

УДК 631.039.9

*M. K. КНАТОВА¹, M. A. УМАРОВ², M. M. БУРКИТБАЕВ³,
L. L. ВИНТРО⁴, P. I. МИТЧЕЛ⁴, H. ПРИСТ⁵*

РАДИОНУКЛИДНЫЙ АНАЛИЗ ОБРАЗЦОВ ВОДЫ БЫВШЕГО СЕМИПАЛАТИНСКОГО ИСПЫТАТЕЛЬНОГО ПОЛИГОНА

Приведены результаты определений радионуклидов в водных объектах бывшего Семипалатинского испытательного полигона (СИП). Проанализированы такие водные объекты, как озера Телкем 1, Телкем 2, атомное озеро Балапан, и воды, вытекающие из штолен горного массива Дегелен. Определены уровни активностей радионуклидов ^{137}Cs , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{238}Pu , ^{234}U , ^{235}U , ^{238}U , ^{228}Th и ^{241}Am . Представлены схемы радиоаналитических методик для определения искусственных и естественных нуклидов в воде.

После прекращения испытаний ядерного оружия на бывшем Семипалатинском испытательном полигоне (СИП) встал вопрос об уточнении масштабов и степени радиоактивного загрязнения окружающей среды полигона. Для разработки научно-исследовательских программ, направленных на ремедиационные мероприятия, прогнозирование миграционных свойств и изучение степени воздействия искусственных радионуклидов на окружающую среду, в том числе и на человека, необходимы данные о радиоэкологической обстановке, о составе токсичных долгоживущих искусственных радионуклидов, образованных в результате взрывов, об уровнях их содержания и формах нахождения радиотоксичных элементов в объектах окружающей среды [1].

Основной аккумулятор искусственных радионуклидов (ИРН) после проведенных испытаний, как правило, почва. Вместе с тем вода, являющаяся более социально значимым объектом, на СИП также служит аккумулятором определенной части радионуклидов. Кроме того, вода представляет собой один из самых мощных (после воздуха) каналов переноса радионуклидного загрязнения на большие расстояния и поступления радионуклидов в организм животных и человека. К числу из водных объектов на СИП, связанных с ядерными испытаниями, относятся: искусственные озера, образованные в результате экспекционных взрывов, такие, как атомное озеро Балапан, озера Телкем 1 и Телкем 2, а также ручьи штолен горного массива Дегелен.

В настоящей работе приведены результаты радионуклидного анализа указанных водных объектов на содержание радионуклидов ^{137}Cs ($T_{1/2} = 30$ лет), ^{239}Pu ($T_{1/2} = 24000$ лет), ^{240}Pu ($T_{1/2} = 6560$ года) и ^{241}Am (432 года) а также естественные радионуклиды (ЕРН) – изотопы урана и тория. Помимо оценки уровней ИРН и ЕРН в водных объектах СИП целью настоящей работы являлись также оценка возможностей существующих методов анализа ИРН и ЕРН в воде и получение информации о достижимых пределах чувствительности используемых методов. Отбор проб воды проводился в рамках международного проекта программы НАТО «Наука во имя мира».

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Отбор проб. Пробы воды непосредственно после отбора фильтровались, в них добавлялись растворы изотопных меток (трассеры) и носителей. Затем консервировались с подкислением либо азотной, либо соляной кислотой до $\text{pH} < 2$. Объем одной пробы воды составлял 1 л. Для анализа радионуклидов и определения химического выхода использовались растворы изотопных меток с аттестованной активностью.

Определение цезия-137. Активность ^{137}Cs устанавливалась гамма-спектрометрическим методом без предварительного химического выделения определяемого радионуклида. Пробу воды объемом 500 мл переносили из сосуда-контейнера в сосуд Маринелли и устанавливали на

¹Институт ядерной физики НЯЦ РК, г. Алматы; ²Институт радиационной безопасности и экологии НЯЦ РК, г. Курчатов; ³Казахский национальный университет им. аль-Фараби, г. Алматы; ⁴University College of Dublin, Radiation Physics Research Laboratory, Dublin; ⁵Middlesex University of London, UK.

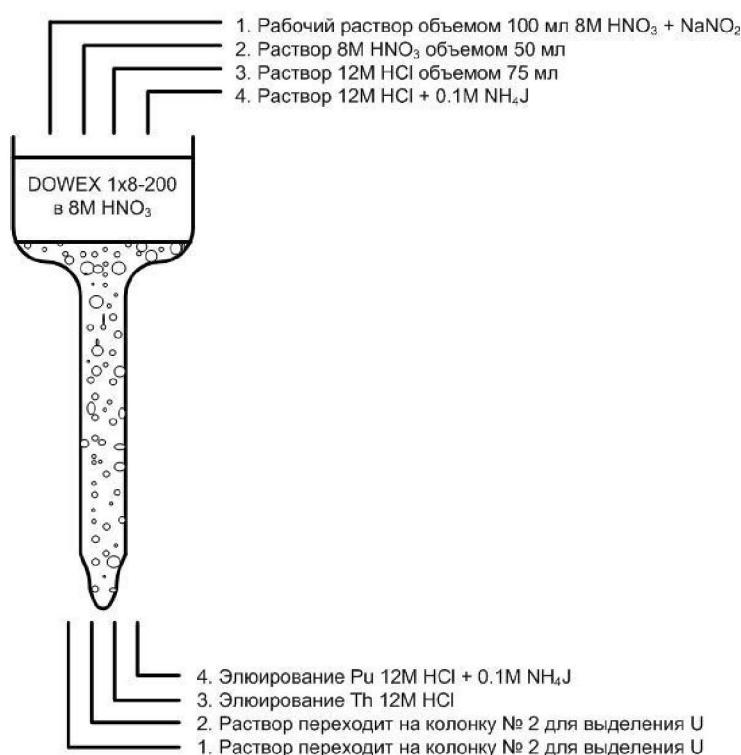


Рис. 1. Схема выделения и очистки плутония

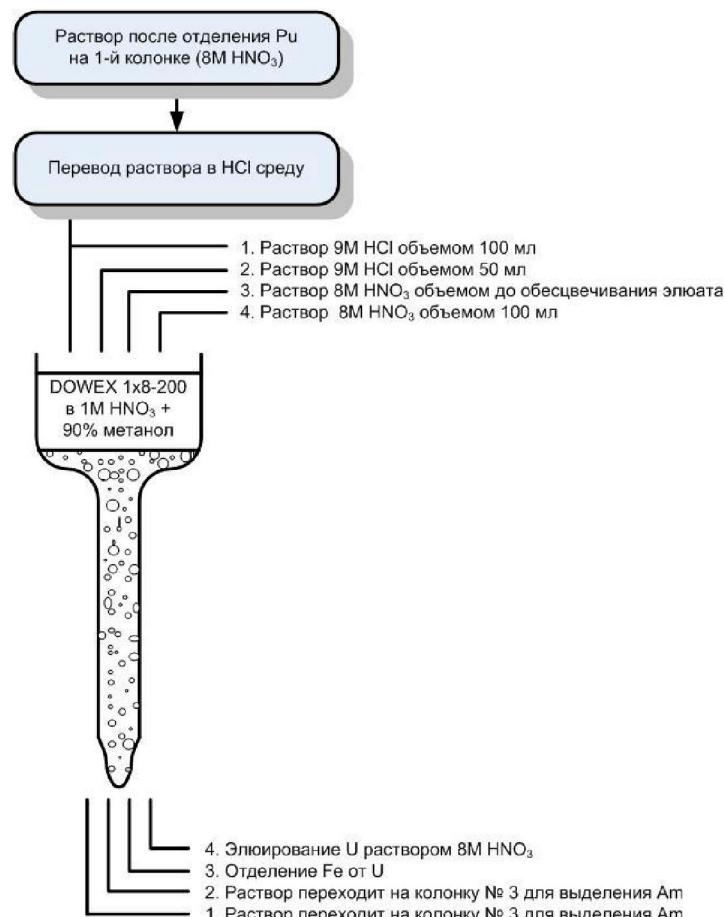


Рис. 2. Схема выделения и очистки урана

детектор для регистрации гамма-излучения ^{137}Cs . Измерения проводились на гамма-спектрометре, включающем детектор на основе сверхчистого германия GMX-15185 фирмы Ortec [2]. Для определения эффективности регистрации гамма-излучения ^{137}Cs использовался стандартный раствор с известной активностью нескольких искусственных радионуклидов, в том числе и ^{137}Cs .

Расчет удельной активности ^{137}Cs . Анализ проводился с использованием программного пакета GeniePC, коммерчески поставляемого фирмой Canberra. Площади пиков рассчитывались подгонкой функции описания пика к спектральным данным с учетом (вычитанием) непрерывного фонового распределения.

Определение радионуклидов $^{238,239+240}\text{Pu}$, $^{234,235,238}\text{U}$, ^{228}Th и ^{241}Am . Уровни активности изотопов плутония, урана, тория и ^{241}Am устанавливались из этих же проб воды, что и цезий-137. Концентрировались эти радионуклиды соосаждением на гидроксидах железа из 1 л пробы.

Радиохимическое выделение актинидов. Радиохимическое выделение альфа-излучающих радионуклидов проводили по методике, разработанной и применяемой в университете Дублина, которая основана на использовании методов экстракционной хроматографии. Схематически радиохимический метод выделения исследуемых актинидов показан на рис. 1–3.

Перед проведением процедур концентрирования и радиохимического выделения и определения активности $^{239+240}\text{Pu}$, ^{238}Pu были добавлены в пробу воды растворы трассеров (изотопная метка) ^{242}Pu , для анализа ^{241}Am – раствор трассера ^{243}Am , для анализа изотопов урана – ^{232}U и для анализа ^{228}Th – ^{229}Th . Все стандартные растворы трассеров с аттестованной активностью были поставлены Национальным институтом стандартизации и технологии США (NIST).

Данный радиохимический метод широко применяется в экспериментальной лаборатории Дублина. Он позволяет получить исследуемые ра-

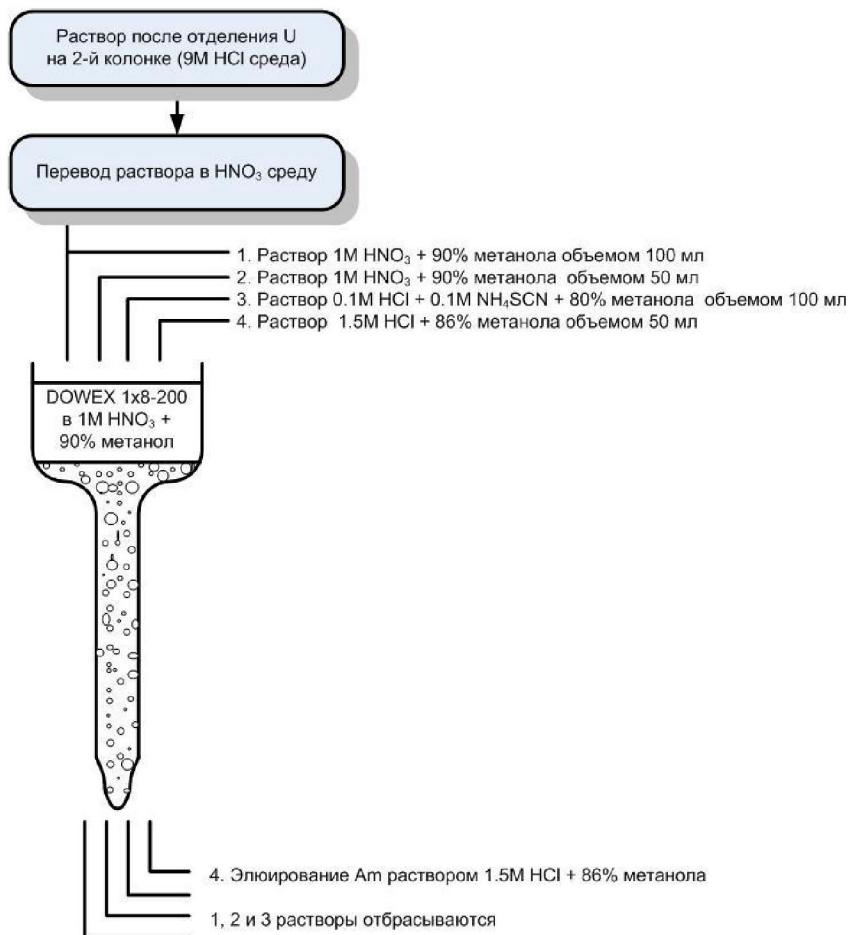


Рис. 3. Схема выделения и очистки америция

дионуклиды в радиохимически чистом виде, требуемом для альфа-спектрометрического анализа [3].

Для приготовления тонких альфа-излучающих источников было применено электрохимическое осаждение анализируемых радионуклидов на дисковую подложку, изготовленную из нержавеющей стали [4]. Электрохимическим методом были осаждены и приготовлены источники каждого анализируемого радионуклида. Химические выходы плутония, урана, тория и америция после проведения нескольких этапов, таких, как концентрирование, выделение, очистка и осаждение, были равны 70 – 90 %. Измерения альфа-излучения изотопов проводились на 8-камерном альфа-спектрометре фирмы Canberra (Quad Alpha, Canberra 7404). Обработка альфа-спектров проводилась с использованием пакета программного обеспечения GeniePC (Canberra).

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Уровни содержания цезия-137. Результаты измерения и определения уровней активности цезия-137, проведенные независимыми методами в лабораториях университета Дублина (Ир-

ландия) и Института ядерной физики (НЯЦ, Казахстан), приведены в табл. 1.

Сравнение данных, полученных двумя разными методами в Дублинской лаборатории (UCD) и в Институте ядерной физики (ИЯФ), показало хорошую воспроизводимость. Из приведенных значений также видно, что в штолнях горного массива Дегелен содержание радионуклида ^{137}Cs в несколько сот раз превышает допустимые уровни, регламентированные НРБ-99, что, в свою очередь, требует проведения тщательного мониторинга данных объектов с установлением источника загрязнения с последующей выработкой ремедиационных мероприятий. Низкое содержание ^{137}Cs в воде искусственных озер, по-видимому, объясняется труднорастворимой формой нахождения данного радионуклида в донных отложениях.

Уровни содержания актинидов. После процедур радиохимической очистки, выделения и осаждения анализируемых радионуклидов и последующего измерения получены радиоаналитические данные по уровням содержания их в отобранных пробах воды СИП, приведенные в табл. 2 и 3.

Таблица 1. Результаты определения удельной активности ^{137}Cs ($\pm 1 \sigma$) в отфильтрованной воде, отобранный из водных объектов СИП в сентябре 2003 г., полученные в лабораториях Дублина и Алматы

Место отбора	^{137}Cs , Бк l^{-1} (Дублин, UCD)	^{137}Cs , Бк l^{-1} (Алматы, ИЯФ)
Озеро Телкем 1	$0,20 \pm 0,03$	$0,15 \pm 0,10$
Озеро Телкем 2	$0,06 \pm 0,02$	$< 0,23$
Атомное озеро	$0,15 \pm 0,03$	$< 0,9$
№ 177, штолня	$0,80 \pm 0,06$	-
№ 504, штолня	605 ± 2	700 ± 10
№ 104, штолня	220 ± 1	210 ± 5
№ 609, штолня	275 ± 1	300 ± 5
ПДК радионуклида в воде (НРБ-99)	11	

Таблица 2. Результаты определения удельной активности ^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$, ^{228}Th и ^{241}Am в отфильтрованной воде, отобранный из водных объектов СИП в сентябре 2003 г.

Место отбора	^{238}Pu , мБк l^{-1}	$^{239+240}\text{Pu}$, мБк l^{-1}	^{241}Am , Бк l^{-1}	^{228}Th , мБк l^{-1}
Телкем 1	-	173 ± 3	$< 0,07$	$15,2 \pm 0,3$
Телкем 2	$0,41 \pm 0,14$	$44,1 \pm 1,6$	$< 0,05$	$137,8 \pm 1,6$
Атомное озеро	-	$16,4 \pm 0,6$	$< 0,005$	310 ± 5
№ 177, штолня	$1,06 \pm 0,13$	$74,8 \pm 1,5$	$< 0,02$	$18,3 \pm 0,8$
№ 504, штолня	$0,23 \pm 0,07$	$5,6 \pm 0,4$	$< 0,001$	81 ± 1
№ 104, штолня	$0,51 \pm 0,15$	$27,9 \pm 1,2$	$< 0,015$	86 ± 1
№ 609, штолня	$2,0 \pm 0,2$	158 ± 3	$< 0,02$	-
УВ радионуклида в воде (НРБ-99)	600	560	0,69	1900

Примечание. Анализ выполнен в Дублине (UCD)

Таблица 3. Результаты определения удельной активности изотопов урана в отфильтрованной воде, отобранный из водных объектов СИП в сентябре 2003 г.

Место отбора	^{234}U , Бк l^{-1}	^{235}U , Бк l^{-1}	^{238}U , Бк l^{-1}	$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$	$^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$
Телкем 2	$4,2 \pm 0,3$	$0,25 \pm 0,04$	$1,19 \pm 0,02$	$3,53 \pm 0,26$	$0,21 \pm 0,03$
Атомное озеро	$0,42 \pm 0,01$	$0,015 \pm 0,001$	$0,251 \pm 0,007$	$1,67 \pm 0,05$	$0,060 \pm 0,004$
№ 177, штолня	$43,5 \pm 1,4$	$0,94 \pm 0,06$	$14,44 \pm 0,35$	$3,01 \pm 0,12$	$0,065 \pm 0,004$
№ 504, штолня	$13,2 \pm 1,1$	$0,7 \pm 0,2$	$10,5 \pm 0,1$	$1,26 \pm 0,11$	$0,067 \pm 0,019$
№ 104, штолня	$38,2 \pm 0,7$	$0,96 \pm 0,04$	$16,6 \pm 0,3$	$2,30 \pm 0,06$	$0,058 \pm 0,003$
№ 609, штолня	$22,8 \pm 1,4$	$0,67 \pm 0,10$	$6,4 \pm 0,2$	$3,56 \pm 0,25$	$0,104 \pm 0,017$
УВ радионуклида в воде (НРБ-99)	2,9	3,0	3,1	-	-

Приведенные данные являются оценкой уровней искусственных и естественных радионуклидов в рассматриваемых водных объектах СИП. Содержание актинидов в исследуемых водных объектах находится ниже уровней вмешательств радионуклидов в воде согласно НРБ-99. Однако с учетом того, что вода в штолнях горного массива Дегелен изливается на дневную поверхность непрерывно (дебит воды отличается от штолни к штолне), поверхность почв в районе устья штолен Дегелена будет являться объектом вторичного загрязнения. В связи с этим полученные аналитические результаты будут способствовать принятию природоохранных мер при полномасштабных радиоэкологических исследованиях.

Полученные значения изотопного соотношения $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ в большинстве случаев выше отношения природных распространеностей урана-235 и урана-238 ($0,04636 - 0,04681$) [5], вероятно, за счет привноса урана-235 из продуктов ядерного заряда. Отношение $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ в исследуемых водных объектах находится на уровне $1,26 - 3,56$, что свидетельствует о неравновесности дочернего продукта ^{234}U с ^{238}U . Уровни содержания изотопов урана, за исключением ^{235}U , почти во всех водных объектах (кроме атомного озера Балапан) превышают уровни вмешательства радионуклидов в воде (НРБ-99).

Из изложенного можно сделать следующие выводы.

Двумя независимыми методами определены содержания искусственного радионуклида ^{137}Cs в водных объектах СИПа. В штолнях горного массива Дегелен содержание радионуклида ^{137}Cs в несколько сот раз превышает допустимые уровни, регламентированные НРБ-99, что, в свою очередь, требует проведения тщательного мониторинга данных объектов с установлением источника загрязнения с последующей выработкой

ремедиационных мероприятий. Низкое содержание ^{137}Cs в воде искусственных озер, по-видимому, объясняется труднорастворимой формой нахождения данного радионуклида в донных отложениях.

Содержания изотопов плутония, америция и тория в исследуемых водных объектах находятся ниже уровней вмешательств радионуклидов в воде согласно НРБ-99. Однако поскольку вода в штолнях Дегелена изливается на дневную поверхность непрерывно (дебит воды отличается от штолни к штолне), то поверхность почв в районе устья штолен Дегелена будет являться уже объектом вторичного загрязнения.

Изотопное соотношение $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ в большинстве случаев выше отношения природных распространеностей урана-235 и урана-238 ($0,04636 - 0,04681$), вероятно, за счет привноса урана-235 из продуктов ядерного заряда. Уровни содержания изотопов урана, за исключением ^{235}U , почти во всех водных объектах превышают уровни вмешательства радионуклидов в воде (НРБ-99).

Авторы признательны научной программе НАТО «Наука во имя мира» за представление гранта SfP-976046 SEMIRAD, в рамках которого выполнена настоящая работа.

ЛИТЕРАТУРА

- Ядерные испытания СССР: современное радиоэкологическое состояние полигонов / Кол. авторов под рук. В.А. Логачева. М.: АТ, 2002. 592 с.
- Mann W. B., Rytz A., Spernol A. Radioactivity Measurements: Principle and Practice // Appl. Radiat. Isot. 1988. V. 39. № 8. P. 850–855.
- Luis Le'on Vintr'o and Peter I. Mitchel. Actinides and other Alpha-emitters, Determination of. In Encyclopedia of Analytical Chemistry / R.A. Meyers (Ed.), O John Wiley & Sons Ltd. Chichester, 2000. P. 12848–12884.
- Lally and Glover. Electrodeposition of transuranium elements from aqueous involves the cathodic deposition // Appl. Radiat. Isot. 1984. V. 5, N17. P. 347 - 355.

5. Holden N.E. The Uranium half-livers: critical review. National nuclear date center. Brookhaven National laboratory. New York, BNL-NCS-51320. 27 p.

Резюме

Бұрынғы Семей сынақ полигонындағы (ССП) су нысаналарындағы радионуклидтерді анықтаудың нәтижелері

келтірілген. Су нысаналары Телкем 1, Телкем 2, Атомдық (Балапан) көлдері және Дегелен тауының үңгірлерінен шыбып жатқан сулар зерттелді. ^{137}Cs , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{238}Pu , ^{234}U , ^{235}U , ^{238}U , ^{228}Th , ^{241}Am радионуклидтерінің белсендіктерінің деңгейлері анықталды. Жасанды және табиғи радионуклидтерді суда анықтаудың радиоаналитикалық әдістемелерінің тізбектері көрсетілген.