients of individual ions are estimated whereas the use of conventional methods results in studying binary diffusivity only. Diffusivity dependence on solution concentration and concentration gradient has been investigated.

При прогнозе миграции радиоактивных отходов сквозь глинистые барьеры, а также оценке их дальнейшей миграции в трещиновато-пористых породах возникает необходимость определения коэффициентов диффузии отдельных ионов в горных породах. Традиционные методики, основанные на использовании химических трассеров, имеют следующие недостатки:

- возможно определение только бинарных коэффициентов диффузии;
- необходимо поддержание высоких градиентов концентраций для обеспечения точности анализа;
- возможны трансформации физико-химических и механических свойств среды в процессе экспериментов;
- наложение на собственно диффузионный процесс вторичных эффектов (осмос, возникновение мембранных потенциалов и др.).

Избежать перечисленных недостатков можно, применяя радиоактивные трассеры,

позволяющие изучать диффузионные свойства сред в режиме самодиффузии при отсутствии градиентов химического потенциала.

Проведены четыре серии экспериментов с использованием в качестве индикаторов радиоактивных изотопов ^{36}Cl и ^{90}Sr :

- 1) самодиффузия, 3,0 н раствор SrCl_2 ;
- 2) самодиффузия, 0,1 н раствор SrCl_2 ;
- 3) диффузия с градиентом концентраций, дистиллированная вода, 3,0 н раствор SrCl_2 ;
- 4) диффузия с градиентом концентраций, дистиллированная вода, 0,1 н раствор SrCl_2 .

Все эксперименты были выполнены с пастами тугопластичной консистенции, приготовленными из образцов синих кембрийских глин. Образцы глин были отобраны в карьере рядом с пос. Никольское из недавно вскрытых горизонтов и парафинировались непосредственно на месте отбора.

Тип эксперимента	Изотоп	Пористость	Длина колонки, см	Коэффициент диффузии, м ² /с
Самодиффузия, 3,0 н SrCl ₂	³⁶ Cl	0,59	24,4	3,9e-10
Самодиффузия, 3,0 н SrCl ₂	⁹⁰ Sr	0,62	25,0	2,80e-9
Самодиффузия, 0,1 н SrCl ₂	³⁶ Cl	0,60	23,5	3,9e-10
Самодиффузия, 0,1 н SrCl ₂	⁹⁰ Sr	0,60	22,2	1,05e-9
Неизотонические условия, 3,0 н SrCl ₂	³⁶ Cl	0,62	25,0	2,5e-10
Неизотонические условия, 3,0 н SrCl ₂	⁹⁰ Sr	0,66	25,3	2,25e-9
Неизотонические условия, 0,1 н SrCl ₂	³⁶ Cl	0,63	25,0	4,5e-10
Неизотонические условия, 0,1 н SrCl ₂	⁹⁰ Sr	0,61	24,0	5,25e-9

В естественном залегании кембрийские глины, широко распространенные в Ленинградской обл., неоднородные и трещиноватые.

Перед началом эксперимента образцы глины были перетерты до размеров отдельных агрегатов менее 1 мм. Далее глина была обработана следующим образом: к 0,4-0,5 кг глины добавлялся 1 л раствора SrCl₂ концентрацией 0,1 или 3 н (в зависимости от дальнейших условий проведения эксперимента). После тщательного перемешивания проба герметично закрывалась и выдерживалась не менее суток в герметично закрытом химическом стакане. Далее раствор отделялся от грунта методом центрифугирования при скорости 3 тыс. оборотов в минуту и отбрасывался. Глина обрабатывалась еще дважды аналогичным раствором для полного насыщения обменных позиций ионами стронция и замещения порового раствора на хлорид стронция соответствующей концентрации. Для первых двух экспериментов на этом подготовка глины заканчивалась, а в третьем случае, после насыщения обменного комплекса стронцием, глина многократно обрабатывалась дистиллированной водой, пока концентрация хлоридов не снижалась до значений менее 0,001 н. Концентрация хлоридов контролировалась аргентометрическим методом.

После обработки образцы глины тщательно перемешивались, помещались в химические цилиндры небольшими порциями и утрамбовывались. Высота слоя глины во всех экспериментах составляла 20-25 см. Поверхность глины закрывалась фильтром,

который фиксировался пластиковым кольцом. Далее колонка с глиной заливалась раствором стабильного хлорида стронция соответствующей концентрации и выдерживалась 3-5 суток.

Из подготовленных цилиндрических колонок удалялся раствор стабильного хлористого стронция над слоем глины и на его место вводился исходный радиоактивный раствор известной активности, приготовленный на основе стабильного SrCl₂ той же концентрации, которой насыщалась порода. В процессе опытов соблюдаются условия герметичности экспериментальной системы «глина – раствор» для исключения испарения рабочих растворов.

Вторая половина данного эксперимента связана с исследованием миграции радионуклидов из загрязненных грунтов, насыщенных солями хлористого стронция в раствор той же концентрации хлористого стронция, но без радиоактивного изотопа. Для этого остатки отработанного радиоактивного раствора выше слоя глины декантируют и на его место вводится раствор стабильного хлористого стронция объемом 70 мл. Последовательность отбора следующая: в течение нескольких минут после смены раствора (для определения начальной концентрации) две пробы с интервалом 30 мин., три пробы с интервалом 1 ч, две пробы с интервалом 2 ч и по две пробы в сутки в течение трех суток.

Для интерпретации опытных данных использовались известные аналитические решения. Рассчитанные значения коэффициентов диффузии приведены в таблице.

Выводы

1. Использование радиоактивных изотопов позволяет избежать наложения осмотических процессов, изменения миграционных форм элементов и других явлений, связанных с изменением концентраций отдельных компонентов в растворе, при проведении диффузионного эксперимента. При этом оцениваются коэффициенты самодиффузии отдельных ионов, в то время как при

традиционной постановке экспериментов оцениваются бинарные коэффициенты диффузии.

2. При концентрации рабочего раствора SrCl_2 0,1 н не было выявлено существенных различий в протекании диффузионного процесса в изотонических и неизотонических условиях, но в случае 3,0 н раствора SrCl_2 скорости самодиффузии в растворе были выше.

Работа поддержана грантом INTAS № 99-01810.