

УДК 631.4:504.53:546.11.02.3

ОПТИМИЗАЦИЯ МЕТОДОВ ИССЛЕДОВАНИЯ ТРИТИЕВОГО ЗАГРЯЗНЕНИЯ ПОЧВ С УЧЕТОМ ОСОБЕННОСТЕЙ СИП

Сержанова З.Б., Айдарханова А.К., Ляхова О.Н., Койшыбаев Р.А.

Филиал «Институт радиационной безопасности и экологии» РГП НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан

В статье представлены результаты оценки качества метода определения трития (^3H) в почве – метода дистилляции, используемого для определения его форм нахождения в свободной воде. Для оценки влияния матричной структуры на процесс извлечения ^3H методом дистилляции в качестве образцов использовались почва, кремнезём и соль. В ходе эксперимента для оценки полноты извлечения и влияния содержания ^3H использовался изотопный индикатор различной активности – от 100 до 100 000 Бк/л. Все эксперименты проведены в нескольких повторностях. На каждой из стадий эксперимента для оценки его «чистоты» проведён холостой опыт. Установлено, что эффективность метода дистилляции составляет в среднем 80–98 %. Метод дистилляции подтвердил свою эффективность, за исключением случаев с малоувлажненными почвами (с влажностью менее 10 %). При использовании метода дистилляции для почв с низкой влажностью отмечаются стабильные незначительные потери, корректируемые поправочным коэффициентом.

ВВЕДЕНИЕ

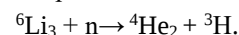
Проблему радионуклидного загрязнения почв можно считать одной из ключевых в радиоэкологии, так как почва – это первичное звено в биологической цепочке.

Тритий (^3H), как один из самых распространенных радионуклидов на территории Семипалатинского испытательного полигона (СИП), содержится практически во всех биологических объектах, в том числе и почве. Содержание ^3H в почве достигает существенных значений, что увеличивает вероятность его миграции по биологической цепочке. Для оценки биологической доступности и процессов миграции ^3H в окружающей среде возникает необходимость в изучении форм его нахождения в почве.

Тритий является изотопом водорода. Водород в составе почв содержится как в структуре кристаллической решетки, так и в составе свободной воды, где он удерживается различными силами связи, которые обуславливают его формы нахождения. Водород мо-

жет находиться в поверхностно-адсорбированной и в межслоевой воде, а также химически (гидроксильный) и органически связанный водород [1–4]. Следовательно, эти же формы характерны для ^3H .

В местах проведения ядерных испытаний на СИП также возможно присутствие менее известного ^3H в кристаллически связанной (прочносвязанной) форме. Как известно, ^3H может нарабатываться на легких элементах в результате реакции активации, имевшей место в момент проведения испытаний, например, в результате ядерных реакций типа:



Данное предположение подтверждается ранее проведенными исследованиями содержания кристаллически связанного ^3H в почвах территории СИП [5, 6].

Таким образом, ^3H в почве может находиться в формах, представленных на схеме (рисунок 1).



Рисунок 1. Формы нахождения ^3H в почве

Проводимые в настоящее время исследования ^3H в почве СИП заключаются в определении содержания ^3H в свободной воде почв и определении содержания кристаллически связанного (прочносвязанного) ^3H . Основными методами, применяемыми для этого, являются метод дистилляции для определения содержания ^3H в свободной воде почв и метод автоклавного разложения для определения кристаллически связанного (прочносвязанного) ^3H .

Для подтверждения эффективности используемых методов возникла необходимость в проведении оценки их достоверности и оптимизации с учетом особенностей СИП.

МЕТОДОЛОГИЯ ПРОВЕДЕНИЯ ЭКСПЕРИМЕНТА И ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

На начальном этапе проводились экспериментальные работы по оценке эффективности метода дистилляции. Сущность экспериментальных работ заключалась в оценке полноты выхода изотопного индикатора ^3H . В ходе эксперимента в фоновый образец вносился изотопный индикатор ^3H с последующим его извлечением методом дистилляции.

Для проведения эксперимента в качестве фоновых образцов использовались образцы с различной матричной структурой – «фоновая» почва, SiO_2 (кремнезём) и NaCl (соль). Данные образцы предварительно высушивались при температуре 105°C для удаления свободной воды, а далее просеивались через сито 1×1 мм. С высушенных и просеянных образцов отбирались навески массой по $2 \pm 0,001$ г для определения начального содержания ^3H методом автоклавного разложения.

Удельная активность изотопного индикатора ^3H составляла порядка 100, 1 000, 10 000 и 100 000 Бк/л. На каждой из стадий эксперимента проводился холостой опыт. Все эксперименты проводились в нескольких повторностях.

Определение полноты извлечения ^3H методом дистилляции проводилось согласно схеме, представленной на рисунке 2. Для этого в фоновые образцы, в качестве которых использовались почва, кремнезём и соль, вносился изотопный индикатор ^3H соответствующей активности, и далее, после полного напытия (в течение 12 ч), оценивался выход ^3H . Масса твердого образца составляла $200 \pm 0,01$ г, объем изотопного индикатора – 30,0 мл. Процесс дистилляции проводился при температуре 105°C .

Подготовка образцов для измерения удельной активности ^3H проводилась в соответствии с аттестованной методикой [7]. Для этого с полученных дистиллятов отбиралась аликвота объемом 3 мл и поме-

щалась в стандартную геометрию (пластиковая виала объемом 20 мл) с добавлением сцинтилляционного коктейля в пропорции 3:12 (соотношение образец:сцинтиллятор). Для определения объемной активности ^3H в полученных пробах использовался жидкосцинтилляционный спектрометр TriCarb 2900 TR.

Расчет удельной активности ^3H производился на массу (кг) исходной пробы с учетом образовавшегося объема дистиллята

Из результатов эксперимента по определению полноты извлечения ^3H методом дистилляции, представленных в таблице 1, следует, что доля извлеченного ^3H составляет в среднем 80–98 % вне зависимости от введенной активности. При этом влияния матричной структуры на процесс извлечения не отмечается. В связи с этим, дальнейшие эксперименты решено было проводить только с почвой.

Существующие в природе почвы имеют различную влажность. Для оценки влияния данного фактора на качество процесса дистилляции проводился эксперимент с почвами разной влажности. Данный эксперимент заключался во внесении разных объемов изотопного индикатора в сухую почву. В ходе эксперимента в 6 одинаковых навесок почвы вносился изотопный индикатор соответствующего объема с удельной активностью $^3\text{H}=100\,000$ Бк/л. После полного увлажнения почвы (в течение 12 ч) методом дистилляции оценивался выход ^3H . Масса твердого образца составляла $200 \pm 0,01$ г, объемы изотопного индикатора варьировались от 5 до 50 мл. Процесс дистилляции проводился при температуре 105°C . Для определения остаточного содержания ^3H после дистилляции методом автоклавного разложения [8] определялось содержание ^3H в сухой почве. Схема проведения эксперимента представлена на схеме (рисунок 3).

Результаты проведенного эксперимента (таблица 2) показали, что увлажненность почв влияет на процесс дистилляции. В случае хорошо увлажненной почвы – процесс эффективен, а в случае малой увлажненности (менее 10%) – имеются незначительные стабильные отклонения, корректируемые поправочным коэффициентом. Возможно, данный факт связан с испарением некоторого количества влаги при нагреве в процессе дистилляции. В случае хорошо увлажненной почвы данным значением можно пренебречь, так как в среднем потери составляют 5–7 %. Однако, для малоувлажненных почв это критично, так как вся влага может испариться, не дойдя до стадии конденсирования.

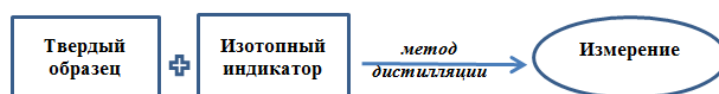


Рисунок 2. Схема эксперимента метода дистилляции с использованием различных матриц

Таблица 2. Определение полноты извлечения ^3H методом дистилляции

Образец	Повтор-ность	Удельная активность, Бк/кг		Абсолютная активность, Бк		% извлечения
		введено	найдено	введено	найдено	
Почва	№1	95 ± 13	93 ± 13	3 ± 1	3 ± 1	98
		970 ± 100	700 ± 70	30 ± 3	20 ± 2	71
		9100 ± 900	7000 ± 800	270 ± 27	210 ± 24	76
		97000 ± 10000	84000 ± 8500	2900 ± 300	2500 ± 250	84
	№2	95 ± 13	94 ± 13	3 ± 1	3 ± 1	99
		970 ± 100	800 ± 80	30 ± 3	25 ± 2	80
		9100 ± 900	8000 ± 800	270 ± 27	230 ± 23	83
		97000 ± 10000	78000 ± 8000	2900 ± 300	2400 ± 240	80
	№3	95 ± 13	94 ± 13	3 ± 1	3 ± 1	99
		970 ± 100	730 ± 70	30 ± 3	20 ± 2	73
		9100 ± 900	7800 ± 800	270 ± 27	220 ± 23	82
		97000 ± 10000	84000 ± 8500	2900 ± 300	2500 ± 250	84
SiO_2	№1	95 ± 13	94 ± 16	3 ± 1	5 ± 1	99
		970 ± 100	900 ± 90	30 ± 3	27 ± 3	93
		9100 ± 900	8800 ± 900	270 ± 27	270 ± 27	97
		97000 ± 1000	94200 ± 9500	2900 ± 300	2500 ± 260	87
	№2	95 ± 13	93 ± 12	3 ± 1	4 ± 1	98
		970 ± 100	890 ± 90	30 ± 3	26 ± 3	88
		9100 ± 900	8700 ± 900	270 ± 27	250 ± 25	92
		97000 ± 1000	94000 ± 9500	2900 ± 300	270 ± 280	94
	№3	95 ± 13	80 ± 13	3 ± 1	2 ± 1	81
		970 ± 100	870 ± 90	30 ± 3	25 ± 3	87
		9100 ± 900	8600 ± 850	270 ± 27	250 ± 25	91
		97000 ± 10000	92000 ± 9000	2900 ± 300	2500 ± 240	84
NaCl	№1	95 ± 13	94 ± 13	3 ± 1	3 ± 1	99
		970 ± 100	970 ± 95	30 ± 3	30 ± 3	94
		9100 ± 900	8600 ± 700	290 ± 28	230 ± 20	80
		97000 ± 10000	94200 ± 9000	3000 ± 304	2400 ± 230	83

Таблица 2. Определение полноты извлечения ^3H методом дистилляции путем внесения разных объемов модельного раствора

№	Повтор-ность	Влажность почв, %	Удельная активность ^3H , Бк/кг (в расчете на 1 кг почвы)		
			метод дистилляции (измерение 1)	метод автоклавного разложения (измерение 2)	холостая проба
1	№1	2,5	65 000 ± 6 500	170 ± 20	< 95
2		5	76 000 ± 7 500	200 ± 20	
3		8	77 000 ± 7 500	180 ± 20	
4		10	94 000 ± 12 000	170 ± 17	
5		15	98 000 ± 10 000	200 ± 20	
6		20	98 000 ± 10 000	210 ± 20	
7		25	101 000 ± 10 000	170 ± 17	
8	№2	2,5	72 000 ± 7 000	210 ± 20	< 95
9		5	81 000 ± 8 000	150 ± 15	
10		8	101 000 ± 10 000	170 ± 17	
11		10	104 000 ± 10 000	190 ± 20	
12		15	98 000 ± 10 000	150 ± 15	
13		20	98 000 ± 10 000	140 ± 15	
14		25	97 000 ± 10 000	170 ± 17	
15	№3	2,5	67 000 ± 6 500	160 ± 16	< 95
16		5	80 000 ± 8 000	240 ± 24	
17		8	82 000 ± 8 000	170 ± 20	
18		10	106 000 ± 10 000	160 ± 16	
19		15	102 000 ± 10 000	200 ± 20	
20		20	99 000 ± 10 000	280 ± 28	
21		25	107 000 ± 10 000	170 ± 17	

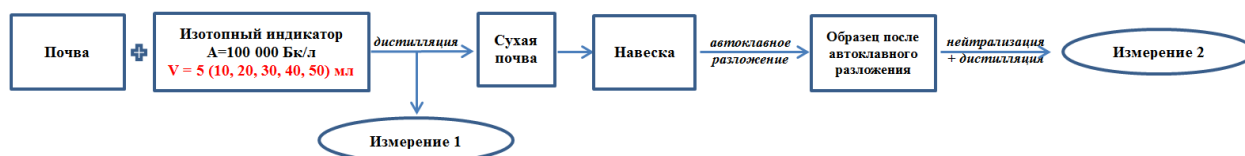


Рисунок 3. Схема эксперимента по оценке влияния увлажненности почв на полноту извлечения ^3H

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В результате проведенных экспериментальных работ оценена эффективность метода дистилляции, используемого для определения содержания ^3H в свободной воде почв, которая составила 80–98 %. Экспериментальным путем установлено, что метод дистилляции эффективен, за исключением случаев с малоувлажненными почвами (с влажностью менее

10 %). При использовании метода дистилляции для почв с низкой влажностью отмечаются стабильные незначительные потери, корректируемые поправочным коэффициентом – $k = 1,3$.

Также в результате проведенных работ выявлено, что матричная структура образца и величина концентрации ^3H в ней на процесс дистилляции не влияет.

ЛИТЕРАТУРА

1. Пушкарев, А. В. Кинетика изотопно-водородного обмена в бентонито-песчаной смеси / А.В. Пушкарев, В.В. Долин, В.В. Приймаченко, В.Н. Бобков, Р.А. Пушкарева // Институт геохимии окружающей среды: сб.тр. – Киев, 2007. – Вып.15. – С. 27–36.
2. Lopez-Galindo, A. Tritium redistribution between water and clay minerals / A. Lopez-Galindo, Nach-Alip, Fenoll, A.V. Pushkarev [et al.] // Applied Clay Science. – 2008. – № 39. – С. 151–159.
3. Шишелова, Т. И. Практикум по спектроскопии. Вода в минералах / Т.И. Шишелова, Т.В. Созинова, А.Н. Коновалова: учеб. пособие. – М.: Академия Естествознания, 2010. – ISBN 978-5-91327-093-1. – 88 с.
4. Аллен Д. Ядерно-магнитный картаж. Газовые гидраты. Контроль и управление разработкой пластов / Д. Аллен, С. Крери, Б. Фридман // Нефтегазовое обозрение. – Хьюстон: Изд. Schlumberger, 2001. – Вып. 2. – С. 6–9.
5. Ляхова, О.Н. Тритий как индикатор мест проведения ядерных испытаний / О.Н. Ляхова, С.Н. Лукашенко, Н.В. Ларионова, С.Б. Субботин // Вестник НЯЦ РК, 2011. – Вып. № 3. – С. 125–129.
6. Тимонова, Л. В. Исследование содержания трития в почве в местах проведения ядерных испытаний на территории Семипалатинского испытательного полигона / Л.В. Тимонова, О. Н. Ляхова, С. Н. Лукашенко, А.О. Айдарханов // Радиационная биология. Радиоэкология. – 2015. – Т. 55. – № 6. – С. 667–672.
7. Качество воды – определение активности трития, соответствующей данной концентрации – жидкостной метод сцинтилляционного счета. Международный стандарт ISO 9698:2010 (Е). – Введ.1989-12-01.– Москва: ВЦП НТЛИД, 1990. – 17 с.
8. РИ 03-02-03 (А). Подготовка проб для элементного анализа методом автоклавного разложения. – Курчатов: ИРБЭ НЯЦ РК, 2011. – С. 12.

ССП ЕРЕКШЕЛІКТЕРІН ЕСЕПКЕ АЛА ОТЫРЫП ТОПЫРАҚТЫҢ ТРИТИЙМЕН ЛАСТАНУЫН ЗЕРТТЕУ ӘДІСТЕРІН ОҢТАЙЛАНДЫРУ

З.Б. Сержанова, А.К. Айдарханова, О.Н. Ляхова, Р.А. Қойшыбаев

ҚР ҰАО РМК «Радиациялық қауіпсіздік және экология институты» филиалы, Курчатов, Қазақстан

Бұл мақалада, топырақтағы тритийді (^3H) анықтау әдістері ретіндегі бағалау әдістері – оны бос судан анықтау формалары үшін қолданылатын дистилляция әдісінің нәтижелері келтірілген. Дистилляция әдісімен ^3H алу процесіне матрицалық құрылымның әсер етуін бағалау үшін үлгі ретінде топырақ, кремнезём және тұз пайдаланылды. Тәжірибе барысында ^3H құрамының әсерін және оны алудың толықтығын бағалау үшін түрлі белсенділіктегі – 100 бастап 100 000 Бк/л дейінгі аралықтағы изотопты индикатор пайдаланылды. Барлық тәжірибелер түрлі беткі қабатта жүргізілді. Тәжірибенің әрбір сатысында оның «тазалығын» бағалау үшін бос тәжірибелер жасалып отырды. Дистилляция әдісінің тиімділігі орташа алғанда 80–98 % құрайтыны анықталды. Дистилляция әдісі аз ылғалданған (10 % кем емес ылғалдылықта) топырақпен қатысты жағдайды есепке алмағанда өзінің тиімділігін нақтылады. Ылғалдылығы төмен топырақ үшін дистилляция әдісін қолдану барысында түзетуші коэффициентпен дәлденетін тұрақты болмашы жоғалтулар байқалды.

**OPTIMIZING METHODS FOR RESEARCHING INTO SOIL CONTAMINATION
WITH TRITIUM GIVEN STS FEATURES**

Z.B. Serzhanova, A.K. Aidarkhanova, O.N. Lyakhova, R.A. Koishybayev

Branch "Institute of Radiation Safety and Ecology" RSE NNC RK, Kurchatov, Kazakhstan

The paper presents quality evaluation results of tritium determination technique (^3H) for soil – distillation technique used for determining its speciation in free water. To evaluate the impact of matrix structure on ^3H extraction process by distillation, soil, earth silicon and salt were used as samples. In the course of the experiment a tracer of various activity – from 100 to 100,000 Bq/l was used to assess completeness of extraction and impact of ^3H content. All of the experiments were conducted in several replications. At each experimental stage a blank experiment was conducted to assess its integrity. It is found that efficiency of distillation technique is on average 80–98 %. Distillation technique proved its efficiency except where soil is slightly wetted (with moisture of less than 10 %). When using the distillation technique stable minor losses that are corrected with a correction factor can be observed for soils of low moisture.