



تعیین ضریب توزیع توریم در خاک آبرفت پسماندگاه انارک

امیرمسعود طاهریان^۱، علی مالکی^۱، سمانه ذوالقدری^۲، حسن یوسف نیا^{۳*}، زهرا شیر یکتا^۲، سمانه صرفی^۲، حسن آقاییان^۲، سعید مومنزاده^۱
۱. شرکت پسمانداری صنعت هسته‌ای ایران، سازمان انرژی اتمی ایران، کد پستی: ۱۴۳۹۹۵۵۹۳۱، تهران-ایران
۲. پژوهشکده چرخه سوخت هسته‌ای، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، سازمان انرژی اتمی ایران، صندوق پستی: ۱۱۳۶۵-۸۴۸۶، تهران-ایران
۳. پژوهشکده کاربرد پرتوها، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، سازمان انرژی اتمی ایران، صندوق پستی: ۱۱۳۶۵-۳۴۸۶، تهران-ایران

*Email: hyousefnia@aeoi.org.ir

مقاله‌ی پژوهشی

تاریخ دریافت مقاله: ۴۰۰/۴/۳۰ تاریخ پذیرش مقاله: ۴۰۰/۶/۲۷

چکیده

اندازه‌گیری ضرایب توزیع یکی از ضروری‌ترین تمهیدات در تحلیل ایمنی پسماندگاه‌ها و مدیریت ایمن پسماندهای پرتوزا است. نظر به اهمیت ویژگی‌های هسته پرتوزای توریم، در این مطالعه ضریب توزیع توریم در خاک آبرفت پسماندگاه انارک به روش ناپیوسته تعیین شد و دو پارامتر غلظت توریم و دانه‌بندی خاک مورد مطالعه قرار گرفت. همچنین رفتار جذبی توریم نیز به روش پیوسته با بررسی اثر غلظت توریم و ارتفاع خاک مطالعه شد. مقدار میانگین ضریب توزیع توریم در خاک مذکور با استفاده از روش ناپیوسته برابر با 110960 L/kg محاسبه گردید. بررسی رفتار جذبی به روش پیوسته حاکی از جذب سطحی بالای توریم در خاک در نتیجه پیوند قوی ایجاد شده بین یون و جاذب بود. نتایج نشان داد که با کاهش اندازه ذرات خاک، ضریب توزیع افزایش می‌یابد. در خصوص بررسی اثر غلظت در ضریب توزیع توریم، در محدوده آزمایش شده، ابتدا روند افزایشی و سپس روند کاهشی مشاهده گردید. نتایج به‌دست آمده در این پژوهش با نتایج سایر مطالعات انجام شده بر روی هسته پرتوزای توریم مقایسه شد که تطابق خوبی را با سایر مطالعات نشان داد.

کلیدواژه‌ها: ضریب توزیع، توریم، پسماندگاه، انارک

Distribution coefficient determination of thorium on alluvium soil of Anarak Nuclear Repository

A.M. Taherian¹, A. Maleki¹, S. Zolghadri², H. Yousefnia^{3*}, Z. Shiri-Yekta², S. Sarfi², H. Aghayan², S. Momenzadeh¹
1. Iran Radioactive Waste Company, AEOI, Postcode: 1439955931, Tehran - Iran

2. Nuclear Fuel Cycle Research School, Nuclear Science and Technology Research Institute, AEOI, P.O.Box: 11365-8486, Tehran-Iran
3. Application Radiation Research School, Nuclear Science and Technology Research Institute, AEOI, P.O.Box: 11365-3486, Tehran-Iran

Research Article

Received 21.7.2021, Accepted 18.9.2021

Abstract

Calculation of distribution coefficients is one of the essential provisions in the safety assessment of radioactive waste repository and safe management of radioactive waste. Due to the importance and characteristics of thorium radionuclide in radioactive waste inventory, the distribution coefficient of thorium in the alluvium soil of Anarak Radioactive Waste Repository was determined by the Batch method two parameters of thorium concentration and soil granulation were studied. Also, the Flow-Through method studied the adsorption behavior of thorium has investigated the effect of thorium concentration and soil height. The average value of thorium distribution coefficient in Anarak soil was calculated 110960 L/kg using the Batch method. The study of adsorption behavior by the Flow-Through method demonstrated high uptake of thorium in the soil due to the strong bond created between the ion and the adsorbent. The results showed that the distribution coefficient increases with the decrease of soil particle size. Regarding the effect of concentration on the thorium distribution coefficient, first, an increasing trend and a decreasing trend were observed in the test range. The results obtained in this study were compared with the results of other studies on thorium radionuclide, which showed a good agreement with other studies.

Keywords: Distribution coefficient, Thorium, Repository, Anarak



۱. مقدمه

تحلیل ایمنی یکی از ضرورت‌های مدیریت ایمن پسماندهای پرتوزا می‌باشد. در محاسبات مربوط به تحلیل ایمنی، شناسایی پارامترهای مرتبط با جذب سطحی هسته‌های پرتوزا توسط خاک و مقدار انتقال داده شده‌ی آن‌ها توسط آب با توجه به تأثیرگذاری بر انسان و محیط زیست اهمیت ویژه‌ای دارد. یکی از مهم‌ترین پارامترها که می‌تواند در نتایج محاسبات تحلیل ایمنی تأثیرگذار باشد، ضرایب توزیع مواد پرتوزا در خاک‌های منطقه مورد مطالعه است. ضریب توزیع که به صورت نسبت مقدار جاذب جذب شده در واحد جرم خاک به مقدار جاذب باقی‌مانده در محلول در حالت تعادل تعریف می‌شود [۱]، به طور گسترده در تعیین سرنوشت هسته‌های پرتوزای آزاد شده از پسماند در محیط استفاده می‌شود و به شدت به ویژگی‌های خاک و منطقه وابسته است [۲].

از آن‌جا که دامنه تغییرات ضرایب توزیع در یک نوع خاک می‌تواند تا مرتبه ۳ (هزار برابر) تغییر کند [۳]، بر این اساس، آژانس بین‌المللی انرژی اتمی به کشورهای دارنده تأسیسات دفن نزدیک سطح توصیه نموده است که ضرایب توزیع مختص به سایت خود را در زمان انجام تحلیل ایمنی استفاده نمایند [۴]. تأثیرگذاری ضرایب توزیع در نتایج ارزیابی ایمنی به گونه‌ای است که با استفاده از آنالیز حساسیت نمی‌توان پیش‌بینی دقیقی از تغییرات نتایج به دست آورد. با عنایت به تأسیس پسماندگاه هسته‌ای انارک و نظر به لزوم تحلیل ایمنی این پسماندگاه به منظور اطمینان از سلامت انسان و محیط زیست در طول دوره بهره‌برداری و پس از بستن سایت، تعیین ضرایب توزیع عناصر پرتوزای موجود در پسماندها در خاک و آب پسماندگاه انارک ضروری به نظر می‌رسد.

امروزه با توجه به محدود بودن منابع اورانیوم و مزایای چرخه سوخت توریم در مقایسه با چرخه سوخت اورانیوم، جایگزینی چرخه سوخت اورانیوم با توریم مورد توجه بسیاری از کشورها قرار گرفته است. از این رو آژانس حفاظت محیط زیست ایالت متحده آمریکا (EPA) [۱]، در سال ۱۹۹۹ در فاز اول پروژه "درک تغییرات در مقادیر ضرایب توزیع" به تعیین ضرایب توزیع بعضی از عناصر از جمله توریم در خاک می‌پردازد و دلیل انتخاب توریم را اولویت آن در فعالیت‌های مرتبط با تحلیل ایمنی بیان می‌دارد [۱].

بیش از ۹۹٪ توریم طبیعی را توریم-۲۳۲ تشکیل می‌دهد که با توجه به نیمه‌عمر بالا (۱۰۱۰×۱۰^۴ سال) و عملکرد

زیستی آن در بدن از سمیت پرتوی بالایی برخوردار است و چنانچه این عنصر پرتوزا در مقادیر بیش‌تر از حدود تعیین شده در محیط زیست، راه یافته و انسان را آلوده سازد، می‌تواند به عنوان خطری جدی برای سلامت انسان و محیط پیرامون آن محسوب گردد. هسته‌های پرتوزای موجود در زنجیره واپاشی توریم-۲۳۲، می‌توانند ارگان‌های ریه، استخوان و کبد را به مخاطره بیندازند. رادیوم-۲۲۸ و محصولات دختر این هسته پرتوزای، به عنوان "جستجوگرهای استخوان" شناخته می‌شوند و در داخل بدن به بافت استخوانی مهاجرت کرده و در آن متمرکز می‌شوند. تابش این مواد پرتوزا می‌تواند باعث ایجاد سرطان‌های استخوان و سایر اختلالات استخوانی شود. از این‌رو، تعیین ضریب توزیع توریم حایز اهمیت ویژه‌ای است [۵].

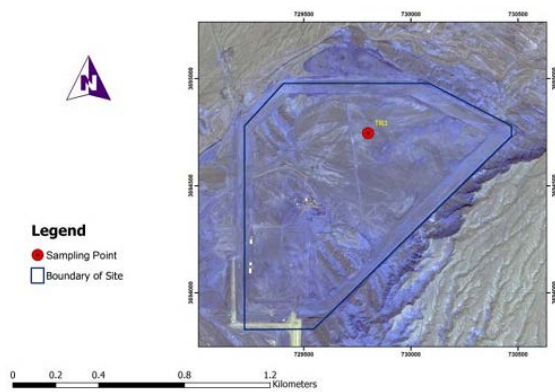
در حالی که ۵ روش از قبیل روش ناپیوسته (بج) [۳]، روش پیوسته (ستونی) [۴]، روش ناپیوسته در محل [۵]، روش مدل‌سازی در محل [۶] و روش Koc^v برای تعیین ضریب توزیع عناصر گزارش شده است، تکنیک‌های استفاده شده و مفروضات اساسی هر یک از روش‌ها کاملاً متفاوت بوده و مقادیر ضریب توزیع به دست آمده از هر یک از این روش‌ها می‌توانند متفاوت باشد [۱]. در این بین، روش بج و روش ستونی به ترتیب مرسوم‌ترین روش برای تعیین ضریب توزیع می‌باشند [۶-۷]. باید توجه نمود که روش‌های مدل‌سازی در محل و روش ناپیوسته در محل در هنگام بهره‌برداری مورد استفاده قرار گرفته و روش Koc تنها برای مواد آلی قابل استفاده است.

ضریب توزیع توریم به روش بج در منابع مختلفی گزارش شده است، لیکن مقادیر ارایه شده از ۸ L/kg تا ۳۰۰۰۰۰ L/kg متغیر است [۸-۱۲]. پارامترهای مختلفی از جمله جاذب (خاک)، محلول (آب زیرزمینی آلوده شده)، آلاینده (غلظت) و جزییات آزمایشگاهی (روش‌های جداسازی و زمان تماس) بر ضریب توزیع نوکلید اثرگذار هستند. لذا مقادیر ضریب توزیع یک عنصر می‌تواند بسیار متفاوت باشد و در تحلیل ایمنی یک پسماندگاه باید سعی نمود که شرایط آزمایش را تا حد امکان به شرایط واقعی محل، نزدیک انتخاب نمود.

در این پژوهش، به منظور تحلیل ایمنی پسماندگاه انارک، ضریب توزیع توریم در خاک پسماندگاه انارک به روش ناپیوسته تعیین شد. به منظور واقعی‌تر نمودن شرایط از آب زیرزمینی

2. Bone Seekers
3. Laboratory Batch Methods
4. Laboratory Flow-Through Method
5. Field-Batch Method
6. Field Modeling Method
7. Koc Method





شکل ۱. موقعیت نمونه برداشت شده در محل پسماندگاه انارک.

جدول ۱. موقعیت نمونه برداشت شده

UTM Y	UTM X	نام محل
۳۶۹۴۷۴۵	۷۲۹۸۰۰	TR۳

اندازه‌گیری pH و EC خاک به ترتیب بر اساس روش‌های استاندارد ASTM D4972 و ASTM D1125 انجام پذیرفت [۱۳-۱۴]. وزن مخصوص خاک نیز بر اساس روش استاندارد پیشنهاد شده توسط ASTM-D7263-21 صورت پذیرفت [۱۵]. بافت خاک به روش هیدرومتري و از طریق تعیین مقادیر رس، سیلت و شن بر اساس استاندارد ASTM-D422-63 مشخص گردید [۱۶]. برای تعیین ظرفیت تبادل کاتیونی خاک از روش بور^۱ و از استاندارد ASTM-D7503 استفاده گردید [۱۷]. مقدار مواد آلی موجود در خاک به وسیله LOI و از طریق اندازه‌گیری وزن خشک نمونه قبل از حرارت‌دهی و بعد از حرارت‌دهی در ۵۵۰ درجه سانتی‌گراد و بر طبق استاندارد ASTM-D2974 تعیین شد [۱۸]. آزمایش درصد رطوبت خاک با هدف تعیین درصد وزنی آب در خاک نسبت به دانه‌های خاک و بر اساس روش استاندارد ASTM D2216 صورت پذیرفت [۱۹]. مقادیر و نوع کانی‌های تشکیل‌دهنده با استفاده از آنالیز پراش اشعه ایکس (XRD) و آنالیز فلورسانس اشعه ایکس (XRF) مشخص شد.

با توجه به این‌که هدف از انجام این پروژه، تعیین ضریب توزیع توریم در خاک با دانه‌بندی‌های مختلف می‌باشد، دانه‌بندی خاک با استفاده از الک‌های شماره ۵ و ۲۰۰ به ترتیب با اندازه چشمه ۴ و ۰٫۰۷۵ میلی‌متر انجام پذیرفت. بدین ترتیب آزمایشات برای خاک با سه نوع دانه‌بندی مختلف: طبیعی (عبوری از الک ۵)، خاک بین الک ۵ و ۲۰۰ و ریزدانه (عبوری از الک ۲۰۰) انجام شد.

انارک استفاده شد. با توجه به اثر بعضی از خصوصیات فیزیکی و شیمیایی آب و خاک بر ضریب توزیع، آب و خاک منطقه پسماندگاه انارک تحت آنالیزهای مختلف از قبیل آنالیز پلاسمای کوپل شده القایی، آنالیز پراش اشعه ایکس و آنالیز فلورسانس اشعه ایکس قرار گرفت. دو پارامتر دانه‌بندی خاک و غلظت محلول توریم مورد بررسی قرار گرفت. همچنین رفتار جذبی توریم در خاک انارک به روش پیوسته بررسی و با دو پارامتر ارتفاع ستون و غلظت توریم ارزیابی شد.

۲. روش کار

۱۰۲ مواد و تجهیزات

نمونه خاک از محل آبرفت پسماندگاه انارک و تا عمق ۱ متر روی سنگ بستر تهیه شد. همچنین نمونه آب موجود در ترانشه تحقیقاتی در داخل پسماندگاه به عنوان نماینده شاخص کیفی آب پسماندگاه نیز فراهم شد. برای اندازه‌گیری میزان غلظت یون‌ها در آب مذکور، از آنالیز پلاسمای کوپل شده القایی (ICP) و آنالیز کروماتوگرافی یونی (IC) و از دستگاه ICP مدل OPTIMA 7300 DV (ساخت کشور آمریکا) و دستگاه AAS مدل Varian Spectra AA 200 (ساخت کشور آمریکا) استفاده شد. برای تعیین کانی‌های تشکیل‌دهنده خاک از آنالیز پراش اشعه ایکس (XRD) و به منظور تعیین اکسیدهای اصلی و فرعی و عناصر جزئی خاک از آنالیز فلورسانس اشعه ایکس (XRF) و از دستگاه XRD مدل PW 1800 (ساخت کارخانه PHILIPS) و دستگاه XRF مدل ۲۴۰۴ (ساخت کارخانه PHILIPS) استفاده گردید. آنالیزهای XRD و XRF نمونه خاک در آزمایشگاه کانساران بینالود انجام پذیرفت. دستگاه سانتریفیوژ مدل MISTRAL 1000 (ساخت شرکت MSE) و دستگاه شیکر مدل WPE 45 (ساخت شرکت MEMMERT) برای انجام آزمایشات مرتبط با تعیین ضریب توزیع مورد استفاده قرار گرفت. برای تعیین غلظت اولیه و غلظت باقی‌مانده توریم پس از مجاورت با خاک از دستگاه ICP-MS مدل DRC 9000 (ساخت شرکت PerkinElmer) استفاده گردید. همچنین در روش پیوسته از پمپ پریستالیتیک، ساخت شرکت Heidolph استفاده شد.

۲۰۲ آنالیز خاک و آب پسماندگاه انارک

موقعیت نمونه خاک برداشت شده برای انجام آزمایشات ضرایب توزیع از محل پسماندگاه انارک در شکل ۱ نشان داده شده است. همچنین موقعیت جغرافیایی نقطه مورد نظر در جدول ۱ ارائه شده است.

1. Bower Method



حاوی آلایندة توریم با غلظت مشخص به ستون اضافه گردید. به منظور بررسی اثر غلظت، محلول‌های توریم با غلظت ۵۰، ۱۰۰ و ۲۰۰ میلی‌گرم بر لیتر در نظر گرفته شده و خروجی پمپ در هر ۵ دقیقه در ویال‌های شیشه‌ای جداگانه جمع گردید. غلظت توریم در نمونه‌های خروجی از پمپ تعیین شده و نمودارهای غلظت لحظه‌ای آلایندة به غلظت اولیه برحسب زمان ترسیم شدند.

۳. نتایج و بحث

۱.۳ آنالیز خاک و آب منطقه

در حالی‌که مطالعات مختلفی بر روی تعیین ضرایب توزیع هسته‌ای پرتوزا در خاک انجام گرفته است، نتایج این مطالعات نشان می‌دهد که مقادیر ضرایب توزیع بر اساس نوع خاک و شرایط فیزیکی و شیمیایی خاک‌ها می‌تواند مقادیری با بازه متفاوت را در برگیرد. بر اساس نتایج تحقیقات مختلف، حرکت هسته‌ای پرتوزا در خاک تحت تأثیر فاکتورهای مختلف از قبیل pH، بافت خاک، چگالی، مقدار ماده آلی، ظرفیت تبادل کاتیونی، رطوبت خاک و کانی‌های تشکیل‌دهنده می‌باشند [۳، ۲۱]. لذا در این مطالعه خاک آبرفت پسماندگاه انارک آنالیز و مقادیر پارامترهای مذکور تعیین گردید (جدول ۲).

مقادیر و نوع کانی‌های تشکیل‌دهنده با استفاده از آنالیز پراش اشعه ایکس (XRD) و آنالیز فلورسانس اشعه ایکس (XRF) مشخص شد. آنالیز XRD مخصوص کانی‌های رسی نمونه خاک در شکل ۲ نشان داده شده است. بر اساس نتایج آنالیز XRD، کانی‌های اصلی تشکیل‌دهنده خاک پسماندگاه انارک شامل مونتموریلونیت (۳۲ درصد)، کوارتز (۲۴ درصد)، آلپیت (۱۵ درصد)، میکروکلین (۶ درصد)، کلسیت (۶ درصد)، مسکویت (۸ درصد)، کلریت (۵ درصد) و گچ (۲ درصد) است. با توجه به این‌که سنگ منشأ خاک پسماندگاه انارک، ماسه سنگ رسی سازند قرمز زیرین است، کانی اصلی رسی آن، مونتموریلونیت می‌باشد. نتایج آنالیز XRF در جدول‌های ۳ و ۴ آورده شده است. نتایج آنالیز XRF نشان می‌دهد که اکسیدهای اصلی خاک شامل CaO ، SiO_2 ، Fe_2O_3 و Al_2O_3 است. میزان غلظت SiO_2 برابر با ۶۴/۲۳ درصد وزنی، میزان غلظت Al_2O_3 برابر با ۸/۷۰ درصد وزنی، میزان غلظت CaO برابر با ۷/۲۰ درصد وزنی و Fe_2O_3 برابر با ۳/۳۵ درصد وزنی می‌باشد.

هم‌چنین با توجه به اثر محتوای شیمیایی آب در تعیین ضریب توزیع عناصر، آب موجود در پسماندگاه انارک تهیه گردید و میزان یون‌ها و آنیون‌ها با آنالیزهای کروماتوگرافی یونی و طیف‌سنجی نشر اتمی تعیین گردید.

۳.۲ تعیین ضریب توزیع به روش ناپیوسته

به منظور تعیین ضریب توزیع توریم در خاک به روش ناپیوسته، ۰/۵ گرم از هر سه دانه بندی خاک توزین شده و در ظروف پلی اتیلنی قرار گرفت. سپس به هر دانه‌بندی، ۲۰ میلی‌لیتر از غلظت‌های مختلف ۵۰، ۱۰۰ و ۲۰۰ میلی‌گرم بر لیتر محلول توریم در آب انارک اضافه گردید.

سپس نمونه‌ها به مدت ۲۴ ساعت درون شیکر با دور ۲۰۰ rpm قرار گرفت و پس از آن به مدت ۱۵ دقیقه در دستگاه سانتریفیوژ با دور ۵۰۰۰ rpm قرار داده شدند. قسمت مایع فوقانی مخلوط جدا شد و میزان یون توریم توسط دستگاه ICP-MS آنالیز گردید. به منظور افزایش دقت آزمایش، محلول‌های تهیه شده توریم با غلظت‌های ۵۰، ۱۰۰ و ۲۰۰ ppm نیز برای انجام آزمایش برای آنالیز ارسال شدند.

ضریب توزیع عناصر در روش ناپیوسته از معادله (۱) تعیین گردید [۲۰]. در این معادله، B مقدار گونه مورد جذب (توریم) قبل از تبادل یون در فاز محلول، A مقدار گونه مورد جذب بعد از تبادل یون در فاز محلول، V حجم محلول حاوی گونه مورد جذب بر حسب میلی‌لیتر و M وزن مبادله‌کننده برحسب گرم می‌باشد.

$$K_d = \frac{B - A}{A} * \frac{V}{m} \quad (1)$$

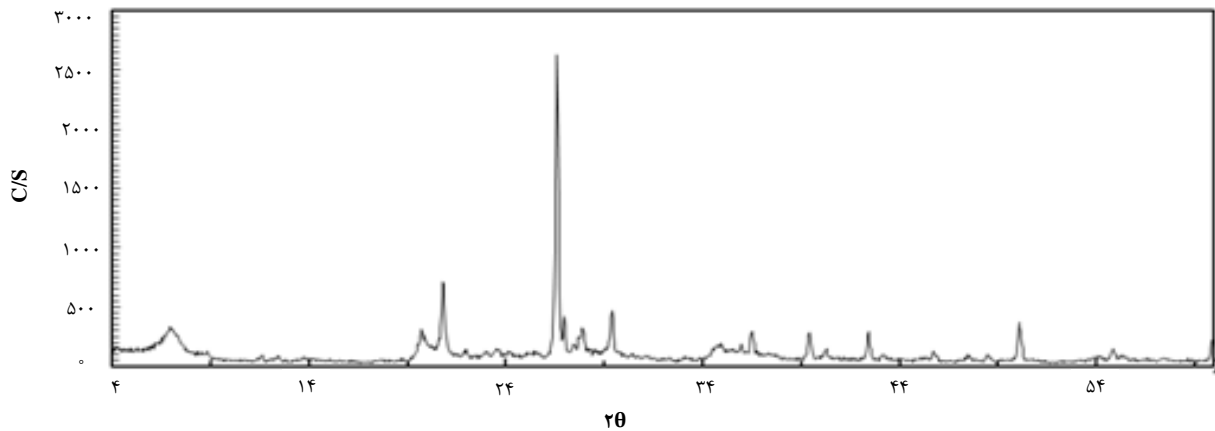
۴.۲ بررسی رفتار جذبی به روش پیوسته

به منظور بررسی رفتار جذبی توریم در خاک به روش پیوسته، ابتدا در انتهای هر ستون با قطر داخلی ۱ سانتی‌متر، پشم شیشه قرار گرفت. برای استقرار عمودی ستون‌ها، از گیره و پایه مناسب استفاده گردید. سپس مجموعه ذکر شده توسط شلنگ به پمپ پرستالتیک متصل گردید و ستون با خاک انارک پر شد. برای این منظور، از خاک بین الک ۵ و ۲۰۰ در آزمایشات استفاده گردید. به منظور بررسی اثر ارتفاع، ستون با ارتفاع‌های مختلف خاک (۳، ۵، ۷ و ۱۰ سانتی‌متر) تهیه شد و دبی پمپ برابر با $1/1 \text{ cm}^3/\text{min}$ تنظیم گردید. سپس ۱۰۰ میلی‌لیتر از محلول



جدول ۲. نتایج آنالیز نمونه خاک

EC (ds/m)	pH	درصد کربنات کلسیم معادل (%TNV)	درصد ماده آلی (%OM)	ظرفیت تبادل کاتیونی (meq/۱۰۰g)	وزن مخصوص (g/cm ³)	درصد رطوبت	تجزیه اندازه‌های ذرات			بافت
							رس %	سیلت %	شن %	
۲۰٫۳	۷٫۵۶	۵۱٫۱۹	۰٫۲۶	۸٫۸۵	۲٫۷۴	۱٫۷۷	۷۸	۱۰	۱۲	S.L



شکل ۲. آنالیز XRD مخصوص کانی‌های رسی نمونه خاک.

طبق گزارش آژانس حفاظت محیط زیست ایالت متحده آمریکا، خصوصیات شیمیایی مؤثر آب در ضرایب توزیع شامل میزان یون‌ها و آنیون‌های کلسیم، منیزیم، سدیم، پتاسیم، کلرید، نیترات و سولفات با آنالیزهای کروماتوگرافی یونی و اسپکترومتری نشر اتمی تعیین گردید. نتایج آنالیز آب موجود در پسماندگاه انارک در جدول‌های ۵ و ۶ ارائه شده است.

جدول ۵. نتایج آنالیز کروماتوگرافی یونی نمونه‌های آب پسماندگاه انارک (مقادیر برحسب mg/L ارائه شده است)

	نمونه ۱	نمونه ۲	نمونه ۳	میانگین
کلرید	۲۴۷۰۰	۲۲۵۰۰	۱۶۶۲۰	۲۱۲۷۰
سولفات	۸۴۰۰	۸۳۰۰	۷۰۲۰	۷۹۰۰
نیترات	*	*	۰٫۴	<۰٫۴

* مقادیر زیر حد تشخیص دستگاه بوده است.

جدول ۶. نتایج آنالیز اسپکترومتری نشر اتمی نمونه‌های آب پسماندگاه انارک (مقادیر برحسب mg/L ارائه شده است)

	نمونه ۱	نمونه ۲	نمونه ۳	میانگین
سدیم	۱۲۲۵۰	۱۸۳۹۶	۱۳۲۷۰	۱۴۶۳۸
منیزیم	۴۸۰٫۱	۳۸۳	۶۷۲٫۲	۵۱۱٫۸
پتاسیم	۲۶٫۵۲	۴۳٫۶۱	۲۶٫۱۹	۳۲٫۱۰
کلسیم	۹۵۹٫۸	۲۱۶۸	۱۲۰۰	۱۴۴۲٫۶
کبالت	۰٫۰۲۴	۰٫۰۵	۰٫۱۲۰	۰٫۰۶۴
نیکل	۰٫۰۰۱	۰٫۰۰۰	۰٫۰۰۰	۰٫۰۰۰
توریم	۰٫۰۰۲	۰٫۰۰۰	۰٫۰۰۰	۰٫۰۰۰

جدول ۳. میانگین درصد اکسیدهای فلزی در نمونه خاک

درصد	اکسیدهای فلزی
۶۴٫۲۳	SiO ₂
۸٫۷۰	Al ₂ O ₃
۷٫۲۰	CaO
۳٫۳۵	Fe ₂ O ₃
۲٫۰۷	K ₂ O
۱٫۵۷	Na ₂ O
۱٫۶۰	MgO
۰٫۴۳۷	TiO ₂
۰٫۰۷۲	MnO
۰٫۰۹۷	P ₂ O ₅
۰٫۹۳	SO ₃

جدول ۴. میانگین غلظت یون‌های فلزی در نمونه خاک

یون‌ها	غلظت (ppm)
Cl	۱۵۶۶
Ba	۵۰۲
Cr	۱۴۸
V	۶۹
Ni	۷۴
Cu	۱۱۱
Zn	۵۶
As	۱۸
Sr	۱۰۲۵
Pb	۲۶

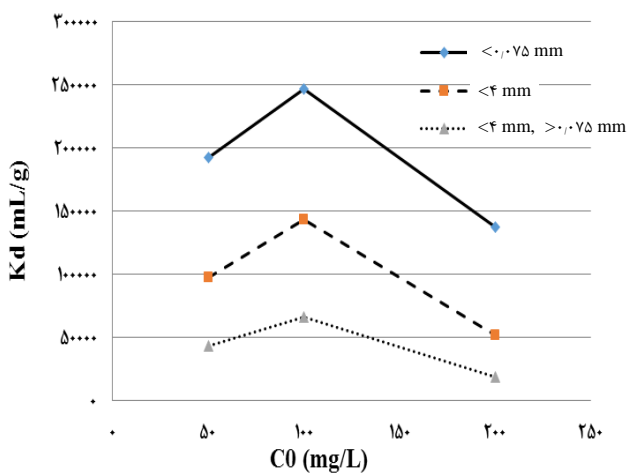


جدول ۸. مقادیر ضریب توزیع توریم در خاک آبرفت پسماندگاه انارک برای خاک عبوری از الک ۵ (L/kg)

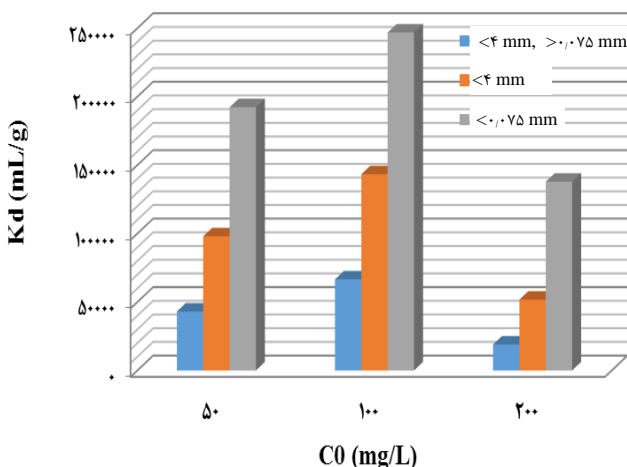
غلظت (ppm)	kd (mL/g)
۵۰	۹۷۹۹۹٫۲
۱۰۰	۱۴۳۳۲۹٫۲
۲۰۰	۵۱۷۳۹٫۹

جدول ۹. مقادیر ضریب توزیع توریم در خاک آبرفت پسماندگاه انارک برای خاک بین الک ۵ و ۲۰۰ (L/kg)

غلظت (ppm)	kd (mL/g)
۵۰	۴۳۰۶۳٫۴
۱۰۰	۶۶۵۱۵٫۷
۲۰۰	۱۸۹۶۲٫۴



شکل ۳. نمودار ضریب توزیع توریم برحسب غلظت اولیه آن برای دانه‌بندی‌های مختلف خاک.



شکل ۴. نمودار ستونی ضریب توزیع توریم برحسب غلظت و دانه‌بندی خاک.

۲.۳ تعیین ضریب توزیع به روش ناپیوسته

مقادیر ضرایب توزیع با استفاده از معادله (۱) و با روش اندازه‌گیری ICP-MASS برای غلظت‌های مختلف توریم (۵۰، ۱۰۰ و ۲۰۰ ppm) و سه نوع دانه‌بندی خاک (عبوری از الک شماره ۵، بین الک شماره ۵ و ۲۰۰، عبوری از الک شماره ۲۰۰) محاسبه گردید. این مقادیر در جدول‌های ۷ الی ۹ ارائه شده است.

۱.۲.۳ بررسی اثر غلظت و دانه‌بندی خاک

شکل‌های ۳ و ۴ ضریب توزیع هسته پرتوزای توریم را در خاک آبرفت پسماندگاه انارک برحسب غلظت اولیه توریم برای دانه‌بندی‌های مختلف نشان می‌دهد. الگوی منظمی از تغییرات ضریب توزیع توریم با غلظت مشاهده نشد، بدین ترتیب که با افزایش غلظت از ۵۰ mg/L به ۱۰۰ mg/L ضریب توزیع افزایش یافته و سپس با افزایش مجدد غلظت به ۲۰۰ mg/L ضریب توزیع کاهش می‌یابد. به طور کلی می‌توان گفت که با افزایش غلظت یون‌ها، میزان بیش‌تری از یون‌ها برای جذب سطحی در جایگاه‌های جذب موجود در خاک فراهم شده و با اشباع شدن جایگاه‌های جذب، ضریب توزیع کاهش می‌یابد.

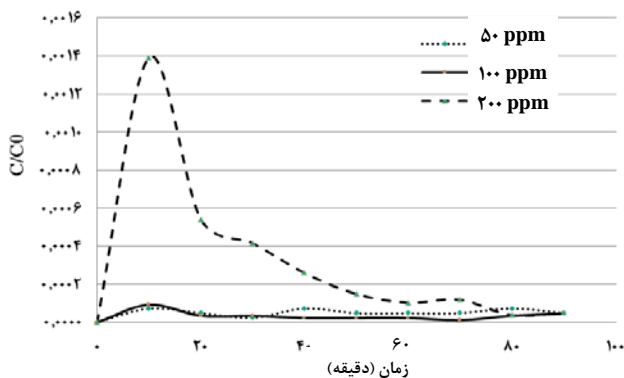
همان‌گونه که در دو شکل مشاهده می‌شود، با کوچک‌تر شدن اندازه ذرات، ضریب توزیع افزایش می‌یابد. افزایش میزان جذب سطحی توریم با کاهش اندازه ذرات خاک، ممکن است مرتبط با دلایل مختلفی مانند افزایش ظرفیت تبادل کاتیونی، افزایش مقدار کانی‌های رسی، افزایش میزان مواد آلی، مقدار اکسیدها و هیدروکسیدهای آهن و منگنز و ... باشد. کاهش اندازه مش‌های مورد استفاده، باعث افزایش درصد کانی‌های رسی مانند مونتموریلونیت شده و از طرفی کاهش اندازه ذرات باعث افزایش مساحت سطح می‌گردد. مونتموریلونیت دارای تبدلات کاتیونی و قدرت جذب سطحی بالا بوده و برای ایزوله کردن پسماندگاه‌ها از آن استفاده می‌شود. این کانی رسی دارای یون‌های مثبت Na^+ قابل تعویض در ساختار خود می‌باشد که با یون‌های محلول در آب مانند توریم تبادل یونی انجام داده و باعث جذب آن می‌شود.

جدول ۷. مقادیر ضریب توزیع توریم در خاک آبرفت پسماندگاه انارک برای خاک عبوری از الک ۲۰۰ (L/kg)

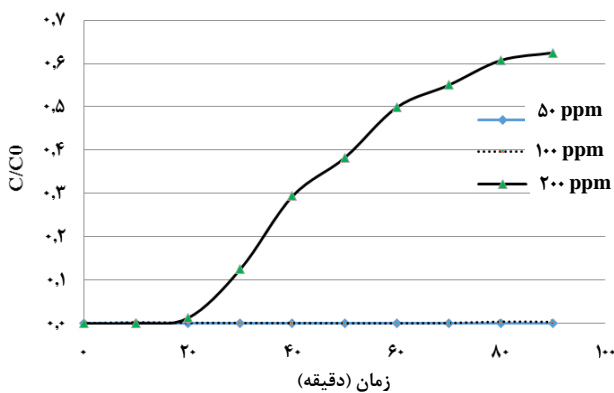
غلظت (ppm)	kd (mL/g)
۵۰	۱۹۲۲۶۷٫۷
۱۰۰	۲۴۶۷۸۳٫۶
۲۰۰	۱۳۷۹۸۱٫۰



برای مشاهده بهتر اثر غلظت در رفتار جذبی توریم، منحنی لحظه‌ای غلظت آلاینده به غلظت اولیه برحسب زمان برای آلاینده توریم با غلظت‌های مختلف در ارتفاع ثابت ۳ و ۱۰ سانتی‌متر در شکل‌های ۸ و ۹ نشان داده شده است. همان‌گونه که مشاهده می‌شود، مقدار غلظت لحظه‌ای توریم در زمان‌های مختلف برای آلاینده با غلظت اولیه 200 mg/L بیش‌تر است که می‌تواند حاکی از جذب سطحی کم‌تر توریم در خاک و به عبارت دیگر کاهش ضریب توزیع توریم نسبت به غلظت‌های 50 mg/L و 100 mg/L باشد. این موضوع به خصوص در شکل ۸ نمودار شکست توریم را در غلظت‌های مختلف برای ارتفاع برابر با 3 cm نشان می‌دهد، بهتر قابل مشاهده است. اما همان‌گونه که دیده می‌شود، مقادیر غلظت لحظه‌ای به غلظت اولیه برای توریم با غلظت‌های 50 mg/L و 100 mg/L تقریباً برابر و حتی در مواردی برای غلظت 100 mg/L کم‌تر است که می‌تواند نشان‌دهنده افزایش جذب سطحی در خاک یا افزایش ضریب توزیع باشد. تغییرات ضریب توزیع توریم با غلظت در روش ناپیوسته نیز همین روند را نشان می‌دهد.



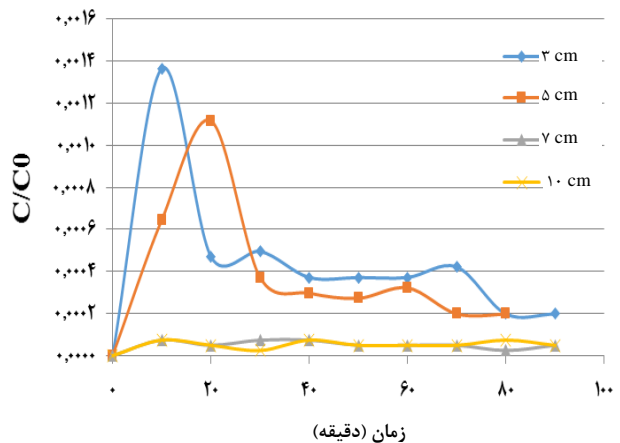
شکل ۸. منحنی شکست آلاینده توریم برای غلظت‌های مختلف در ارتفاع ثابت 10 cm .



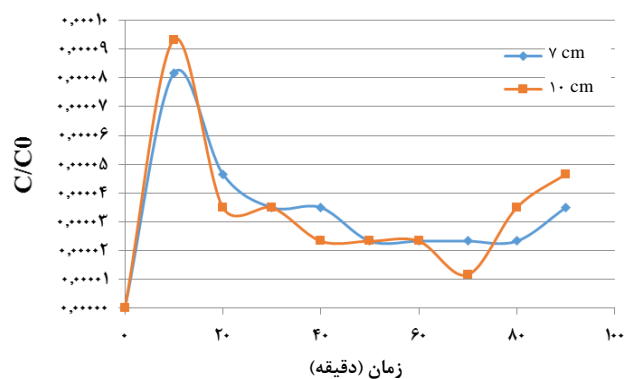
شکل ۹. منحنی شکست آلاینده توریم برای غلظت‌های مختلف در ارتفاع ثابت 3 cm .

۳.۳ بررسی رفتار جذبی به روش پیوسته

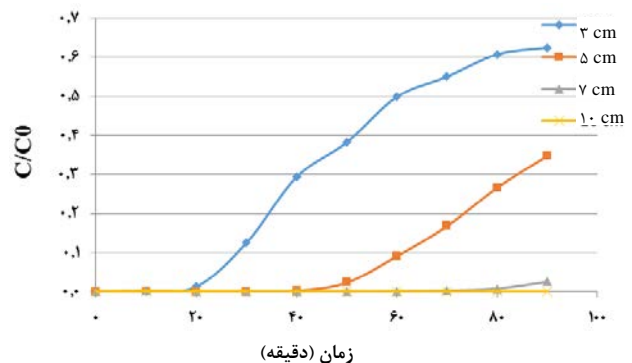
نمودارهای شکست برای آلاینده توریم با غلظت‌های مختلف و ارتفاع‌های مختلف ستون در شکل‌های ۵ تا ۷ رسم شده است. همان‌گونه که مشاهده می‌شود، توریم در ستون خاک کاملاً جذب می‌شود. با افزایش ارتفاع ستون مقدار جذب سطحی توریم نیز افزایش می‌یابد.



شکل ۵. غلظت لحظه‌ای به غلظت اولیه برحسب زمان برای آلاینده توریم با غلظت 50 ppm .



شکل ۶. غلظت لحظه‌ای به غلظت اولیه برحسب زمان برای آلاینده توریم با غلظت 100 ppm .



شکل ۷. غلظت لحظه‌ای به غلظت اولیه برحسب زمان برای آلاینده توریم با غلظت 200 ppm .



جدول ۱۰. مقادیر ضریب توزیع توریم (mL/g) برحسب pH و غلظت محلول توریم [۱۱]

K _d (mL/g)	pH		pH		pH	
	۸-۱۰	۵-۸	۳-۵	۳-۵	۳-۵	۳-۵
	غلظت توریم (M)	غلظت توریم (M)	غلظت توریم (M)	غلظت توریم (M)	غلظت توریم (M)	غلظت توریم (M)
	> ۱۰ ^{-۹}	< ۱۰ ^{-۹}	> ۱۰ ^{-۹}	< ۱۰ ^{-۹}	> ۱۰ ^{-۲/۶}	< ۱۰ ^{-۲/۶}
	۳۰۰۰۰	۲۰	۳۰۰۰۰	۱۷۰۰	۳۰۰۰۰	۶۲
	۳۰۰۰۰	۲۰۰	۳۰۰۰۰	۱۷۰۰۰	۳۰۰۰۰	۶۲۰۰

در سال ۲۰۱۲ نیز میشر^۷ و همکارانش مقادیر ضریب توزیع اورانیم و محصولات واپاشی آن را در خاک اطراف معادن اورانیم به روش ناپیوسته تعیین کردند. بیشترین مقدار ضریب توزیع برای توریم و در حدود ۵۰۰۰۰ لیتر بر کیلوگرم حاصل شد [۲۲].

نتایج تحقیقات ذکر شده به انضمام مقدار اندازه‌گیری شده در این مطالعه (مقدار کمینه، بیشینه و میانگین هندسی ضریب توزیع (mL/g)) همراه با ذکر منبع در جدول ۱۱ ارائه شده است.

همان‌گونه که در این جدول مشاهده می‌شود، مقادیر ضریب توزیع در منابع مختلف، مقادیر مختلفی را در بازه ۸-۳۰۰۰۰۰ لیتر بر کیلوگرم در بر می‌گیرد. مقدار به دست آمده در این مطالعه در بازه ۱۸۹۶۲-۲۴۶۸۷۳ لیتر بر کیلوگرم می‌باشد که البته این مقدار برای دانه‌بندی‌های مختلف خاک می‌باشد. در حالی که برای خاک طبیعی مقادیر در بازه ۵۱۷۳۹-۱۴۳۳۲۹ لیتر بر کیلوگرم (با میانگین ۹۷۶۸۹ لیتر بر کیلوگرم) است.

بایستی توجه نمود که مقدار ضریب توزیع به پارامترهای مختلفی از جمله مشخصات خاک و آب زیرزمینی، جذب، زمان تماس و ... به شدت وابسته است و به همین علت، آژانس بین‌المللی انرژی اتمی بر لزوم تعیین ضریب توزیع مختص به هر سایت تأکید دارد. از آن‌جا که این پارامترها در تحقیقات انجام شده یکسان نیستند، مقدار ضریب توزیع ارائه شده نیز بسیار متفاوت می‌باشند (جدول ۱۱).

مقدار ضریب توزیع به‌دست آمده در این تحقیق با مقدار ارائه شده توسط وندنه^۶ برای خاک شنی (خاک انارک) در تطابق است و با مقدار ارائه شده در نرم‌افزار RESRAD نیز نسبت به سایر متون علمی تطابق بیش‌تری دارد [۹، ۱۱].

۴۰۳ مقایسه مقادیر به دست آمده ضریب توزیع توریم با سایر منابع از سال ۱۹۸۱ تا به امروز مطالعات مختلفی بر روی تعیین ضریب توزیع توریم در خاک انجام شده است. همان‌گونه که قبلاً ذکر شد، مقادیر ضریب توزیع به پارامترهای مختلفی وابسته است، با این حال سعی خواهد شد مقایسه‌ای بین مقادیر به دست آمده در این مطالعه با سایر منابع علمی انجام شود.

در گزارش شماره EPA-402-R-99-004B آژانس حفاظت محیط زیست ایالت متحده آمریکا، مقادیر ضریب توزیع توریم برحسب pH و غلظت محلول توریم ارائه شده است (جدول ۱۰). همان‌گونه که در این جدول مشاهده می‌شود، برای غلظت‌های بالاتر از ۱۰^{-۹} مولار (غلظت‌های بررسی شده در این مطالعه)، ضریب توزیع توریم برابر با ۳۰۰۰۰۰ mL/g گزارش شده است [۱۲].

ایشروود^۱ و همکاران در سال ۱۹۸۱ مقدار ضریب توزیع توریم را برای غلظت ۱۰۰ mg/L توریم و بر اساس نوع خاک و pH ارائه کردند [۱۰]. تیبالت^۲ و همکارانش در سال ۱۹۹۰، مقادیر ضریب توزیع کبالت، نیکل، توریم و تعدادی از عناصر دیگر را در ۲۰ نمونه از خاک کشاورزی کانادا اندازه‌گیری کردند [۸]. شپارد^۳ و همکارانش در سال ۲۰۰۹ مقادیر ضریب توزیع تعدادی از عناصر را در خاک ۷ سایت در مناطق فرسمارک^۴ و سیمپوارپ^۵ سوئد اندازه‌گیری کردند. این گروه، پارامترهای تأثیرگذار در ضریب توزیع را pH خاک، میزان کربن آلی، درصد خاک رس و شن بیان داشته اما بیش‌ترین اثر را به pH و میزان خاک رس نسبت دادند [۲۱].

وندنه^۶ و همکارانش در سال ۲۰۰۹، بهترین مقادیر ضریب توزیع را برای تعدادی از هسته‌ای پرتوزا از جمله توریم تخمین زدند. این گروه اظهار داشتند که اگرچه این داده‌های عمومی برای ارزیابی تأثیر سایت خاص مفید نیستند، اما ممکن است برای ارزیابی‌های مقدماتی یا غربالگری مفید باشند. هم‌چنین بیش‌ترین عوامل مؤثر بر ضریب توزیع را نوع خاک، pH و مقدار ماده آلی خاک برشمردند مقادیر ضریب توزیع توریم در خاک شنی (خاکی که بیش‌تر از ۶۵ درصد آن شن است مانند خاک منطقه انارک) در بازه ۳۵-۱۰۰۰۰۰ لیتر بر کیلوگرم و برای انواع خاک در بازه ۱۹-۲۵۰۰۰۰ لیتر بر کیلوگرم توسط این گروه ارائه شده است [۹].

1. Isherwood
2. Tibault
3. Sheppard
4. Forsmark
5. Simpevarp
6. Vandenhove

7. Mishra



مراجع

1. Environmental Protection Agency, *Understanding Variation in Partitioning Coefficients, Kd Values: Volume I: The Kd Model, Methods Of Measurement, And, Application Of chemical Reaction Codes. Washington : Office Of Air and Radiation (1999).*
2. R. Testoni, et al., *Analysis on distribution coefficients of Strontium and Cesium for safety assessment studies*, J. Radioanal. Nucl. Chem., **312**, 305–316 (2017).
3. International Atomic Energy Agency, *Extent of Environmental contamination by Naturally Occurring Radioactive Material (NORM) and Technological Options For Remediation. s.l.: International Atomic Energy Agency (2003).*
4. International Atomic Energy Agency, *Derivation of activity limits for the disposal of radioactive waste in near surface disposal facilities*, IAEA-TECDOC-1380. IAEA, Austria (2003).
5. Radiation Protection Series Publication No. 15, *Management of Naturally Occurring Radioactive Material (NORM)*, (2008).
6. Environmental Protection Agency, *Site Characterization for Subsurface Remediation. EPA/625/4-91/026, Office of Research and Development, U.S. Environmental Protection Agency, Cincinnati, Ohio (1991).*
7. ASTM (American Society of Testing and Materials). 1987. "24-hour Batch-Type Measurement of Contaminant Sorption by Soils and Sediments." In *Annual Book of ASTM Standards, Water and Environmental Technology*, Volume **11.04**, 163-167, Philadelphia, Pennsylvania.
8. D.H. Thibault, et al, *A critical compilation and review of default soil solid/liquid partition coefficients, Kd, for use in environmental assessments. Atomic Energy of Canada Limited, AECL-10125 (1990).*
9. H. Vandenhove, et al., *New best estimates for radionuclide solid-liquid distribution coefficients in soils. Part 2. Naturally occurring radionuclides*, Journal of Environmental Radioactivity, **100**, 697-703 (2009).
10. D. Isherwood, *Geoscience Data Base Handbook for Modeling a Nuclear Waste Repository, NUREG/CR-0912, Vols. 1 and 2, U.S. Nuclear Regulatory Commission, Washington, D.C.(1981).*
11. C. Yu, *User's Manual for RESRAD Version 6. U.S. Department of Energy, Office of Scientific and Technical Information (2001).*
12. Environmental Protection Agency, *Understanding Variation in Partitioning Coefficients, Kd Values: Volume II: Review of Geochemistry and Available Kd Values for Cadmium, Cesium, Chromium, Lead, Plutonium, Radon, Strontium, Thorium, Tritium (3H), and Uranium Washington:*

جدول ۱۱. مقایسه مقادیر ضریب توزیع اندازه‌گیری شده توریم (L/kg) در

این تحقیق با سایر منابع علمی			
مقدار کمینه	مقدار بیشینه	میانگین هندسی	منبع
۸	۱۶۰۰۰۰	اشرود و همکاران (۱۹۸۱)	[۱۰]
۶۲	۳۰۰۰۰۰	۸۹۰۰۰-۳۲۰۰۰	تیپالت و همکاران (۱۹۹۰) [۸]
		EPA (۱۹۹۹) [۱]	
		۶۰۰۰۰	RESRAD (version 5.62 and later) [۱۱]
۵۵۰۰	۲۵۰۰۰۰	۲۵۰۰۰	شپارد و همکاران (۲۰۰۹) [۲۱]
۱۹	۲۵۰۰۰۰	۱۹۰۰	وندنهو و همکاران (۲۰۰۹) [۹]**
۱۸۹۶۲	۲۴۶۸۷۳	۱۱۰۹۶۰	این مطالعه

*: برای غلظت‌های بالاتر از 10^{-9} مولار، ضریب توزیع توریم برابر با 300000 L/kg ارایه شده است.

** مقادیر ضریب توزیع توریم در خاک شنی در بازه $100000-35$ لیتر بر کیلوگرم داده شده است.

۴. نتیجه‌گیری

در این مطالعه، مقدار میانگین ضریب توزیع در روش ناپیوسته برای توریم برابر با 110960 L/kg تعیین گردید. با توجه به این مقدار ضریب توزیع، انتظار می‌رفت که در روش ستونی، جاذبه قوی بین جاذب و یون ایجاد شده و یون از ستون خارج نگردد. همین نتیجه در عمل مشاهده گردید، در اثر جذب سطحی بالای خاک، منحنی شکست کامل نشده و امکان تعیین ضریب توزیع به روش ستونی میسر نشد.

الگوی منظمی از تغییرات ضریب توزیع توریم با غلظت مشاهده نشد، بدین ترتیب که با افزایش غلظت از 50 mg/L به 100 mg/L ضریب توزیع افزایش یافته و سپس با افزایش مجدد غلظت به 200 mg/L ضریب توزیع کاهش می‌یابد. به طور کلی می‌توان گفت که با افزایش غلظت یون‌ها، میزان بیش‌تری از یون‌ها برای جذب در جایگاه‌های جذب موجود در خاک فراهم شده و با اشباع شدن جایگاه‌های جذب، ضریب توزیع کاهش می‌یابد. در گزارش EPA، مقدار ضریب توزیع توریم برای غلظت‌های بالاتر، بیش‌تر گزارش شده است [۱]، که افزایش ضریب توزیع را با افزایش غلظت از 50 mg/L به 100 mg/L توجیه می‌کند.

در این مطالعه، اثر دانه‌بندی خاک در روش ناپیوسته مورد بررسی قرار گرفت و مشاهده گردید که با کاهش اندازه ذرات، جذب سطحی در خاک بیش‌تر و ضریب توزیع افزایش یافته است. هم‌چنین در روش پیوسته، با افزایش ارتفاع خاک، میزان جذب سطحی در ستون افزایش می‌یابد. هر چند با توجه به جذب بالای توریم در خاک این تغییرات چندان محسوس نیست.



13. ASTM D4972-19, *Standard Test Methods for pH of Soils*, ASTM International, West Conshohocken, PA, (2019), www.astm.org.
14. P. Shah, D. Singh, A *Simple Methodology For Determining Electrical Conductivity of Soils*, *J. ASTM Int.* **1**, 1-11 (2004).
15. ASTM D7263-21, *Standard Test Methods for Laboratory Determination of Density and Unit Weight of Soil Specimens*, ASTM International, West Conshohocken, PA, (2021), www.astm.org.
16. ASTM D422-63(2007)e2, *Standard Test Method for Particle-Size Analysis of Soils (Withdrawn 2016)*, ASTM International, West Conshohocken, PA, (2007), www.astm.org.
17. ASTM D7503-18, *Standard Test Method for Measuring the Exchange Complex and Cation Exchange Capacity of Inorganic Fine-Grained Soils*, ASTM International, West Conshohocken, PA, (2018), www.astm.org.
18. ASTM D2974-20e1, *Standard Test Methods for Determining the Water (Moisture) Content, Ash Content, and Organic Material of Peat and Other Organic Soils*, ASTM International, West Conshohocken, PA, (2020), www.astm.org.
19. ASTM D2216-19, *Standard Test Methods for Laboratory Determination of Water (Moisture) Content of Soil and Rock by Mass*, ASTM International, West Conshohocken, PA, (2019), www.astm.org.
20. K.G. Varshney, et al., *Radiation stability of some thermally stable inorganic ion exchangers*, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **82**, 299–308 (1984).
21. S. Sheppard, et al., *Solid/liquid partition coefficients (Kd) for selected soils and sediments at Forsmark and Laxemar-Simpevarp*. ECOMatters Inc, Canada (2009).
22. S. Mishra, et al, *Estimation of distribution coefficient of natural radionuclides in soil around uranium mines and its effect with ionic strength of water*, *Radiat Prot Dosimetry*, **152**, 229-233 (2012).

COPYRIGHTS

©2021 The author(s). This is an open access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution (CC BY 4.0), which permits unrestricted use, distribution, and reproduction in any medium, as long as the original authors and source are cited. No permission is required from the authors or the publishers. •

**استناد به این مقاله**

امیرمسعود طاهریان، علی مالکی، سمانه ذوالقدری، حسن یوسف نیا، زهرا شیرینی یکتا، سمانه صرفی، حسن آقابان، سعید مومنزاده (۱۴۰۱)، تعیین ضریب توزیع توریم در خاک آبرفت پسماندگاه انارک، ۹۹، ۱۰۶-۱۱۵

DOR: 20.1001.1.17351871.1401.43.1.12.5

Url: https://jonsat.nstri.ir/article_1355.html

