

RADIATION SITUATION AROUND MINE "YUNY KOMUNAR"

Buzinny M., Soroka Y., Tsygankov N.

РАДІАЦІЙНА СИТУАЦІЯ НАВКОЛО ШАХТИ "ЮНИЙ КОМУНАР"

М

етою дослідження радіаційної ситуації навколо шахти "Юний Комунар" було виявлення забруднення довкілля внаслідок проведеного у ній 1979 року вибуху ядерного заряду. Розглядалася можливість знаходження довгоживучих продуктів вибуху: ^3H , ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Am та ядерних матеріалів (^{239}Pu або надлишкового ^{235}U). Дослідження провадилися восени 2005 року.

З огляду на значний водообмін у районі шахти очікувано низькі рівні питомої активності тритію можна вимірювати або довготривалими прямими вимірюваннями водних зразків після їх очистки, або застосуванням інтенсифікації чутливості переведенням зразків води в органічну фазу — бензол та відповідними тривалими вимірюваннями [1-3]. Досвід гідрогеологічних тритієвих досліджень вказує на перевагу першого методу, якщо чутливість визначення є достатньою [3]. Аналізуючи еволюцію формування донних осадів, ми вважали, що тривалий процес формування їх має значне концентрування та інтегрування за відповідний час. Методи

досліджень є традиційними та такими, що широко застосовуються, тому їх описано схематично. У доступних результатах попередніх досліджень спостерігається певне протиріччя, тому, плануючи ці дослідження, ми орієнтувалися на низькі рівні вмісту радіонуклідів і на відповідні високочутливі методи їх визначення.

МЕТОДИ ДОСЛІДЖЕННЯ

Тритій. Проста підготовка проб води для визначення тритію передбачала дистиляцію та подальшу підготовку гомогенного зразка з 8 мл води та 12 мл сцинтиляційної рідини Optiphase Highsafe 3 у поліетиленовій вимірювальній пляшечці — віалі. Складна підготовка проб для вимірювань тритію — це синтез бензолу з використанням досліджуваної води, а очікувані переваги — це певне концентрування водню — до двократної кількості у вимірювальній пляшечці та очікувана вища ефективність обліку зразків в органічній формі [9].

Цезій-137 та стронцій-90. При визначенні ^{90}Sr , ^{239}Pu і ^{241}Am в об'єктах навколишнього середовища дотримувалися рекомендацій документів [4-7]. Методи відрізняються для води та донних осадів (мулу). Провадилося попереднє концентрування води сумісним висадженням ^{137}Cs та ^{90}Sr на фероціанідному комплексі та у карбонатному комплексі відповідно з об'єму 20-50 літрів. Відповідні подальші дослідження — це гамма-спектрометрія для ^{137}Cs та радіометрія для ^{90}Sr з застосуванням радіохімічного виділення.

У пробах мулу і ґрунту визначення стронцію базувалося на руйнуванні попередньо прожареної при 500°C проби (50-100 г) у 6 М HCl і подальшому

**БУЗИННИЙ М.Г.,
СОРОКА Ю.М.,
ЦИГАНКОВ М.Я.**

ДУ "Інститут гігієни та медичної екології ім. О.М. Марзєєва АМН України",
Науковий Центр радіаційної медицини АМН України,
м. Київ

УДК 539.1.074:577.4:614.7

РАДИАЦИОННАЯ СИТУАЦИЯ ВОКРУГ ШАХТЫ "ЮНЫЙ КОММУНАР"

Бузынный М.Г., Сорочка Ю.Н., Цыганков Н.Я.

Исследование радиационной ситуации вокруг шахты "Юный Комунар" ставило целью выявление загрязнения окружающей среды вследствие проведенного в ней в 1979 году взрыва ядерного заряда. Исследования проводились осенью 2005 г. Рассматривалась возможность обнаружения долгоживущих продуктов взрыва: ^3H , ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Am и ядерных материалов (^{239}Pu или избыточного ^{235}U).

Учитывая небольшую мощность заряда и продолжительное время с момента взрыва, значительные коэффициенты поглощения продуктов породами и/или разбавление искусственными водными потоками, которые присутствуют в шахтах, применялись высокочувствительные методы определения радионуклидов с предварительным их концентрированием, где это возможно и необходимо.

В результате исследований было обнаружено достоверное отличие в концентрации трития в воде горизонтов шахты 936 м и 826 м, которое составило 5 Бк·л⁻¹.

висадженні оксалатів лужно-земельних елементів. Очистка від природних радіонуклідів здійснювалась шляхом двох послідовних співвисаджень їх на гідроксиді заліза. Вимірювання активності ^{90}Sr здійснювалося після накопичення дочірнього ^{90}Y після його виділення. Використовували радіометр LB 5100 фірми Tenelec, США.

Плутоній-239 та Америцій-241. Виділення плутонію здійснювалося на аніоніті з 7 М розчину HNO_3 . Для очистки від торію використовували промивку аніоніту 10 М HCl . Вимивання плутонію зі смоли провадилося 10 М HCl у присутності NH_4J . На відміну від плутонію виділення америцію було складнішим. У сильноокислих розчинах соляної та азотної кислот він не утворює комплексних іонів, які б поглинались аніонітами. Тому для виділення америцію необхідна ретельна очистка розчинів від макродомішок. Це здійснюється шляхом його послідовного співвисадження на оксалаті кальцію і перевисадження на гідроокисі заліза. Очистка від плутонію та урану здійснювалась на аніоніті з азотноокислих і солянокислих розчинів. Виділення америцію від рідкоземельних елементів провадилось аніонітом з метанольних розчинів у присутності роданіду амонію.

Для визначення хімічного виходу методик виділення радіонуклідів використовували відповідні мітки ^{242}Pu і ^{243}Am . Нанесення радіонуклідів на диски з нержавіючої сталі здійснювалось електрохімічним способом.

Ідентифікація радіонуклідів і визначення їхньої активності провадилося на альфа-спектрометрах фірм Canberra та Ortec, США. Чутливість визначення плутонію та урану

становила 0.001 Бк на пробу, чутливість визначення америцію — 0.01 Бк на пробу.

Для виявлення америцію та ізотопів плутонію, а також ізотопного зміщення урану застосовуються відповідні радіохімічні методи, які включають використання трасера відповідно ^{242}Am , ^{240}Pu та ^{232}U , концентрування для проб води (10 літрів) радіохімічного виділення за допомогою іонообмінних смол та тривалих вимірювань із застосуванням напівпровідникового альфа-спектрометра.

Використання гамма-спектрометричного методу дало можливість крім ^{137}Cs визначити природні радіонукліди: радій (^{226}Ra), торій (^{232}Th), калій (^{40}K).

ОБЛАДНАННЯ

Для дослідження рівнів радіонуклідів використовували напівпровідниковий гамма-спектрометр виробництва фірми Ortec Inc, США, напівпровідниковий альфа-спектрометр виробництва фірми Ortec Inc, США, рідинно-сцинтиляційний альфа-бета-спектрометр Quantulus 1220 TM виробництва фірми Wallac Oy, Фінляндія. Все обладнання сучасне, внесене до державного реєстру та має чинні свідоцтва про державну метрологічну атестацію.

ВІБІР ЗРАЗКІВ

Відібрано зразки води з відміток 936 м, 826 м, відстійника та ставка. Об'єм проб води становив 20 л для досліджень

цезію та стронцію, 10 л — для досліджень плутонію та америцію, 2 л — для дослідження тритію та урану.

Донні осади (мул) відібрано з огляду на можливість їх вимірювань на гамма-спектрометрі із застосуванням посудини Марінеллі об'ємом 1 л, які склали 1,2 — 2,0 кг, а для досліджень плутонію, америцію та стронцію відібрано відповідні зразки масою 50-100 г.

РЕЗУЛЬТАТИ ДОСЛІДЖЕНЬ

Гамма-спектрометричні дослідження вмісту гамма-випромінюючих радіонуклідів у зразках зведено до таблиці 1, з якої видно, що у досліджених зразках присутні природні радіонукліди — у мулі у характерних невисоких рівнях. У воді вимірювані природні радіонукліди зафіксовано у дуже низьких рівнях, тобто визначено тільки калій, а для радію і торію проведено лише оцінку, яка вказує на присутність їхніх дочірніх радіонуклідів. Зростання калію-40 від відстійника до ставка вказує на його накопичення у воді за рахунок поверхневого змиву. Значення питомої активності цезію-137 є слідовими для проб підземного відбору, а достовірно визначаються тільки для проб поверхневого відбору. Характерне збільшення активності цезію у воді та мулі на шляху відстійник — ставок вказує на поверхневу природу надходження цезію-137 у поверхневу воду та мул — випадіння та поверхневий змив.

Таблиця 1

Результати гамма-спектрометричних досліджень зразків

Опис зразка	Час виміру, с	Маса, кг	Cs-137, Бк • кг ⁻¹	K-40, Бк • кг ⁻¹	Ra-226, Бк • кг ⁻¹	Th-232, Бк • кг ⁻¹
Мул 936 пг 11	23051	1,34	0,37	127	20,0	15,0
Мул 936 пг 12	62008	1,35	0,07	124	21,2	16,1
Мул 826 пк 1	41031	1,05	< 0,03	206	33,9	23,8
Мул 826 пв 1	61152	1,6	< 0,03	205	25,0	20,7
Мул 826 ВБ	90282	1,6	< 0,03	54	13,7	8,0
Відстійник	15382	1,68	1,21	60	10,1	10,8
Мул ставок	10795	1,69	7,9	242	16,8	21,8
Вода відм. 826 м	23745	18	< 0,04	0,31	< 0,01	< 0,01
Вода відм. 936 м	55480	1	< 0,08	0,37	< 0,48	< 0,01
Вода відстійник	59379	18	0,30	0,30	< ,01	< 0,03
Вода ставок	15852	18	0,68	0,63	< ,01	< 0,03

RADIATION SITUATION AROUND MINE "YUNY KOMUNAR"

Buzinny M., Soroka Y., Tsygankov N.

Studying of radiation situation around mine "Yuny Komunar" carried out at 2005 aimed detection of any possible contamination in the environment caused by explosion of nuclear explosive device in it at 1979. Study concerne on long lived radionuclides originated during explosion: ^3H , ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Am and nuclear materials (^{239}Pu and ^{235}U excess). High sensitive methods which include pre concentration where possible and where required were used for sample analyses taking into account long period after explosion, relatively small mass of explosive device, high sorption of radionuclides by rock and/or high dilution by ground water flow. As a result of study it was found only excess of tritium activity for two different mine horizon beeing $5 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$.

Привертає увагу те, що у мулі на горизонті 936 м зафіксовано цезій-137 достовірно, а тому ми вважаємо за доцільне повторити ці дослідження по можливості для декількох зразків. Для води результати можна очікувати, хіба що дослідження провести з більшого об'єму води та ретельніше.

Тритій. Дослідження тритію за простою схемою підготовки проб дало результати, наведені у таблиці 2. Вода нижніх горизонтів шахти 826 м та 936 м має рівень тритію більший за його рівень у поверхневій воді. Контраст рівня тритію води з позначок 826 м та 936 м вказує, що надлишковий тритій має походження, пов'язане з

вибухом. Оскільки отримані рівні питомої активності тритію визначені достовірно, ми вважали за недоцільне провадити визначення за більш чутливою методикою.

Уран у воді. Дослідження урану провадилися за допомогою методу на основі рідинно-сцинтиляційного обліку виключно у воді глибоких горизонтів. Визначена активність відрізняється для проб у півтора рази. Співвідношення активності ізотопів урану 234 до 238 є близьким для двох проб (близько 2.0 на користь урану-234) і характерним для води глибоких горизонтів з помірною тріщинуватістю порід.

Стронцій-90, плутоній-239 та америцій-241 у воді та мулі. Результати, які отримані для плутонію у донних відкладах, є малопредставницькими з тієї причини, що визначені рівні дуже низькі. Альфа-активність у цих пробах визначається виключно природними радіонуклідами ^{238}U і ^{232}Th . Незважаючи на надзвичайно високу ефективність очистки зразків від цих радіонуклідів у процесі виділення плутонію їхня кількість на мішенях, приготовлених для вимірювань, дуже велика, хоча вони не заважають вести ідентифікацію плутонію. При часі набору спектрів 172800 с кількість відліків в енергетичному вікні, що відповідає плутонію-239, коливалася від 3 до 5. Така кількість відліків межує з фоновою, особливо при тому, що у носії, який використовували, є домішок плутонію-239, який становить близько 1,2%. Саме тому доцільно всі отримані результати щодо плутонію представити у вигляді $<0.05 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$. Чутливість методики становить 0.001 Bq на пробу.

Таблиця 2

Питома активність тритію у пробах дослідженої води

Проба	Тритій, Бк · л ⁻¹
T3	0
T5	2,42
936 м	10,23
826 м	5,09
Відстійник	4,42
Ставки	4,56

Примітка:

У таблиці для підтвердження якості результатів наведено референтні значення активності тритію у пробах T3 та T5 — зразки, які використовувались у шостій програмі порівнянь вимірювання тритію, що здійснювалися під егідою МАГАТЕ [8]. Питома активність проби T5 становила на 01.08.2005 р. $2,33 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$, виміряно — $2,42 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$, а відхилення становить 3,9% [8]. Це підтверджує високу надійність наведених у таблиці результатів вимірювань.

Таблиця 3

Питома активність урану у пробах дослідженої води

Проба	Уран, Бк·л ⁻¹	^{238}U	^{234}U
826 м	0,026	1,0	1,95
936 м	0,042	1,0	2,0

Таблиця 4

Питома активність радіонуклідів у пробах дослідженої води та донних відкладів

Місце відбору	Активність, Бк·кг ⁻¹		
	^{90}Sr	^{239}Pu	^{241}Am
Вода			
Відстійник	0,045	0,0006	0,0015
Ставки	0,070	0,0002	0,0009
836 м	< 0,017	0,0001	0,0004
926 м	< 0,017	< 0,0001	0,0001
Донні відклади			
пп	2,71	0,019	
826 -пв -1	2,81	0,009	
Відстійник	8,71	0,015	
936 -10	2,95	0,026	
936 -пг -11	2,62	0,026	
936-12	2,11	0,007	

Дані за стронцієм-90 значно нижчі від рівня, характерного для забруднення поверхні у результаті глобальних випадів (5,0-15,0 Бк·кг⁻¹). Всі вони знаходяться на межі чутливості методу і перевищують фон лише в 1,5 рази.

Загальний вміст штучних радіонуклідів надзвичайно низький. Активність проб становлять виключно природні радіонукліди.

Висновки

У результаті проведених радіонуклідних досліджень встановлено:

1. Дослідження вмісту цезію-137 у воді та мулі за межею відбору показали, що цезій виявлено у воді поверхневій (відстійник та ставки), що узгоджується з відповідними результатами, отриманими для проб мулу, та вказує на те, що джерелом цезію-137 у цьому випадку є забруднення поверхні землі. У воді з шахти з горизонтів 826 м та 936 м цезію не виявлено з межею детектування <0,01-0,03 Бк·л⁻¹, а достовірно виявлені сліди цезію-137 у мулі на горизонті 936 м на рівні 0,07-0,37 Бк·кг⁻¹ можна трактувати двояко: як накопичені з води та такі, що могли бути занесені з поверхні, а тому вимагають перевірки на більш показовій кількості зразків.

2. Результати дослідження природних радіонуклідів у пробах мулу вказують на відмінності характерних порід. У воді вимірювані природні радіонукліди зафіксовано у дуже низьких рівнях, тобто визначено лише калій, а радій та торій оцінено за присутністю їхніх дочірніх радіонуклідів. Збільшення калію від відстійника до ставка вказує на його накопичення у воді за рахунок поверхневого змиву.

3. Вміст тритію у пробах во-

ди, відібраної з горизонтів 826 м та 936 м, контрастно відрізняється, причому з горизонту 936 м відповідає більше значення — 10 Бк·л⁻¹, а величина тритію у воді на горизонті 826 м дуже близька до величини у воді на поверхні.

4. Дослідження стронцію-90 у мулі показали достовірно підвищений рівень тільки для проби відстійника, а рівні, визначені для інших проб, розташовані на межі чутливості методу, що значно нижче рівнів забруднень через глобальні випробування. Рівні забруднення води є достовірними тільки у пробах поверхневої води, а в інших пробах перебувають за межею чутливості методу <0,017 Бк·л⁻¹.

5. Визначення питомої активності плутонію-239 та америцію-241 показали інформативність тільки у поверхневій воді. Щодо шахтної води, то отримані значення не нульові, що, правда, саму отриману величину можна трактувати з великою імовірністю слідами плутонію-239 у мітці — 1.2% за активністю.

6. Визначена активність урану у пробах води горизонтів 826 м та 936 м відрізняється для проб у півтора рази. Співвідношення активності ізотопів урану-234 до урану-238 є близьким для обох проб (близько 2.0 на користь урану-234) і характерне для води глибоких горизонтів з помірно тріщинуватістю порід.

7. Як уже показано, інформативними є тільки дослідження тритію для води. Щодо досліджень цезію-137 та стронцію-90 інформативним може виявитися використання більшого об'єму води — 100 л на пробу.

8. З огляду на отримані результати вважаємо за доцільне провести оцінку можливості та організації доступу для обстеження та відбору зразків на дільниці, закритої на час обстеження шахти.

ЛІТЕРАТУРА

1. Tamers M.A., Bibron B. Benzene Method Measurement Tritium in Rain Without Isotope Enrichment. — Nucleonics, June, 90-94, (1963).

2. James D., Spaulding, John E. Noakes, Russell A. Mellon and David A. McCuzdy. Routing Analysis of Ambient Tritium Levels in Environmental Water Samples, 1980.

3. Michael P. Neary. Tritium Enrichment — To Enrich or Not to Enrich? Radioactivity & Radiochemistry. — 1997. — V. 8, № 4. — P. 23-35.

4. Сборник методик по определению радиоактивности окружающей среды / Под ред. Г.А. Середы, З.С. Шулепо. — М.: Гидрометеоздат, 1966. — 52 с.

5. Методические рекомендации по определению радиоактивного загрязнения водных объектов / Под ред. С.М. Вакуловского. — М.: Гидрометеоздат СССР, 1986. — 80 с.

6. Инструкция и методические указания по оценке радиационной обстановки на загрязненной территории. — М.: Госкомгидромет, 1989 — 118 с.

7. Методические рекомендации по санитарному контролю за содержанием радиоактивных веществ в объектах внешней среды / Под общ. ред. А.Н. Марья и А.С. Зыковой. — М., 1980.

8. SIXTH IAEA INTERCOMPARISON OF LOW-LEVEL TRITIUM MEASUREMENTS IN WATER (TRIC2000). REPORT. Prepared by M. Groning, C.B. Taylor, G. Winckler, R. Auer, H. Tatzber. Isotope Hydrology Laboratory Agency's Laboratories Seibersdorf and Vienna. International Atomic Energy Agency. Vienna, October 2001. 59 p. URL: www.iaea.org/programmes/ri-al/pci/isotopehydrology/docs/intercomparison/TRIC2000Report.pdf

9. Измерение удельной активности трития методом жидкостно-сцинтилляционного счета в пробах воды переведенных в бензол / Бузынский М.Г. // Методы жидкостно-сцинтилляционного счета в радиоэкологии. Сб. / Науч. центр радиац. медицины АМН Украины. — К., 1999 — Вып. 3. — С. 34-45: ил. — Рус.— Деп. в ГНТБ Украины. 13.12.1999, № 339-Ук99.

Автори висловлюють подяку Федоренко О.В. за проведення підготовки проб води для визначення цезію-137, стронцію-90 та урану, Сахно В.І. — за підготовку проб для проведення визначення гамма-випромінювачів та тритію, Подрезову О.А. — за допомогу у відборі проб.