научный электронный журнал
ПРИНЦИПЫ ЭКОЛОГИИ

ПЕТРОЗАВОДСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ

https://ecopri.ru **https://petrsu.ru**

Издатель
ФГБОУ ВО «Петрозаводский государственный университет»
Российская Федерация, г. Петрозаводск, пр. Ленина, 33

Научный электронный журнал

ПРИНЦИПЫ ЭКОЛОГИИ

https://ecopri.ru

№ 2 (6). Июнь, 2013

Главный редактор
А. В. Коросов

Редакционный совет

В. Н. Большаков
А. В. Воронин
Э. В. Ивантер
Н. Н. Немова
Г. С. Розенберг
А. Ф. Титов
Г. С. Антипина
В. В. Вапиров
А. М. Макаров

Редакционная коллегия

Т. О. Волкова
Е. П. Иешко
В. А. Илюха
Н. М. Калинкина
J. P. Kurhinen
А. Ю. Мейгал
J. B. Jakovlev
B. Krasnov
A. Gugołek
В. К. Шитиков
В. Н. Якимов

Службы поддержки

А. Г. Марахтанов
Е. В. Голубев
С. Л. Смирнова
Н. Д. Чернышева
М. Л. Киреева

ISSN 2304-6465

Адрес редакции
185910, Республика Карелия, г. Петрозаводск, ул. Ленина, 33.
E-mail: ecopri@petrsu.ru
https://ecopri.ru

12+

© ФГБОУ ВО «Петрозаводский государственный университет»

научный электронный журнал ПРИНЦИПЫ ЭКОЛОГИИ

ПЕТРОЗАВОДСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ

https://ecopri.ru **https://petrsu.ru**

УДК 502.55

ПРИМЕНЕНИЕ ГАММА-СПЕКТРОМЕТРИИ ДЛЯ ВЫЯВЛЕНИЯ ТЕХНОГЕННОГО ЗАГРЯЗНЕНИЯ ПОЧВЫ УРАНОМ

ЕКИДИН Алексей Акимович	*к.ф.-м.н., Институт промышленной экологии УрО РАН (620219, г.Екатеринбург, ул.Софьи Ковалевской, 20), ekidin@ecko.uran.ru*
ВАСЯНОВИЧ Максим Евгеньевич	*к.ф.-м.н., Институт промышленной экологии УрО РАН (620219, г.Екатеринбург, ул.Софьи Ковалевской, 20), vasyanovich_maks@mail.ru*
НАЛИВАЙКО Андрей Витальевич	*к.ф.-м.н., Агентство экологической безопасности "Альфа-Х91" (620990, г.Екатеринбург, ул.Софьи Ковалевской, 20А), nalivaiko1@yandex.ru*

Ключевые слова: Радионуклид, изотопы урана, спектрометрия, изотопное отношение.

Рецензент: В. В. Вапиров

Получена: 29 июля 2013 года

Подписана к печати: 27 сентября 2013 года

Аннотация. В настоящей работе рассмотрены методы выявления техногенной составляющей урана в почве на основании анализа отношения удельной активности 238U к удельной активности других природных радионуклидов. Существенный сдвиг в равновесии между 226Ra и 238U позволяет сделать предположение о наличии внешних причин изменения удельной активности радионуклидов в цепочке распада. В случаях достоверного определения удельной активности 235U техногенное поступление урана подтверждается существенным отличием отношения 238U/235U от 21.7. В образцах почвы с низким содержанием 235U подтвердить предполагаемое дополнительное содержание урана позволяет анализ отношений 238U/232Th, 238U/40K. Оценить продолжительность формирования техногенного загрязнения почвы возможно по значениям удельной активности 137Cs.

© Петрозаводский государственный университет

Введение

Контроль содержания природных радионуклидов в объектах окружающей среды является неотъемлемой частью системы обеспечения радиационной безопасности предприятий по обращению с ураном. Мониторинг необходим для поддержания работы радиационного объекта и его отдельных технологических систем в рамках оптимального технологического регламента, гарантирующего охрану здоровья людей от воздействия источников ионизирующего излучения. Результаты мониторинга могут обеспечить оперативное выявление происходящих изменений, признаков развития аварийной ситуации, их причин и степени опасности, прогноз дальнейших изменений и возможных последствий для персонала и/или населения, определение необходимых мер по обеспечению радиационной безопасности и нормализации радиационной обстановки (Контроль..., 2001). Для решения отмеченных задач необходимо обоснованное определение избыточного количества урана в объектах

долговременного накопления радионуклидов (почва, грунт, донные отложения), поступившего в результате деятельности радиационного объекта.

Матрицей для формирования почвы являются горные породы, характерные для территории проведения мониторинга. Уровень радиоактивности почв зависит от содержания естественных радионуклидов в почвообразующих породах. Опубликованные результаты исследований показывают, что содержание природных радионуклидов в пределах одного и того же петрохимического типа пород может сильно варьироваться (Титаева, 2000). Максимальная радиоактивность обнаружена в почвах, сформированных на кислых магматических породах, а наиболее высокая концентрация радионуклидов наблюдается в мелкодисперсной фракции почв – в глинистых частицах. Кроме того, уровень радиоактивности почв зависит от ландшафта, климатических условий, процессов вертикальной и горизонтальной миграции в почвах, их биологической аккумуляции и т. д. (Дричко и др., 1977).

В процессе почвообразования изменяются как содержание естественных радионуклидов в сравнении с исходными почвообразующими породами, так и характер их распределения в пределах сформировавшихся почвенных профилей. Изменения определяются свойствами радионуклидов, физико-химическими особенностями почв, процессами почвообразования, что приводит к существенным различиям содержания естественных радионуклидов в почвах, сформированных на различных породах (Алексахин и др., 1990). В таких условиях определение естественного содержания урана в почве по составу почвообразующих пород превращается в трудновыполнимую задачу.

Выявить случаи загрязнения почвы обогащенным или обедненным ураном позволяет анализ отношения удельной активности ^{238}U к ^{235}U, которое в природе должно составлять 21.7. Явный сдвиг в данном соотношении без сомнения свидетельствует о наличии техногенного воздействия. Однако данный подход применим только для образцов с детектируемым количеством ^{235}U в почве. Для ситуаций загрязнения почвы ураном с естественным соотношением активности изотопов требуются другие принципы идентификации техногенного вклада.

Задачу идентификации техногенного загрязнения почвы природными радионуклидами позволяет решить анализ сдвига радиоактивного равновесие между ^{238}U и ^{226}Ra в цепочке ^{238}U (Екидин и др., 2005; Стамат и др., 2008). Обоснование количества дополнительного содержания урана, обусловленное деятельностью радиационно опасного объекта, можно получить из совместного анализа соотношений радионуклидов ^{238}U, ^{226}Ra, ^{232}Th, ^{40}K. Использование данных по формированию радиоактивного загрязнения почвы искусственными радионуклидами за счет глобальных выпадений, позволяет провести оценку времени формирования техногенного загрязнения ураном исследуемой территории (Селезнев, 2009; A. Seleznev et. al., 2010). В настоящей работе показана возможность применения гамма-спектрометра с детектором из особо чистого германия (ОЧГ) для идентификации техногенного загрязнения природными радионуклидами объектов окружающей среды и количественной оценки вклада техногенной составляющей в содержание ^{238}U в пробах почвы.

Материалы

На территории, прилегающей к предприятию по обращению с ураном, проводился отбор проб верхнего слоя почвы весом 2.0–3.0 кг по упорядоченной схеме. В лаборатории образцы почв просушивались при комнатной температуре до воздушно-сухого состояния. Просушенные образцы для получения гомогенной массы просеивались и измельчались (ГОСТ …, 1984). Для уменьшения эманации радона и снижения потерь активности ^{214}Bi и ^{214}Pb в каждую пробу добавляли активированный уголь (Жуковский и др., 2011). В 23 образцах почвы проводилось определение содержания радионуклидов: ^{226}Ra, ^{214}Pb, ^{214}Bi, ^{212}Pb, ^{235}U, ^{238}U, ^{40}K и ^{137}Cs.

Методы

Измерения удельной активности проводились на гамма-спектрометрической установке РКГ–1 (BSI) с ОЧГ детектором, имеющим относительную эффективность регистрации для энергии 1.33 МэВ не менее 40 %. Образцы почв измерялись в геометрии Маринелли в течение 5.5–6 часов.

Гамма-спектрометрия образцов почвы информативна с точки зрения идентификации радионуклидного состава. В то же время сложность в обработке результатов гамма-спектрометрии состоит в учете вклада в исследуемый пик конкретного радионуклида от близлежащих гамма-линий других радионуклидов. Так, определение ^{235}U и ^{226}Ra в почве осложняется тем, что оба нуклида имеют собственные гамма-линии в области 186 кэВ. Для решения этой проблемы существуют два основных подхода, благодаря которым можно рассчитать активность ^{226}Ra. В первом случае, кроме активности ^{235}U и ^{226}Ra, рассчитывается активность ^{230}Th, ^{223}Ra, ^{228}Ac (De Corte et. al, 2005). В данной работе активность ^{226}Ra определена по дочерним продуктам распада радия – ^{214}Bi и ^{214}Pb, которые с ним находятся в равновесии. Для расчета активности ^{235}U из суммарной активности в пике 186.6 кэВ вычитали активность ^{214}Bi и ^{214}Pb.

Результаты

Анализ данных гамма-спектрометрических измерений проб почвы

Из 23 образцов почвы удельная активность ^{235}U определена только в трех пробах (U18, U20, U23). Полученные отношения активности $^{238}U/^{235}U$ в этих пробах (1.7; 3.1; 4.1) указывают на аномально высокое содержание ^{235}U, что свидетельствует о техногенном источнике поступления урана в почву.

Для оценки техногенного вклада урана в исследованных образцах почвы выполнен анализ радионуклидных отношений удельной активности (УА) ^{238}U к удельной активности ^{226}Ra, ^{232}Th, ^{40}K. Результаты радионуклидных отношений представлены ниже:

$^{238}U/^{226}Ra$:	0.14–1.81
$^{238}U/^{232}Th$:	1.6–6.1
$^{238}U/^{40}K$:	0.11–0.62

Для полученных совокупностей радионуклидных отношений выполнен анализ показателей асимметрии и эксцесса. Первоначально анализ показателей асимметрии и эксцесса проведен для упорядоченной по возрастанию выборки 23 последовательных значений радионуклидных отношений $^{238}U/^{226}Ra$. Установлено, что начиная с выборки из 19 последовательных результатов измерений, добавление последующего результата достоверно приводит к асимметрии распределения. Выборку из 17 измерений, в которой показатель эксцесса выборки радионуклидных отношений существенно не меняется, принимаем за однородную, сформированную без антропогенного фактора. Визуально не нарушенные радионуклидные отношения располагаются вдоль прямой, характеризующей корреляционные соотношения радионуклидов в минеральных и органических компонентах почвы (рис. 1). Данное корреляционное соотношение между активностью ^{238}U (y) и активностью ^{226}Ra (x) описывается простым линейным уравнением (1):

$$y = 0.1433x + 11.728 \quad (1).$$

Аналогично проведен анализ для отношений $^{238}U/^{232}Th$ и $^{238}U/^{40}K$. Получены корреляционное соотношение радионуклидов для образцов почвы, на которые не оказывалось антропогенное воздействие. Корреляционное соотношение между активностью ^{238}U и активностью ^{232}Th описывается уравнением

$$y = 1.0688x + 9.2517 \quad (2).$$

Корреляционное соотношение между активностью ^{238}U и активностью ^{40}K описывается уравнением

$$y = 0{,}0908x + 5{,}2613 \quad (3).$$

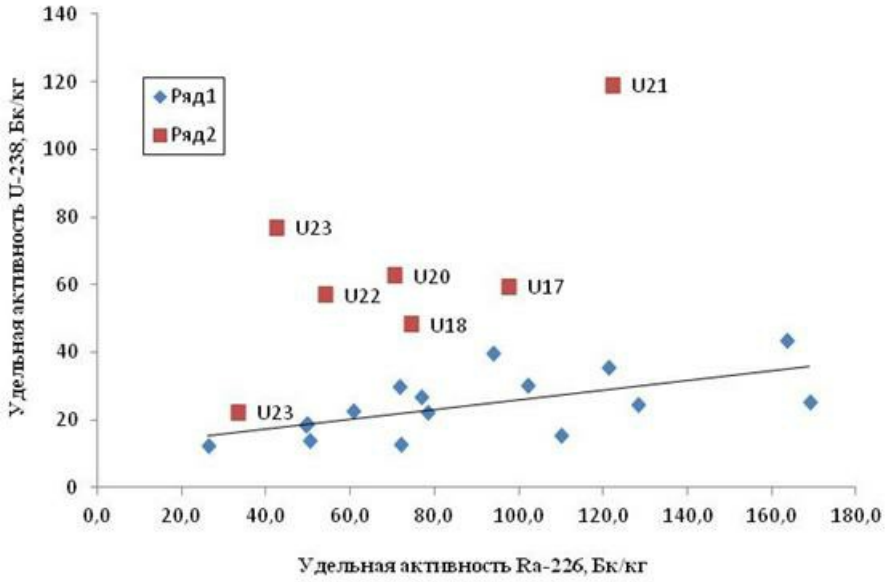

Рис. 1. Корреляционное соотношение между УА ^{238}U и УА ^{226}Ra.
Ряд *1* – значения УА в пробах почвы без антропогенного фактора.
Ряд *2* – значения УА в пробах почвы с техногенным загрязнением
Fig. 1. The correlation ratio between ^{238}U concentration Bq/kg and ^{226}Ra concentration Bq/kg.
1 – concentration values in soil samples without anthropogenic factor.
2 – concentration values in soil samples with anthropogenic factor

На основании полученных уравнений выполнена оценка дополнительного содержания ^{238}U в образцах почвы, отнесенных к категории загрязненных. Для этого, по измеренным значениям УА ^{226}Ra, ^{232}Th, ^{40}K загрязненных образцов, рассчитывались значения УА ^{238}U, обусловленные природным содержанием. Разница между рассчитанным и измеренным значением УА ^{238}U соответствует дополнительному техногенному вкладу (табл. 1).

Таблица 1. Оценка дополнительное количество УА ^{238}U в образцах почвы

Код пробы	УА* ^{238}U, Бк/кг	Техногенный вклад в УА ^{238}U образцов почвы, %			
		по УА ^{226}Ra, формула 1	по УА ^{232}Th, формула 2	по УА ^{40}K, формула 3	ср. знач
1	*2*	*3*	*4*	*5*	*6*
U17	59	58 %	63 %	66 %	62 %
U18	48	54 %	54 %	60 %	56 %
U19	22	27 %	27 %	-	27 %
U20	63	65 %	51 %	49 %	55 %
U21	119	76 %	76 %	67 %	73 %

U22	57	67 %	58 %	72 %	65 %
U23	77	77 %	70 %	78 %	75 %

* - измеренное значение УА ^{238}U в загрязненных образцах почвы.

В установленных загрязненных образцах почвы дополнительное содержание ^{238}U находится в диапазоне от 27 до 78 % от измеренного значения. Оценки дополнительного содержания ^{238}U, полученные по различным корреляционным соотношениям, отличаются друг от друга не более чем на 15 %.

Оценка периода поступления техногенного урана в почву

Оценка продолжительности формирования техногенного загрязнения почвы выполнена по результатам измерения удельной активности ^{137}Cs в исследуемых образцах почвы. Поверхностный слой почвы подвержен загрязнению ^{137}Cs от атмосферных выпадений радионуклидов, образовавшихся в результате атмосферных ядерных испытаний и аварий на радиационно-опасных объектах. Продолжительный период полураспада цезия приводит к его накоплению в верхнем слое почве. Чем длительнее период ненарушенного состояния почвы, тем большее количество депонированного цезия можно ожидать. Отсутствие в исследуемых образцах почвы ^{134}Cs указывает на отсутствие выпадений от современных радиационных аварий, таких как на АЭС в Фукусиме, что позволяет воспользоваться ранее опубликованными данными по хронометрии поверхностного загрязнения почвы выпадениями ^{137}Cs (Селезнев, 2009; Seleznev et. al., 2010).

Для исследованных образцов УА ^{137}Cs определена в диапазоне от 0.5 до 69.2 Бк/кг. Совокупность полученных результатов может быть разделена на две группы по времени формирования загрязнения цезием (рис. 2). В группу 1 попадают образцы, которые находились под воздействием атмосферных выпадений менее 25 лет. Группа 2 представлена образцами почвы с периодом накопления цезия более 25 лет.

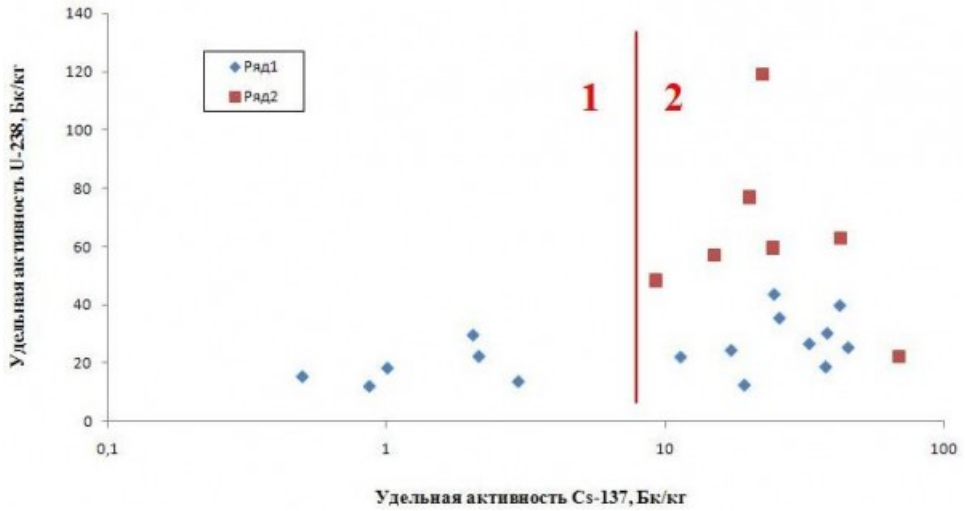

Рис. 2. Радионуклидные отношения между УА ^{238}U и УА ^{137}Cs в почве.
Ряд *1* – значения УА в пробах почвы без антропогенного фактора.
Ряд *2* – значения УА в пробах почвы с техногенным загрязнением
Fig. 2. Radionuclide relationship between ^{238}U and ^{137}Cs concentration Bq/kg in soil.
1 – concentration values in soil samples without anthropogenic factor.
2 – concentration values in soil samples with anthropogenic contamination

Все образцы, содержащие техногенный уран, находились в условиях длительного накопления радионуклидов из атмосферных выпадений. Выполненная оценка периода формирования загрязнения почвы ^{238}U позволяет сделать предположение, что существующая на радиационно опасном объекте технология по обращению с ураном обеспечивает низкую интенсивность поступления изотопов урана

в атмосферу, которая не может быть выявлена гамма-спектрометрическим измерением почвы за период эксплуатации менее 25 лет.

Заключение

Результаты гамма-спектрометрического анализа позволяют идентифицировать радионуклидный состав, определить соотношения радионуклидов и оценить техногенную составляющую урана в удельной активности почвы. Из 23 проб почвы методами математической статистики установлены 7 образцов почвы с избыточным содержанием ^{238}U. По найденным корреляционным зависимостям определен вклад техногенной составляющей ^{238}U в УА почвы. В загрязненных образцах почвы дополнительное содержание ^{238}U оценено в диапазоне от 27 до 78 % от измеренного значения.

Гамма-спектрометрическое определение УА ^{235}U и ^{226}Ra осложняется тем, что оба нуклида имеют собственные гамма-линии в области 186 кэВ. На практике активность ^{226}Ra предпочтительно определять по дочерним продуктам распада радия – ^{214}Bi и ^{214}Pb, которые находятся в равновесии с материнским радием, а линию в 186.6 кэВ полностью присваивать ^{235}U.

Наличие в исследуемых образцах почвы техногенного ^{137}Cs позволяет получить примерный возраст загрязнения почвы техногенным ураном. Длительность накопления урана в почве на участках воздействия выбросов в атмосферу радиационноопасного объекта составляла не менее 25 лет.

Данная работа была выполнена в рамках Программы Президиума РАН 12-П-2-1042.

Библиография

Контроль радиационной обстановки. Общие требования: Методические указания МУ 2.6.1.14-2001.

Титаева Н. А. Ядерная геохимия. М.: Изд-во МГУ, 2000. 336 с.

Дричко В. Ф., Крисюк Б. Э. и др. Частотное распределение концентраций радия-226, тория-228 и калия-40 в различных почвах // Почвоведение. 1977. № 9. С 75–80.

Алексахин Р. М., Архипов. Н. П., Бархударов Р. М. и др. Тяжелые естественные радионуклиды в биосфере: Миграция и биологическое действие на популяции и биогеоценозы. // М.: Наука, 1990. 368 с.

Стамат И. П., Лисаченко Э. П. Эффективная удельная активность природных радионуклидов в средах с нарушенным радиоактивным равновесием в рядах урана и тория // Радиационная гигиена. 2008. Т. 1. № 1.

Екидин А. А., Кирдин И. А., Пахолкина О. А., Ярмошенко И. В. Оценка радиационного воздействия на окружающую среду нефтеперерабатывающего предприятия // Вопросы радиационной безопасности. 2005. № 1. С. 35–44.

Селезнев А. А. Поверхностная локальная миграция ^{137}Cs в условиях экосистемы города // Вопросы радиационной безопасности. 2009. № 3. С. 70–76.

Seleznev A. A., Yarmoshenko I. V., Ekidin A. A. Accumulation of ^{137}Cs in puddle sediments within urban ecosystem // Journal of Environmental Radioactivity. 101 (2010). P. 643–646.

ГОСТ 17.4.4.02-84 «Методы отбора и подготовки проб для химического, бактериологического, гельминтологического анализа» // М.: Изд-во стандартов. 1985. С. 7.

Жуковский М. В., Новиков Д. В. Модифицированный метод измерения удельной активности Ra-226 в образцах грунта // АНРИ. 2011. N 2. С. 25–30.

De Corte F., Umans H., Vandenberghe D., de Wispelaere A., van den Haute P. Direct gamma-spectrometric measurement of the ^{226}Ra 186.2 keV line for detecting 238U/226Ra disequilibrium in determining the environmental dose rate for the luminescence dating of sediments // Applied Radiation and Isotopes. № 63 (2005). P. 590.

Благодарности

Выражаем благодарность М. В. Жуковскому за идею работы и И. В. Ярмошенко за помощь в подготовке статьи.

GAMMA-RAY SPECTROMETRY APPLICATION FOR DETECTION OF ANTHROPOGENICALLY URANIUM-POLLUTED SOIL

EKIDIN Alexey Akimovich — *PhD, Institute of Industrial Ecology UB RAS (620219, Ekaterinburg, S.Kovalevskoj st., 20), ekidin@ecko.uran.ru*

VASYANOVICH Maksim Evgenjevich — *PhD, Institute of Industrial Ecology UB RAS (620219, Ekaterinburg, S.Kovalevskoj st., 20), vasyanovich_maks@mail.ru*

NALIVAJKO Andrej Vitaljevich — *PhD, Agency of ecological safety "Alpha-X91" (620990, Ekaterinburg, S.Kovalevskoj st., 20A), nalivaiko1@yandex.ru*

Keywords: Radionuclide, isotopes of uranium, gamma-spectrometry, the natural isotope ratio.

Reviewer: V. V. Vapirov

Received on: 29 July 2013
Published on: 27 September 2013

Summary: In this article are considered detection methods of anthropogenic uranium component in the soil on the basis of the relational analysis of 238U specific activity to the specific activity of other natural radionuclides. Significant shift in the balance between 226Ra and 238U allows to make the assumption about the existence of external causes of modification in the radionuclides specific activity in the decay chain. In the cases when specific activity of 235U is reliably determined anthropogenic uranium supply is confirmed by a significant difference in 238U/235U ratio from 21.7. There are several soil samples with low-activity of 235U, in which 238U/232Th, 238U/40K ratio's analysis allows to confirm the estimated additional uranium content. Formation length of anthropogenic soil pollution can be determined by 137Cs specific activity.