

# О СОРБЦИИ РАДИОНУКЛИДОВ ПРИ ОПЕРАТИВНОМ КОНТРОЛЕ ВОДНОЙ СРЕДЫ

С. И. Хлопушина

Морской гидрофизический институт  
НАН Украины

г. Севастополь, ул. Капитанская, 2  
E-mail: oaoi@alpha.mhi.iuf.net

*Приведены результаты математического моделирования сорбции гамма-излучающего изотопа из водной среды на сорбенте в форме сферических гранул.*

**Введение.** Оперативный контроль за радиоактивным загрязнением водной среды можно проводить с помощью комплекса аппаратуры, в котором производится одновременно концентрирование гамма-излучающего изотопа на селективном сорбенте и измерение его активности [1].

В настоящее время разработано большое количество самых разнообразных сорбентов [2, 3, 4, 5]. Для оптимального выбора сорбента, который необходимо использовать в комплексе аппаратуры, следует выполнить математическое моделирование сорбции. На некоторых вопросах сорбции различных сорбентов мы остановимся ниже.

**Постановка задачи.** Сорбент в таких комплексах должен работать в динамическом режиме, поэтому наиболее подходящей формой являются сферические гранулы, которые заполняют контейнер вокруг датчика. Через них прокачивается анализируемая вода.

Рассмотрим сферическую гранулу сорбента радиусом  $R$ . Гранула находится в потоке воды. Предположим, что вблизи поверхности сферической гранулы концентрация радиоактивного изотопа  $A$  в воде равна  $C_{AS}$ . Изотоп диффундирует через извилистые каналы в сорбент и на его поверхности сорбируется.

Составим баланс количества изотопа для сферического слоя толщиной  $\Delta r$  внутри частицы сорбента [6].

$$N_{Ar/r} \cdot 4\pi r^2 - N_{Ar/r+\Delta r} \cdot 4\pi(r+\Delta r)^2 + R_A \cdot 4\pi r^2 \Delta r = 0, \quad (1)$$

где  $N_{Ar/r}$  - число ионов изотопа  $A$ , проходящих в направлении координаты  $r$  через сферическую поверхность на расстоянии  $r$  от центра сферы;

$N_{Ar/r+\Delta r}$  - число ионов изотопа  $A$ , проходящих в направлении координаты  $r$  через сферическую поверхность на расстоянии  $r + \Delta r$  от центра сферы;

$R_A \cdot 4\pi r^2 \Delta r$  - характеризует образование ионов изотопа  $A$ , которые появляются в сорбенте толщиной  $\Delta r$ .

Разделив все члены уравнения (1) на  $4\pi \Delta r$  и принимая, что  $\Delta r \rightarrow 0$ , получим

$$\lim_{\Delta r \rightarrow 0} \frac{(r^2 N_{Ar/r+\Delta r} - r^2 N_{Ar/r})}{\Delta r} = r^2 R_A \quad (2)$$

или

$$\frac{d}{dr}(r^2 N_{Ar}) = r^2 R_A. \quad (3)$$

В выражении (3) значения  $N_{Ar}$  и  $R_A$  являются усредненными в некоторой малой области в сравнении с  $R$ .

Будем считать, что в пористой среде «эффективный коэффициент диффузии»  $D_A$  для изотопа  $A$  определяется из выражения (3):

$$N_{Ar} = -D_A \frac{dc_A}{dr}, \quad (4)$$

$c_A$  - концентрация изотопа  $A$ , содержащегося внутри пор. Подставляя выражение (4) в уравнение (3), получим

$$-D_A \frac{1}{r^2} \frac{d}{dr}(r^2 \frac{dc_A}{dr}) = R_A. \quad (5)$$

Будем считать, что изотоп  $A$  вступает в химическую реакцию первого порядка, протекающую на поверхности извилистых каналов сферических гранул. В этом случае  $R_A$  можно представить в виде

$$R_A = -k_1 a c_A,$$

где  $a$  - доступная поверхность сорбента в единице объема,

$k_1$  - константа скорости сорбции на поверхности. Подставив соотношение для  $R_A$  в уравнение (5), получим

$$D_A \frac{1}{r^2} \frac{d}{dr}(r^2 \frac{dc_A}{dr}) = k_1 a c_A. \quad (6)$$

Границные условия для этого уравнения:

$$c_A = c_{AS} \text{ при } r = R; \quad c_A = 0 \text{ при } r = 0.$$

Решение уравнения (6) с данными граничными условиями имеет вид:

$$\frac{c_A}{c_{AS}} = \left( \frac{R}{r} \right) \frac{\operatorname{sh} \sqrt{k_1 a / D_A} r}{\operatorname{sh} \sqrt{k_1 a / D_A} R}. \quad (7)$$

Пусть  $N_{AS}$  - поток изотопа  $A$  в воде,  $N'_{AS}$  - поток на поверхности сферической гранулы  $r = R$ , т.е.

$$\begin{aligned} N'_{AS} &= 4\pi R^2 N_{AS} = \\ &= -4\pi R^2 D_A \frac{dc_A}{dr} \Big|_{r=R} \end{aligned} \quad (8)$$

Используя уравнение (7) для выражения  $C_A$  и определения производной  $\frac{dc_A}{dr}$  от сложной функции, получим

$$\begin{aligned} \frac{dc_A}{dr} &= \frac{R}{r} \left( \operatorname{cth} \sqrt{\frac{k_1 a}{D_A}} \cdot \frac{r}{R} - \right. \\ &\quad \left. - \frac{1}{r} \frac{\operatorname{sh} \sqrt{k_1 a / D_A} r}{\operatorname{sh} \sqrt{k_1 a / D_A} R} \right). \end{aligned} \quad (9)$$

При  $r = R$  формула (9) дает соотношение

$$\frac{dc_A}{dr} \Big|_{r=R} = \operatorname{cth} \sqrt{\frac{k_1 a}{D_A}} R - \frac{1}{R}. \quad (10)$$

Подставляя (10) в (8), получим

$$\begin{aligned} N'_{AS} &= 4\pi R D_A c_{AS} \cdot \\ &\cdot \left( 1 - \sqrt{\frac{k_1 a}{D_A}} R \operatorname{cth} \sqrt{\frac{k_1 a}{D_A}} R \right). \end{aligned} \quad (11)$$

Это уравнение дает возможность вычислить скорость сорбции изотопа на отдельной сферической частице радиусом  $R$ , зависящую от параметров рассматриваемого процесса диффузии.

Если вся активная поверхность сферической гранулы подвергается воздействию потока с концентрацией  $c_{AS}$ , изотопу  $A$  не нужно диффундировать через поры к месту сорбции и скорость сорбции будет определяться произведением площади доступной поверхности на скорость сорбции на поверхности, т.е.

$$N'_{A0} = \left( \frac{4}{3} \pi R^3 \right) a (-k_1 c_{AS}). \quad (12)$$

Поделив уравнение (11) на (12), получим

$$\begin{aligned} \frac{N'_{AS}}{N'_{A0}} &= \\ &= - \frac{3D_A \left( 1 - \sqrt{\frac{k_1 a}{D_A}} R \operatorname{cth} \sqrt{\frac{k_1 a}{D_A}} R \right)}{k_1 a R^2}. \end{aligned} \quad (13)$$

Таблица 1 – Значения  $k$ ,  $N'_{AS}$ ,  $\eta_A$  при различных параметрах  $R$  и  $D_A$

$R$ , см	0.1	0.2	0.3	0.4	0.5	$D_A$
$k$	100	200	300	400	500	0.001 см <sup>2</sup> /с
$\eta_A$	-0.06	-0.02	-0.011	0.009	0.013	
$N'_{AS}$	$0.25 \cdot 10^{-5}$	$0.67 \cdot 10^{-5}$	$1.24 \cdot 10^{-5}$	$-2.41 \cdot 10^{-5}$	$-6.8 \cdot 10^{-5}$	
$k$	31.6	63.2	94.8	126.4	158.0	
$\eta_A$	0.49	0.13	0.06	0.04	0.02	
$N'_{AS}$	$-2.1 \cdot 10^{-5}$	$-4.37 \cdot 10^{-5}$	$-6.78 \cdot 10^{-5}$	$-10.73 \cdot 10^{-5}$	$-10.47 \cdot 10^{-5}$	0.01 см <sup>2</sup> /с
$k$	10	20	30	40	50	0.1 см <sup>2</sup> /с
$\eta_A$	0.55	0.18	-0.11	-0.11	-0.21	
$N'_{AS}$	$-2.31 \cdot 10^{-5}$	$-6.05 \cdot 10^{-5}$	$12.44 \cdot 10^{-5}$	$29.5 \cdot 10^{-5}$	$125.7 \cdot 10^{-5}$	
$k$	7	14	21	28	35	
$\eta_A$	0.63	0.22	-0.18	-0.42	0.2	
$N'_{AS}$	$-2.65 \cdot 10^{-5}$	$-7.4 \cdot 10^{-5}$	$20.4 \cdot 10^{-5}$	$112.6 \cdot 10^{-5}$	$-104.7 \cdot 10^{-5}$	0.2 см <sup>2</sup> /с

Введя безразмерный параметр

$$k = \sqrt{k_1 a / D_A} R, \quad (14)$$

окончательно получим

$$\frac{N'_{AS}}{N'_{A0}} = \frac{3}{k^2} (k \operatorname{cth} k - 1) = \eta_A. \quad (15)$$

Параметр

$$\eta_A = \frac{3}{k^2} (k \operatorname{cth} k - 1) \quad (16)$$

назовем фактором эффективности.

Выражение  $N'_{AS} = N'_{A0} \cdot \eta_A$  описывает сопротивление со стороны диффузии процессу сорбции в целом.

**Результаты расчетов.** На основе приведенной выше модели были выполнены численные расчеты для пористых сферических гранул различного радиуса  $R$  при различных значениях «эффективного коэффициента диффузии»  $D_A$ .

Рассматривались гранулы с радиусом от 0.1 до 0.5 см,  $D_A = 0.001; 0.01; 0.1;$

$0.2 \text{ см}^2/\text{с}$ ,  $a = 10^3 \text{ л/см}$ ,  $k_1 = 1 \text{ см/с}$ , концентрация изотопа  $A$  равна  $c_{AS} = 10 \text{ Бк/м}^3$ .

Рассчитанные по формулам (14) – (16) значения  $k \cdot N'_{AS} \cdot \eta_A$  представлены в таблице 1. Величины  $k, \eta_A$  – безразмерные, величина  $N'_{AS}$  имеет размерность скорости —  $\text{Бк/с}$ .

По таблице 1 проанализируем результаты расчетов для сферических частиц радиусом  $R = 0.1\text{--}0.5 \text{ см}$ .

На рис. 1 представлена зависимость фактора эффективности  $\eta_A$  от радиуса частицы  $R$  при различных значениях коэффициента диффузии  $D_A$ . По оси абсцисс – безразмерное число  $k$ , рассчитанное по формуле (14). Числам  $k = 7, 10, 31.6, 100$  соответствуют значения  $D_A = 0.2, 0.1, 0.01, 0.001 \text{ см}^2/\text{с}$ .

Кривая 1 – для гранул с  $R = 0.1 \text{ см}$ , кривая 2 –  $R = 0.2 \text{ см}$ .

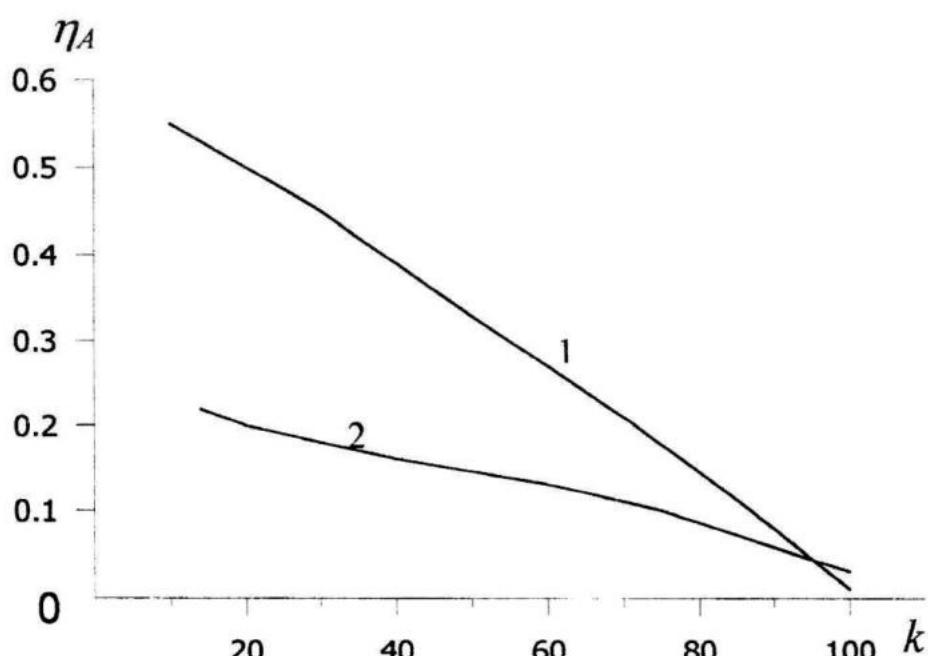


Рис. 1 – Зависимость фактора эффективности  $\eta_A$  от числа  $k$  для сферических сорбентов радиусом 0.1 см (1) и 0.2 см (2)

Как видно из рис. 1, фактор эффективности  $\eta_A$  плавно падает с уменьшением коэффициента диффузии  $D_A$ , и при значении  $D_A = 0.001 \text{ см}^2/\text{с}$   $\eta_A$  практически равен 0 для частиц с радиусом  $R = 0.1$  и

0.2 см.

На рис. 2 представлена зависимость фактора эффективности  $\eta_A$  для частиц с радиусом  $R = 0.1$  и 0.2 см и различных значениях коэффициента диффузии  $D_A$ .

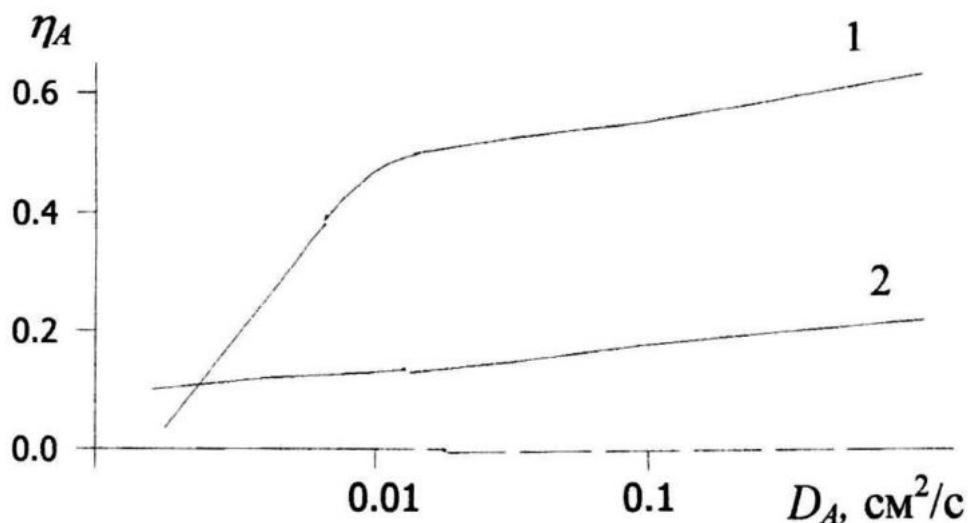


Рис. 2 – Фактор эффективности  $\eta_A$  в зависимости от коэффициента диффузии: для частиц с радиусом 0.1 см (1) и 0.2 см (2)

При увеличении концентрации радионуклидов от 10 до 50 Бк/м<sup>3</sup> значения водного потока изотопа как на поверхности гранул, так и на всей поверхности гранул с пустотами, согласно формулам (12) и (15), увеличивается пропорционально значениям  $c_{AS}$ .

**Заключение.** Полученные зависимости фактора эффективности и скорости сорбции от коэффициента диффузии для частиц различного радиуса позволяют оптимальным образом выбирать сорбент при разработке аппаратурных комплексов для оперативного контроля радиоактивности водной среды.

## ЛИТЕРАТУРА

1. Батраков Г.Ф., Лукашин И.Ф. Комплекс аппаратуры для исследования тонкой структуры радиоизотопных полей в океанах и морях. В кн. «Экологическая безопас-

ность прибрежной и шельфовой зон и комплексное использование ресурсов шельфа. Севастополь: МГИ НАНУ, 2001, с. 59-61.

2. Доманов М.М., Кадочигов Н.Н., Нелепо Б.А. Сорбционное извлечение цезия-137 из распредненных морских вод. Океанология, 1975, т. 15, с. 163-167.

3. Крылов В.Н., Гедеонов Л.И., Раков Н.А. и др. Неорганические сорбенты в радиохимическом анализе. Радиохимия, 1979, т. 15, с. 654-658.

4. Батраков Г.Ф., Еремеев В.Н., Копырин А.А. и др. Бериллий-7 в водах океанов и морей. Киев: ИГН АН Украины, 1984, 44 с.

5. Батраков Г.Ф., Степанов А.В., Крылов В.Н. и др. Концентрирование цезия-137 из морской воды некоторыми селективными сорбентами. Морские гидрофизические исследования, Севастополь: МГИ АН Украины, 1977, N 3(78), с.155-160.

6. Берд Р., Стьюарт В., Лайтфут Е. Явления переноса. Москва: Химия, 1974, 687 с.