



УДК 502.55

## Применение гамма-спектрометрии для выявления техногенного загрязнения почвы ураном

**ЕКИДИН**

**Алексей Акимович**

*Институт промышленной экологии УрО РАН,  
ekidin@ecko.uran.ru*

**ВАСЯНОВИЧ**

**Максим Евгеньевич**

*Институт промышленной экологии УрО РАН,  
vasyanovich\_maks@mail.ru*

**НАЛИВАЙКО**

**Андрей Витальевич**

*Агентство экологической безопасности "Альфа-Х91",  
nalivaiko1@yandex.ru*

### Ключевые слова:

Радионуклид  
изотопы урана  
спектрометрия  
изотопное отношение

### Аннотация:

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

© 2013 Петрозаводский государственный университет

Получена: 29 июля 2013 года

Опубликована: 27 сентября 2013 года

### 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  $^{238}\text{U}$  к  $^{235}\text{U}$ , 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  $^{235}\text{U}$  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 равновесия между  $^{238}\text{U}$  и  $^{226}\text{Ra}$  в цепочке  $^{238}\text{U}$  (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  $^{238}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{40}\text{K}$ . 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  $^{238}\text{U}$  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 эманаии радона и снижения потерь активности  $^{214}\text{Bi}$  и  $^{214}\text{Pb}$  в каждую пробу добавляли активированный уголь (Жуковский и др., 2011). В 23 образцах почвы проводилось определение содержания радионуклидов:  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{214}\text{Pb}$ ,  $^{214}\text{Bi}$ ,  $^{212}\text{Pb}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{40}\text{K}$  и  $^{137}\text{Cs}$ .

## Методы

Измерения удельной активности проводились на гамма-спектрометрической установке ПКГ-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  $^{235}\text{U}$  и  $^{226}\text{Ra}$  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  $^{226}\text{Ra}$ . В первом случае, кроме активности  $^{235}\text{U}$  и  $^{226}\text{Ra}$ , рассчитывается активность  $^{230}\text{Th}$ ,  $^{223}\text{Ra}$ ,  $^{228}\text{Ac}$  (De Corte et. al, 2005). В данной работе активность  $^{226}\text{Ra}$  определена по дочерним продуктам распада радия –  $^{214}\text{Bi}$  и  $^{214}\text{Pb}$ , которые с ним находятся в равновесии. Для расчета активности  $^{235}\text{U}$  из суммарной активности в пике 186.6 кэВ вычитали активность  $^{214}\text{Bi}$  и  $^{214}\text{Pb}$ .

## Результаты

### Анализ данных гамма-спектрометрических измерений проб почвы

Из 23 образцов почвы удельная активность  $^{235}\text{U}$  определена только в трех пробах (U18, U20, U23). Полученные отношения активности  $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$  в этих пробах (1.7; 3.1; 4.1) указывают на аномально высокое содержание  $^{235}\text{U}$ , 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)  $^{238}\text{U}$  к удельной активности  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{40}\text{K}$ . Результаты радионуклидных отношений представлены ниже:

$^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$ :	0.14-1.81
$^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$ :	1.6-6.1
$^{238}\text{U}/^{40}\text{K}$ :	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  $^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$ . 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  $^{238}\text{U}$  (y) и активностью  $^{226}\text{Ra}$  (x) описывается простым линейным уравнением (1):

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

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

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

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

$$y = 0.0908x + 5.2613 \quad (3).$$

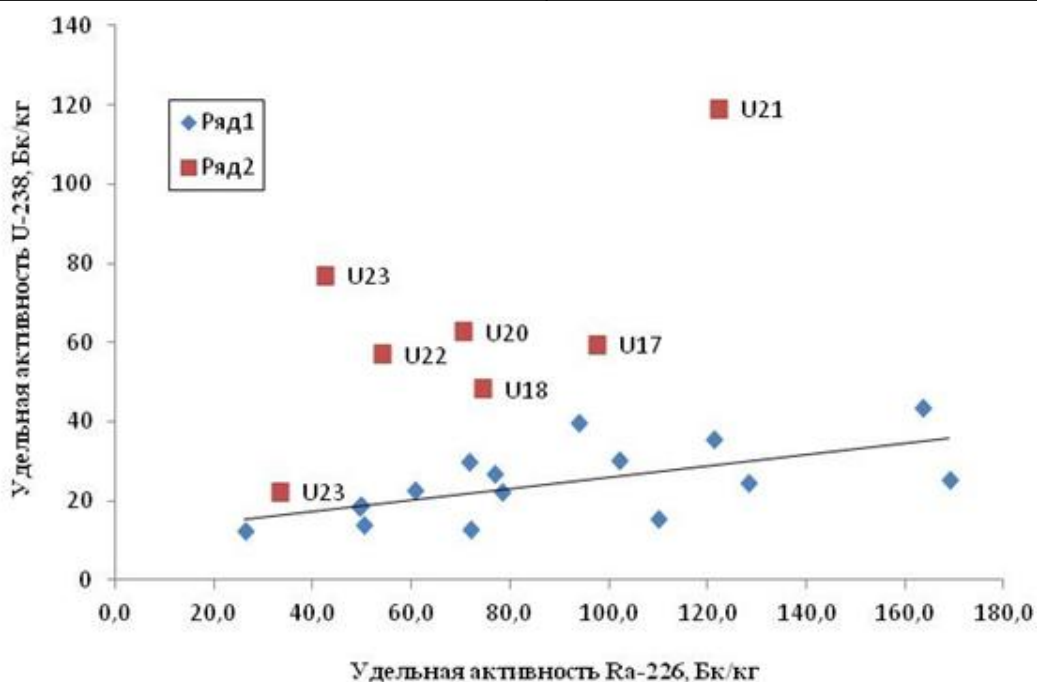


Рис. 1. Корреляционное соотношение между УА  $^{238}\text{U}$  и УА  $^{226}\text{Ra}$ .  
Ряд 1 – значения УА в пробах почвы без антропогенного фактора.  
Ряд 2 – значения УА в пробах почвы с техногенным загрязнением

Fig. 1. The correlation ratio between  $^{238}\text{U}$  concentration Bq/kg and  $^{226}\text{Ra}$  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  $^{238}\text{U}$  в образцах почвы, отнесенных к категории загрязненных. Для этого, по измеренным значениям  $\text{УА } ^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{40}\text{K}$  загрязненных образцов, рассчитывались значения  $\text{УА } ^{238}\text{U}$ , обусловленные природным содержанием. Разница между рассчитанным и измеренным значением  $\text{УА } ^{238}\text{U}$  соответствует дополнительному техногенному вкладу (табл. 1).

Таблица 1. Оценка дополнительного количество  $\text{УА } ^{238}\text{U}$  в образцах почвы

Код пробы	$\text{УА}^* ^{238}\text{U}$ , Бк/кг	Техногенный вклад в $\text{УА } ^{238}\text{U}$ образцов почвы, %			
		по $\text{УА } ^{226}\text{Ra}$ , формула 1	по $\text{УА } ^{232}\text{Th}$ , формула 2	по $\text{УА } ^{40}\text{K}$ , 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  $\text{УА } ^{238}\text{U}$  в загрязненных образцах почвы.

В установленных загрязненных образцах почвы дополнительное содержание  $^{238}\text{U}$  находится в диапазоне от 27 до 78 % от измеренного значения. Оценки дополнительного содержания  $^{238}\text{U}$ , 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  $^{137}\text{Cs}$  в исследуемых образцах почвы. Поверхностный слой почвы подвержен загрязнению  $^{137}\text{Cs}$  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 почвы. Чем длительнее период ненарушенного состояния почвы, тем большее количество депонированного цезия можно ожидать. Отсутствие в исследуемых образцах почвы  $^{134}\text{Cs}$  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  $^{137}\text{Cs}$  (Селезнев, 2009; Seleznev et. al., 2010).

Для исследованных образцов  $\text{УА } ^{137}\text{Cs}$  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.

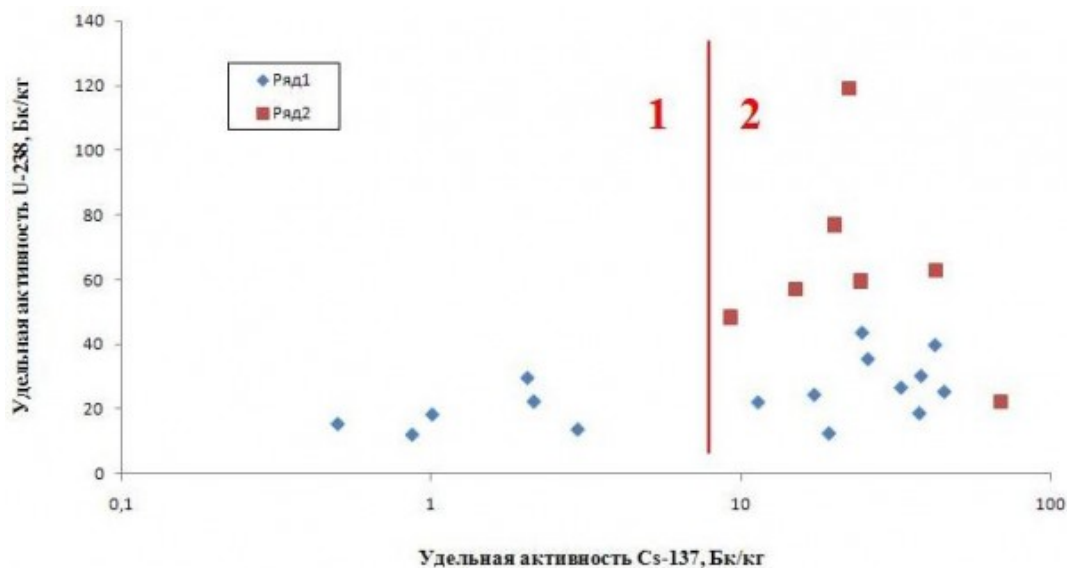


Рис. 2. Радионуклидные отношения между УА  $^{238}\text{U}$  и УА  $^{137}\text{Cs}$  в почве.

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  $^{238}\text{U}$  and  $^{137}\text{Cs}$  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  $^{238}\text{U}$  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  $^{238}\text{U}$ . По найденным корреляционным зависимостям определен вклад техногенной составляющей  $^{238}\text{U}$  в УА почвы. В загрязненных образцах почвы дополнительное содержание  $^{238}\text{U}$  оценено в диапазоне от 27 до 78 % от измеренного значения.

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

Наличие в исследуемых образцах почвы техногенного  $^{137}\text{Cs}$  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. [Methodical instructions 2.6.1.14-2001. Radiation monitoring. General requirements]

Титаева Н. А. Ядерная геохимия. [Nuclear geochemistry] 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 [The frequency distribution of radium-226, thorium-228 and potassium-40 in various soils]

concentrations in different soils] // 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. [Heavy natural radionuclides in the biosphere: Migration and biological effects on populations and biogeocoenoses] // 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 [Effective specific activity of natural radionuclides in the environment with impaired radioactive equilibrium in uranium and thorium ranks] // 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 [Evaluation of radiation effects on the environment of the oil refining enterprise] // Вопросы радиационной безопасности. 2005. № 1. С. 35–44.

Селезнев А. А. Поверхностная локальная миграция  $^{137}\text{Cs}$  в условиях экосистемы города [Surface local migration of  $^{137}\text{Cs}$  in urban ecosystem] // Вопросы радиационной безопасности. 2009. № 3. С. 70–76.

Seleznev A. A., Yarmoshenko I. V., Ekidin A. A. Accumulation of  $^{137}\text{Cs}$  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» [Methods of sampling and preparation of samples for chemical, bacteriological, helminthological analysis] // М.: Изд-во стандартов. 1985. С. 7.

Жуковский М. В., Новиков Д. В. Модифицированный метод измерения удельной активности Ra-226 в образцах грунта [A modified method for measuring of  $^{226}\text{Ra}$  specific activity in soil samples] // 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  $^{226}\text{Ra}$  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**

*Institute of Industrial Ecology UB RAS,  
ekidin@ecko.uran.ru*

**VASYANOVICH**  
**Maksim**

*Institute of Industrial Ecology UB RAS,  
vasyanovich\_maks@mail.ru*

**NALIVAJKO**  
**Andrej**

*Agency of ecological safety "Alpha-X91",  
nalivaiko1@yandex.ru*

### **Keywords:**

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

### **Summary:**

In this article are considered detection methods of anthropogenic uranium component in the soil on the basis of the relational analysis of  $^{238}\text{U}$  specific activity to the specific activity of other natural radionuclides. Significant shift in the balance between  $^{226}\text{Ra}$  and  $^{238}\text{U}$  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  $^{235}\text{U}$  is reliably determined anthropogenic uranium supply is confirmed by a significant difference in  $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$  ratio from 21.7. There are several soil samples with low-activity of  $^{235}\text{U}$ , in which  $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$ ,  $^{238}\text{U}/^{40}\text{K}$  ratio's analysis allows to confirm the estimated additional uranium content. Formation length of anthropogenic soil pollution can be determined by  $^{137}\text{Cs}$  specific activity.