

УДК 631.41:504.53:614.876: 546.11.02.3

МЕТОДИЧЕСКИЕ ПОДХОДЫ ДЛЯ ИССЛЕДОВАНИЯ СВЯЗАННЫХ ФОРМ НАХОЖДЕНИЯ ТРИТИЯ В ПОЧВАХ РАДИОАКТИВНО-ЗАГРЯЗНЕННЫХ УЧАСТКОВ СЕМИПАЛАТИНСКОГО ИСПЫТАТЕЛЬНОГО ПОЛИГОНА

Сержанова З.Б., Айдарханова А.К., Ляхова О.Н., Тимонова Л.В., Раимканова А.М.

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

В статье представлены методические подходы для исследования форм нахождения ^3H в почве. Проведена оценка качества и эффективности метода автоклавного разложения, используемого для выделения связанных форм ^3H . Для оценки влияния матричной структуры на процесс извлечения ^3H в качестве образцов использовались почва и цеолит. 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» проведен холостой опыт. Показано, что эффективность данного метода составляет порядка 27–48%. Установлено, что значительные потери связаны с неполным вскрытием матрицы и особенностями проведения анализа. Выявлено, что матричная структура и содержание ^3H не влияют на эффективность извлечения связанных форм ^3H из почвы. Авторами предложен ряд подходов для повышения эффективности метода, такие как изменение соотношения реагентов и исключение стадии центрифугирования.

ВВЕДЕНИЕ

В результате проведения большого количества ядерных испытаний на территории Семипалатинского испытательного полигона (СИП) в окружающую среду поступило значительное количество радионуклидов, в том числе трития (^3H). Высокие концентрации ^3H зафиксированы во всех объектах природной среды – почве, воде, растениях, воздухе. Имеющиеся данные об уровнях концентрации ^3H не только местами проведения ядерных испытаний, а также на прилегающих к ним участках, говорят о том, что ^3H может мигрировать на большие расстояния вследствие его перераспределения между компонентами экосистем. Так как почва является первичным звеном в биологической цепочке, необходимо провести более детальное изучение характера загрязнения тритием почв в местах проведения ядерных испытаний на СИП.

Большое количество ядерных испытаний неодинаковой мощности и характера привели к образованию различных форм трития в почвах. Так как ^3H изотоп водорода, очевидно, что он будет содержаться в почве в тех же формах, что и водород. Известно, что водород в почве содержится в составе свободной воды и в структуре кристаллической решетки [1–4].

Свободная вода, которая присутствует в минеральных массах, не принимает прямого участия в строении кристаллической решетки минералов. Она представляет собой почвенный раствор, заполняющий поровое пространство, и характеризуется различной силой связи с почвой. В свободной воде ^3H , как и водород, может содержаться в двух формах – в поверхностно-адсорбированной и в межслоевой воде. Поверхностно-адсорбированная вода – это вода, сорбированная на поверхности почвенных частиц, обладающих определенной поверхностной энергией за счет сил притяжения, имеющих различную природу.

При соприкосновении почвенных частиц с молекулами воды последние притягиваются этими частицами, образуя вокруг них пленку. Удержание молекул такой воды происходит в данном случае силами сорбции. В большей своей части легко удаляется при нагревании до 100–110 °С [5]. В некоторых типах грунтов встречается межслоевая вода. Молекулы этой воды располагаются в несколько слоев между нейтральными слоями кристаллической решетки. Установлено, что молекулы воды не занимают строго определенного положения в кристаллической решетке, а располагаются в ней лишь в свободных полостях – межслоевых пространствах. При нагревании она выделяется в интервале температур 80–400 °С в зависимости от типа минералов [1, 2, 6]. Молекулы межслоевой воды характерны для некоторых минералов слоистой структуры, а точнее глинистых пород.

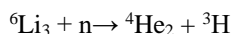
Также, ^3H может содержаться в структуре кристаллической решетки минерала, замещая водород в составе различных соединений. В структуре кристаллической решетки ^3H удерживается прочными силами связи и по этой причине его называют связанным ^3H . Связанный ^3H может быть представлен в виде гидроксильного, органически связанного и кристаллически связанного (прочносвязанного) ^3H [7].

Гидроксильный ^3H (химически связанная вода) входит в состав минералов либо в виде гидроксильных групп ($\text{Fe}(\text{OH})_3$, $\text{Al}(\text{OH})_3$, $\text{Ca}(\text{OH})_2$), либо в виде целых молекул (например, гипса ($\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$), мирабилита ($\text{Na}_2\text{SO}_4 \cdot 10\text{H}_2\text{O}$) и др.). Такие формы выделяются при нагревании грунта до температуры 400–600 °С, в зависимости от типа минерала и не принимают непосредственного участия в физических процессах, протекающих в почве и растениях [8].

Важнейшей составляющей частью почвы является органическое вещество – это остатки многочисленных микроорганизмов (бактерий, актиномицетов,

грибов, водорослей), представителей почвенной микро- и мезофауны (простейших, насекомых, червей и пр.) и, наконец, останки растений [5]. Водород является наиболее распространенным элементом, присутствующим в большинстве таких природных компонентов. В большинстве случаев водород химически связывается как углеводород, углевод или вода. Если ^3H присутствует в образцах, имеющих в своем составе водород, то атомы ^3H будут обмениваться с атомами водорода с образованием молекулы, содержащей тритий [9]. В случае органически связанного трития (ОСТ), атом ^3H связывается с углеродом, серой, кислородом и атомом азота посредством обмена или ферментативно катализируемой реакцией [10].

Кристаллически связанный ^3H может накапливаться на легких элементах в результате реакции активации. Например, в результате ядерных реакций типа:



В свою очередь, кристаллически связанный ^3H , по природе образования, подразделяется на активационный и конденсационный ^3H . Тритий в ненарушенных кристаллических структурах, в случае его образования в результате выше описанной реакции, является активационным. Конденсационным принято считать ^3H , который образуется при проведении термоядерных испытаний. Это когда часть ^3H , изначально присутствующего в заряде, в процессе проведения взрыва конденсируясь, внедрялась в кристаллическую решетку застывающего расплава, причем как в виде отдельных атомов, так и в виде газовых микропузырьков [11].

Таким образом, ^3H в почве может содержаться в следующих формах (см. рисунок 1).

Наиболее распространёнными и изученными являются формы ^3H , содержащиеся в свободной воде [2, 12, 13]. Для их определения общепринятым считается метод дистилляции, высокая эффективность которого для почв СИП была оценена в работе, представленной в статье [14].

Известно немало работ, направленных на изучение связанного ^3H [15, 16, 17]. Однако использованная в данных работах техника и методология эксперимента не совсем подходят для почв СИП, так как исследования проводились на почвах не подверженных ядерным испытаниям.

Содержание связанного ^3H в почвах территории СИП подтверждается ранее проведенными исследованиями [18]. Согласно этим исследованиям, в местах проведения наземных ядерных испытаний ^3H содержится в почве в значимых количествах, вероятно, его содержание в почве связано с видом проводимых испытаний, мощностью заряда и другими сопутствующими условиями. Это позволяет сделать вывод о необходимости дальнейших, более тщательных исследований поведения ^3H в местах проведения наземных и экскавационных взрывов.

Готовых методик по изучению форм нахождения ^3H и их распределения в грунтах в открытой печати нет. Поэтому возникла необходимость в разработке комплекса таких методик с учетом особенностей почв СИП.

Для определения содержания всех связанных форм ^3H , в том числе и кристаллически связанного, применяется метод автоклавного разложения.

Однако в ходе проведения экспериментальных исследований возникли предположения, что данный метод, не всегда эффективен в случае применения к почвам СИП в виду специфической особенности формирования их радионуклидного загрязнения. Известно, что ^3H в почве и грунтах СИП мог образоваться вследствие наработки на легких элементах в результате реакции активации, имевшей место в момент проведения ядерных взрывов. Таким образом, в отличие от почв других территорий, в почвах СИП может присутствовать, так называемый, активационный ^3H .

В связи с этим, возникла необходимость провести оценку метода автоклавного разложения и его применимости для исследования всех связанных форм нахождения ^3H в местах проведения ядерных испытаний.



Рисунок 1. Формы нахождения ^3H в почве

МЕТОДОЛОГИЯ ПРОВЕДЕНИЯ ИССЛЕДОВАНИЯ

В ходе разработки методических подходов для изучения связанных форм ^3H были поставлены несколько задач:

Задача 1. Оценка эффективности метода автоклавного разложения

Оценка проводилась методом «Введено-найдено». В ходе оценки эффективности процесса автоклавирования варьировались условия – менялась матричная структура и активность изотопного индикатора ^3H . В качестве матричной структуры использовались образцы с различным минералогическим составом: почва и цеолит, которые предварительно высушивали для удаления свободной воды ($T=105^\circ\text{C}$) и просеивали ($d=1\text{ мм}$). Для оценки влияния активности изотопного индикатора ^3H на эффективность процесса автоклавирования использовался изотопный индикатор с удельной активностью – 100, 1 000, 10 000 и 100 000 Бк/л.

Определение содержания ^3H во всех подготовленных образцах проводилось методом автоклавного разложения согласно [19]. Для этого навеска почвы обрабатывалась концентрированными кислотами – 2 мл HNO_3 и 4 мл HF , герметично упаковывалась в автоклав, далее устанавливалась в удерживающее устройство и помещалась в сушильный шкаф на 2,5 часа при температуре 160°C .

После полного охлаждения автоклавы вскрывались, полученные образцы центрифугировались либо отфильтровывались. Для дальнейшего анализа использовалась только жидкая фаза или фильтрат с последующей нейтрализацией и дистилляцией. Твердая фаза или осадок не использовались.

На каждой из стадий эксперимента проводился холостой опыт. Все эксперименты проводились в 3-х повторностях. Схема эксперимента представлена на рисунке 2. Полученные результаты представлены в таблице 1.



Рисунок 2. Схема эксперимента автоклавного разложения с использованием различных матриц



Рисунок 3. Схема определения валового содержания ^3H в почве

Задача 2. Определение полноты извлечения связанного ^3H из почвы методом двустадийного автоклавного разложения

Основываясь на результатах, полученных в ходе решения *Задачи 1*, было сделано предположение, что полнота извлечения ^3H из почвы недостаточна. Для определения полноты извлечения связанного ^3H целесообразно было бы использовать стандартные образцы связанного ^3H . Но поскольку в мире не существует таких стандартных образцов, то было принято решение использовать почву с радиоактивно-загрязненных участков (РЗУ) СИП. Одним из главных параметров, указывающих на возможный нейтронно-активационный характер образования ^3H на территории СИП, является наличие корреляции между содержанием в почве ^3H и ^{152}Eu . Ввиду этого, основываясь на ранее полученных результатах [18, 20], в качестве образцов для исследования выбраны почвы района «Атомного» озера и площадки «Опытное поле», которые характеризуются наличием кристаллически связанного ^3H , образовавшегося вследствие нейтронно-активационных процессов в момент проведения ядерных испытаний.

Для определения полноты извлечения ^3H подготавливались 2 одинаковые навески почвы, одна из которых передавалась для определения содержания ^3H методом окислительного сжигания на приборе *Sample Oxidizer*. Вторая навеска подготавливалась методом автоклавного разложения с последующей нейтрализацией и дистилляцией. Для определения остаточного содержания ^3H к сухому осадку после метода дистилляции приливалась дистиллированная вода с последующей дистилляцией, а повторно образовавшийся сухой остаток снова автоклавировали.

Схематично ход эксперимента представлен на рисунке 3. Результаты данного эксперимента представлены в таблице 2.

**МЕТОДИЧЕСКИЕ ПОДХОДЫ ДЛЯ ИССЛЕДОВАНИЯ СВЯЗАННЫХ ФОРМ НАХОЖДЕНИЯ ТРИТИЯ В ПОЧВАХ
РАДИОАКТИВНО-ЗАГРЯЗНЕННЫХ УЧАСТКОВ СЕМИПАЛАТИНСКОГО ИСПЫТАТЕЛЬНОГО ПОЛИГОНА**



Рисунок 4. Схема эксперимента по выявлению возможных потерь ^3H на различных стадиях при подготовке методом автоклавного разложения

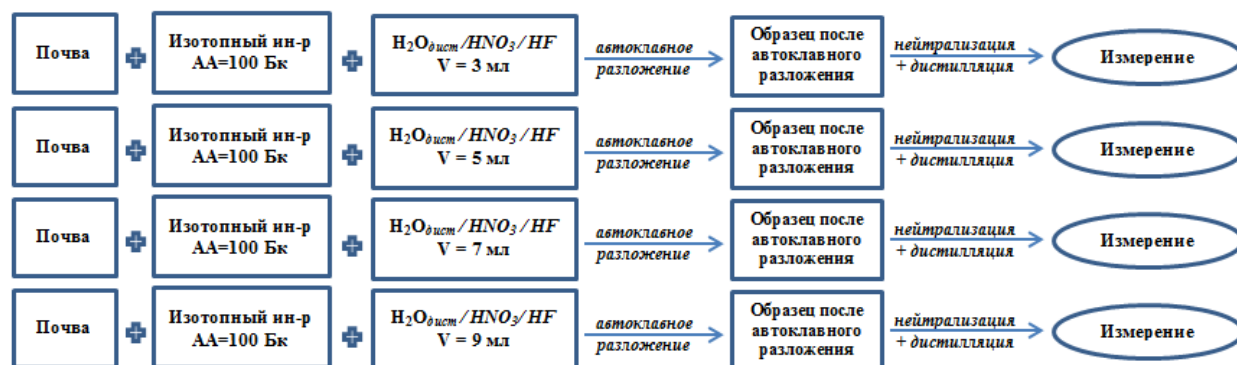


Рисунок 5. Схема эксперимента по изучению влияния различных реагентов и их объемов на процесс автоклавирования с использованием изотопного индикатора

Задача 3. Выявление причины потерь ^3H на различных стадиях при подготовке методом автоклавного разложения

Предполагалось, что основные причины потерь ^3H связаны с процессом подготовки проб. Это могли быть потери, связанные с негерметичностью установки, с процессом нейтрализации, низкой эффективностью используемых реагентов и другими факторами.

Для выявления возможных потерь ^3H при подготовке методом автоклавного разложения 2 одинаковые навески почвы РЗУ СИП параллельно готовились методом автоклавного разложения. Различалась лишь подготовка образцов после автоклавирования. Один из образцов нейтрализовался в автоклавах с последующей дистилляцией. А другой образец – с применением центрифугирования для определения содержания ^3H по отдельности в жидкой и в твердой фазе. Схема эксперимента представлена на рисунке 4. Полученные результаты представлены в таблице 3.

Для исключения потерь ^3H в процессе нейтрализации образцов после автоклавного разложения проведен эксперимент с использованием фоновой почвы с добавлением известной активности. Процесс схематично представлен на рисунке 5. Полученные результаты представлены в таблице 4.

Задача 4. Оптимизация метода автоклавного разложения путём подбора более эффективного реагента

С целью повышения эффективности метода автоклавного разложения проводились эксперименты с

использованием различных реагентов и их соотношений. В ходе эксперимента навеска «активной» почвы СИП обрабатывалась не смесью кислот, а каждым из реагентов по отдельности – HNO_3 , HF и H_2SO_4 . При этом использовались разные объемы реагентов – 3, 5, 7 и 9 мл. Аналогичный эксперимент был проведен с использованием в качестве реагента дистиллированной воды. Схематично процесс представлен на рисунке 6, а полученные результаты представлены в таблице 5.

Однако, согласно [19] разложение почвенных образцов происходит эффективнее при использовании смеси HNO_3 и HF . На основании этого было решено провести эксперимент по изучению влияния смеси различных реагентов, в качестве которых были выбраны концентрированные HNO_3 и HF – рекомендованные как наиболее эффективные. Для проведения эксперимента использовались высушенные и просеянные образцы почвы, отобранные на площадке «Опытное поле». Далее из высушенной почвы отбирались 5 навесок массой по $2 \pm 0,001$ г для подготовки методом автоклавного разложения. В каждую из навесок приливались последовательно HNO_3 и HF в различных соотношениях согласно схеме, представленной на рисунке 7. Результаты эксперимента представлены в таблице 6.

Подготовка образцов для измерений удельной активности ^3H на всех стадиях исследований проводилась в соответствии с аттестованной методикой [21]. С полученного дистиллята отбирали аликвоту объемом 3 мл, добавляли сцинтиллятор в пропорции 1:4 и

**МЕТОДИЧЕСКИЕ ПОДХОДЫ ДЛЯ ИССЛЕДОВАНИЯ СВЯЗАННЫХ ФОРМ НАХОЖДЕНИЯ ТРИТИЯ В ПОЧВАХ
РАДИОАКТИВНО-ЗАГРЯЗНЕННЫХ УЧАСТКОВ СЕМИПАЛАТИНСКОГО ИСПЫТАТЕЛЬНОГО ПОЛИГОНА**

измеряли на жидкосцинтилляционном β -спектрометре *TriCarb 2900 TR*.

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

РЕЗУЛЬТАТЫ

Результаты, полученные в ходе выполнения работ по задаче 1, представлены в таблице 1.

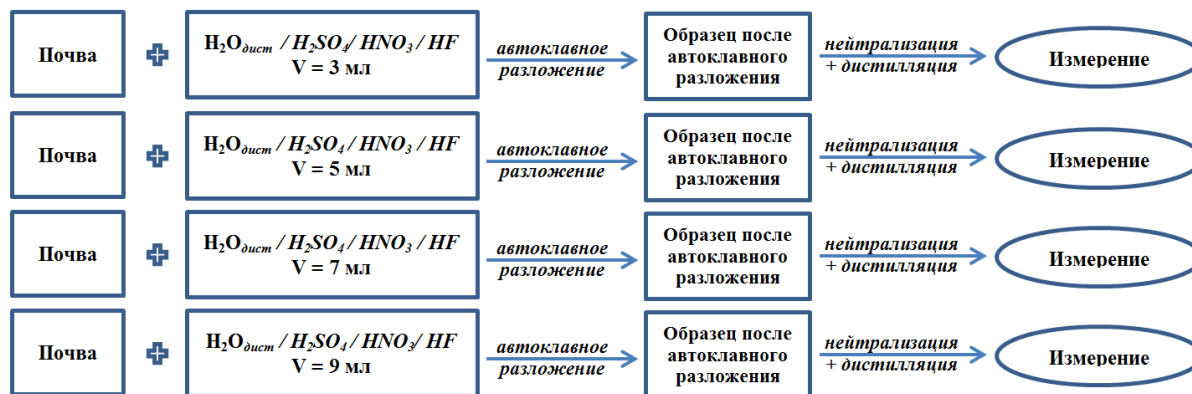


Рисунок 6. Схема эксперимента по изучению влияния различных реагентов и их объемов на процесс извлечения ^3H из почвы методом автоклавного разложения

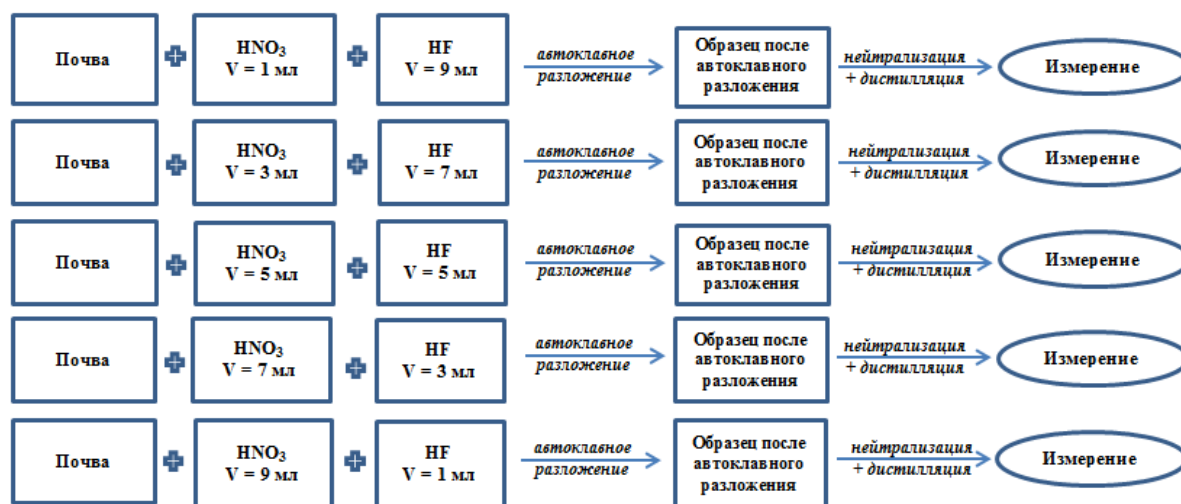


Рисунок 7. Схема эксперимента автоклавного разложения с использованием HNO_3 и HF в различных соотношениях

Таблица 1. Определение полноты извлечения ^3H методом автоклавного разложения

№	Повторность	Введено		Найдено									Холостая проба, Бк/кг
				Почва			Цеолит			Без твердого образца			
		УА, Бк/кг	АА, Бк	УА, Бк/кг	АА, Бк	% извл.	УА, Бк/кг	АА, Бк	% извл.	УА, Бк/кг	АА, Бк	% извл.	
1	№1	95 ± 13	0,1 ± 0,01	< 95	< 0,1	< 10,0	< 95	< 0,1	< 10,0	< 95	< 0,1	< 10,0	< 50
2		970 ± 100	1,0 ± 0,1	370 ± 105	0,4 ± 0,1	38,1	345 ± 110	0,3 ± 0,1	35,6	520 ± 120	0,5 ± 0,1	53,6	< 50
3		9100 ± 900	9,1 ± 0,9	3000 ± 300	3,0 ± 0,3	33,0	2800 ± 270	2,8 ± 0,3	30,8	3700 ± 375	3,7 ± 0,4	40,7	< 50
4		97000 ± 10000	97,0 ± 10,0	39600 ± 3960	39,6 ± 4,0	40,8	30800 ± 3080	30,8 ± 3,1	31,8	38300 ± 4000	39,3 ± 4,0	39,5	< 50
5	№2	95 ± 13	0,1 ± 0,01	< 95	< 0,1	< 10,0	< 95	< 0,1	< 10,0	< 95	< 0,1	< 10,0	< 50
6		970 ± 100	1,0 ± 0,1	440 ± 115	0,4 ± 0,1	45,4	260 ± 110	0,3 ± 0,1	26,8	265 ± 115	0,3 ± 0,1	27,3	< 50
7		9100 ± 900	9,1 ± 0,9	4000 ± 400	4,1 ± 0,4	45,1	2200 ± 250	2,2 ± 0,3	24,2	3800 ± 360	3,8 ± 0,4	41,8	< 50
8		97000 ± 10000	97,0 ± 10,0	60000 ± 5800	60,0 ± 5,8	61,9	36500 ± 3800	36,5 ± 3,8	37,6	46000 ± 4800	46,1 ± 4,8	47,5	< 50
9	№3	95 ± 13	0,1 ± 0,01	< 95	< 0,1	< 10,0	< 95	< 0,1	< 10,0	< 95	< 0,1	< 10,0	< 50
10		970 ± 100	1,0 ± 0,1	340 ± 110	0,3 ± 0,1	35,1	280 ± 100	0,3 ± 0,1	28,9	320 ± 120	0,3 ± 0,1	33,0	< 50
11		9100 ± 900	9,1 ± 0,9	4300 ± 440	4,3 ± 0,4	47,3	3400 ± 330	3,4 ± 0,3	37,4	4100 ± 450	4,1 ± 0,5	45,1	< 50
12		97000 ± 10000	97,0 ± 10,0	39600 ± 4000	39,6 ± 4,0	40,8	30800 ± 3100	30,8 ± 3,1	31,8	38300 ± 4000	38,3 ± 4,0	39,5	< 50

**МЕТОДИЧЕСКИЕ ПОДХОДЫ ДЛЯ ИССЛЕДОВАНИЯ СВЯЗАННЫХ ФОРМ НАХОЖДЕНИЯ ТРИТИЯ В ПОЧВАХ
РАДИОАКТИВНО-ЗАГРЯЗНЕННЫХ УЧАСТКОВ СЕМИПАЛАТИНСКОГО ИСПЫТАТЕЛЬНОГО ПОЛИГОНА**

Таблица 2. Определение валового содержания и полноты извлечения прочносвязанного ³H из почвы методом двустадийного автоклавного разложения

№	Место и точка отбора	Повторность	Удельная активность ³ H, Бк/кг			
			измерение 1	измерение 2	измерение 3	измерение*
1	«Атомное» озеро, т. 1	№1	79 000 ± 8 000	520 ± 60	< 50	60 000 ± 6 000
2		№2	66 000 ± 6 600	480 ± 55	< 50	
3		№3	75 500 ± 7 800	260 ± 60	< 50	
4		холостая проба	< 50	< 50	< 50	
5	«Опытное поле», т. П-3	№1	31 500 ± 3 000	90 ± 50	< 50	16 000 ± 1 500
6		№2	31 000 ± 3 100	85 ± 50	< 50	
7		№3	33 000 ± 3 400	< 50	< 50	
8		холостая проба	< 50	< 50	< 50	

* – результаты, полученные путем подготовки проб на приборе SAMPLE OXIDIZER

Основываясь на полученных данных установлено, что в процессе подготовки проб с использованием ранее предложенных методических подходов выход ³H низкий и составляет всего порядка 27–48%. При этом низкая эффективность метода не зависит от матричной структуры твердого образца или от величины концентрации ³H в нем. Таким образом, сделано предположение, что столь существенные потери могут быть связаны с другими процессами, происходящим на различных стадиях подготовки проб.

Результаты, полученные в ходе выполнения работ по задаче 2, представлены в таблице 2.

В ходе проведенных работ установлено, что значительная часть ³H выделяется из почвы на 1 стадии процесса автоклавирования. Остаточное содержание в сухом остатке меньше предела погрешности. Таким образом, выявлено, что для извлечения ³H из почвы достаточно 1 стадии автоклавирования.

Результаты, полученные в ходе выполнения работ по задаче 3, представлены в таблицах 3 и 4.

В результате экспериментальных работ установлено, что ³H содержится в значимых количествах как в жидкой, так и в твердой фазе. Это указывает на то, что в результате автоклавирования твердая фаза разлагается недостаточно. Следовательно, значительные потери в процессе автоклавирования связаны с малой эффективностью используемых реагентов. Также полученные данные указывают на эффективность проведения процесса нейтрализации в автоклавах, т.е. о необходимости исключения стадии центрифугирования.

Полученные данные подтверждают, что потери ³H не связаны с процессом нейтрализации.

Таблица 3. Влияние различных реагентов и их объемов на процесс извлечения ³H из почвы методом автоклавного разложения

№	Объем реагента, мл	Удельная активность ³ H, Бк/кг				
		H ₂ O	H ₂ SO ₄	HNO ₃	HF	холостая проба
1	3,0	1 300 ± 120	– *	9 200 ± 900	34 200 ± 3 400	< 50
2	5,0	1 100 ± 120	7 500 ± 750	11 000 ± 1 100	50 100 ± 5 000	< 50
3	7,0	1 300 ± 120	7 000 ± 700	12 500 ± 1 250	55 000 ± 5 500	< 50
4	9,0	2 700 ± 270	8 500 ± 850	12 000 ± 1 200	55 500 ± 5 500	< 50

* – измерение не проводилось по причине образования темного дистиллята

Результаты, полученные в ходе выполнения работ по задаче 4, представлены в таблице 5.

Таблица 4. Выявление возможных потерь ³H на различных стадиях при подготовке методом автоклавного разложения

№	Повторность	Удельная активность ³ H, Бк/кг		
		измерение 1	измерение 2	измерение 3
1	№1	47 000 ± 4 700	29 000 ± 2 900	22 000 ± 2 200
2	№2	44 000 ± 4 400	32 000 ± 3 200	17 000 ± 1 700
3	№3	46 000 ± 4 600	15 000 ± 1 500	17 000 ± 1 700
4	Холостая проба	< 50	< 50	< 50

Таблица 5. Результаты эксперимента по изучению влияния различных реагентов и их объемов на процесс автоклавирования с использованием изотопного индикатора

№	Объем реагента, мл	Абсолютная активность ³ H, Бк		
		H ₂ O	HNO ₃	HF
1	3,0	50 ± 5	65 ± 7	50 ± 5
2	5,0	70 ± 7	65 ± 7	58 ± 6
3	7,0	70 ± 7	67 ± 7	60 ± 6
4	9,0	80 ± 8	73 ± 7	60 ± 6

В результате экспериментальных работ с вариациями реагентов было выявлено, что вид реагента оказывает существенное влияние на процесс автоклавирования. Наибольшая эффективность извлечения ³H отмечается при использовании HF, что в 1,5 раза эффективнее реагентов, используемых согласно рабочей инструкции подготовки проб для элементного анализа методом автоклавного разложения [19].

**МЕТОДИЧЕСКИЕ ПОДХОДЫ ДЛЯ ИССЛЕДОВАНИЯ СВЯЗАННЫХ ФОРМ НАХОЖДЕНИЯ ТРИТИЯ В ПОЧВАХ
РАДИОАКТИВНО-ЗАГРЯЗНЕННЫХ УЧАСТКОВ СЕМИПАЛАТИНСКОГО ИСПЫТАТЕЛЬНОГО ПОЛИГОНА**

Таблица 6. Оценка влияния смеси HNO_3 и HF в различных соотношениях

№	Место и точка отбора	Соотношение реагентов, мл		Удельная активность 3H , Бк/кг
		HNO_3	HF	
1	«Опытное поле», т. П-3	1,0	9,0	54 000 ± 5 000
2		3,0	7,0	56 000 ± 5 000
3		5,0	5,0	52 000 ± 5 000
4		7,0	3,0	41 000 ± 4 000
5		9,0	1,0	33 000 ± 3 000
6	Холостая проба	–	9,0	< 50

Из полученных результатов следует, что использование смеси HNO_3 и HF в соотношении 3:7 более эффективно, что и рекомендовано использовать для оптимизации метода.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В результате проведенных экспериментальных работ проведена оценка эффективности метода автоклавного разложения, используемого для определения содержания связанных форм трития. Выявлено, что значительные потери связаны с неполным вскрытием матрицы и особенностями проведения анализа (с применением и без применения стадии центрифугирования). Экспериментальным путём установлено, что для повышения эффективности и оптимизации метода необходимо в качестве реагентов использовать смесь концентрированных плавиковой и азотной кислот в соотношении 7 и 3 мл, соответственно, а также исключить стадию центрифугирования. Также определено, что сама матричная структура и вели-

чина концентрации трития в ней не оказывает какого-либо влияния на процесс автоклавного разложения.

В результате проведенной оценки эффективности и применимости метода автоклавного разложения для определения связанных форм нахождения трития в почвах Семипалатинского испытательного полигона можно отметить, что метод применим для определения как суммарного содержания связанных форм трития, так и для определения каждой из форм (органически связанного и кристаллически связанного трития) по отдельности.

Полученные результаты свидетельствуют о том, что ранее полученные данные об уровнях концентрации связанного трития в почвах Семипалатинского испытательного полигона могут быть занижены. Таким образом, при проведении дальнейших работ по определению форм нахождения трития в почвах следует использовать оптимизированный метод автоклавного разложения.

Экспериментальные исследования, представленные в данной статье, выполнены в рамках РБП 036 «Развитие атомных и энергетических проектов», подпрограммы 105 «Прикладные научные исследования технологического характера в сфере атомной энергетики», мероприятие «Развитие атомной энергетики в Республике Казахстан» на 2018–2020 гг., этап 03.05. «Механизмы перераспределения трития в природных экосистемах, подверженных воздействию радиационно-опасных объектов и предприятий атомной отрасли».

ЛИТЕРАТУРА

1. 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. Tritium redistribution between water and clay minerals / A. Lopez-Galindo, Nach-Alip, Fenoll, A.V. Pushkarev // Applied Clay Science. – 2008. – № 39. – Р. 151–159.
3. Шишелова Т.И., Созинова Т.В., Коновалова А.Н. Практикум по спектроскопии. Вода в минералах. Учеб. пособие. – М.: Академия Естествознания, 2010. – ISBN 978-5-91327-093-1.
4. Ядерно-магнитный каротаж. Газовые гидраты. Контроль и управление разработкой пластов / Д. Аллен, С. Крэри, Б. Фридман // Нефтегазовое обозрение. - Хьюстон: Изд. Schlumberger, 2001. – Вып. 2. – С. 6–9.
5. Белицина Г.Д., Васильевская В.Д., Гришина Л.А. Почвоведение. Почва и почвообразование. –М.: Высш. Шк., 1988. – С. 85–252.
6. Бетехтин А.Г. Минералогия. – М: Государственное издательство геологической литературы, 1950. – С. 76–78.
7. Researching of tritium speciation in soils of “Balapan” site / Z.B. Serzhanova, A.K. Aidarkhanova, S.N. Lukashenko, O.N. Lyakhova, L.V. Timonova, A.M. Raimkanova // Journal of Environmental Radioactivity. – 2018. – № 192. – Р. 621–627.
8. Марчик Т.П. Почвоведение с основами растениеводства / Учреждение образования Гродненский государственный университет им. Я. Купалы (Гродно). – Гродно :ГрГУ, 2006. – 249 С.
9. NCRP. Tritium in the environment. National Council on Radiation Protection and Measurement, Bethesda, Maryland. – 1979.
10. Organically Bound Tritium / S. Diabate, S. Strack // Health Physics 65. – 1993. – Р. 698–712.
11. 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.
12. Baglan N., Kim S.B., Cossonnet C., Croudace I.V., Fournier M., Galeriu D., Warwick P.E., Momoshima N., Ansoborlo E. Organically bound tritium behaviour and analysis: outcomes of the seminar held in Balaruc-les-Bains in May 2012. Radioprotection – EDP Sciences, 2013.
13. Ровинский Ф.Я., Иохельсон С.Б., Юшкан Е.И. Методы анализа загрязнения окружающей среды. Токсические металлы и радионуклиды. Москва : Атомиздат, 1978. – 264 с.
14. Оптимизация методов исследования тритиевого загрязнения почв с учетом особенностей Семипалатинского испытательного полигона / З.Б. Сержанова, А.К. Айдарханова, О.Н. Ляхова, Р.А. Койшыбаев // Вестник НЯЦ РК. – 2018. – Вып. 4. – С. 49–53.

15. Organically bound tritium activity concentrations in surface soil at the Chalk River Laboratories, Canada / S.B. Kim, M. Bredlaw, H. Rouselle, F. Farrow, J. Carr, V.Y. Korolevych, M. Stuart // Journal of Environmental Radioactivity. – 2019. – Vol. 208–209, – 105999.
16. A method for the determination of organically bound tritium in marine biota based on an improved tubular-combustion system / Feng Lin, Wen Yu, Junpeng Guo, Hui Liao, Yong Wang // Journal of Environmental Radioactivity. – 2020. – № 211, – 106084.
17. Levels of tritium in soils and vegetation near Canadian nuclear facilities releasing tritium to the atmosphere: implications for environmental models / P.A. Thompson, N.-O.A. Kwamena, M.Wilk, I.D. Clark // Journal of Environmental Radioactivity. – 2015. – № 140. – P. 105-113.
18. Тимонова Л.В., Ляхова О.Н., Лукашенко С.Н., Айдарханов А.О. Исследование содержания трития в почве в местах проведения ядерных испытаний на территории Семипалатинского испытательного полигона // Радиационная биология. Радиоэкология. – 2015. – Т. 55. – № 6. – С. 667–672.
19. Рабочая инструкция 03-02-03 (А). Подготовка проб для элементного анализа методом автоклавного разложения. – Курчатова: ИРБЭ НЯЦ РК, 2011. – С.12.
20. Раимканова А.М., Айдарханова А.К., Ляхова О.Н., Сержанова З.Б. Оценка влияния физико-химических факторов на процессы выщелачивания радионуклидов из грунта // Радиохимия. – 2019. – Т. 61. – № 5. – С. 439–445.
21. Международный стандарт ISO 9698:2010 (Е). Качество воды – определение активности трития, соответствующей данной концентрации – жидкостной методом сцинтилляционного счета. – Введ.1989-12-01. – Москва: ВЦП НТЛИД, 1990. – 17 с.

СЕМЕЙ СЫНАҚ ПОЛИГОНЫНЫҢ РАДИОАКТИВТІ-ЛАСТАНҒАН ТЕЛІМДЕРІНІҢ ТОПЫРАҚТАРЫНДАҒЫ ТРИТИЙДІ АНЫҚТАУДЫҢ БАЙЛАНЫСҚАН ФОРМАЛАРЫН ЗЕРТТЕУГЕ АРНАЛҒАН ӘДІСТЕМЕЛІК ТӘСІЛДЕР

З.Б. Сержанова, А.К. Айдарханова, О.Н. Ляхова, Л.В. Тимонова, А.М. Раимканова

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

Мақалада топырақтағы ^3H анықтау формаларын зерттеуге арналған әдістемелік тәсілдер ұсынылған. ^3H байланысқан формаларын анықтау үшін қолданылатын автоклавты ыдырау әдісінің тиімділігі мен сапасына бағалау жүргізілген. ^3H бөлу процесіне матрицалық құрылымның әсерін бағалау үшін үлгілер ретінде топырақ пен цеолит қолданылған. Тәжірибе барысында ^3H құрамының әсері мен толық бөлінуін бағалау үшін 100-ден 100 000 Бк/л дейінгі түрлі белсенділіктегі изотопты индикатор қолданылған. Барлық тәжірибелер бірнеше қайталанып жүргізілген. Тәжірибенің әрбір кезеңінде оның «тазалығын» бағалау үшін салтаң тәжірибе жүргізілген. Аталған әдістің тиімділігі шамамен 27–48% құрайтыны көрсетілді. Айтарлықтай шығынның матрицаның толық ашылмауымен және талдама жүргізудің ерекшеліктерімен байланысты екені белгіленді. Матрицалық құрылым мен ^3H құрамы топырақтан ^3H байланысқан формаларын бөлудің тиімділігіне әсер етпейтіні анықталды. Авторлар әдістің тиімділігін жоғарылату үшін реагенттер ара қатынасын өзгерту және центрифугалау кезеңдерін болдырмау сияқты бірқатар әдістерді ұсынған.

METHODOLOGICAL APPROACHES TO RESEARCH INTO TRITIUM BOUND SPECIATION IN SOILS OF RADIOACTIVELY CONTAMINATED AREAS AT SEMIPALATINSK TEST SITE

Z.B. Serzhanova, A.K. Aidarkhanova, O.N. Lyakhova, L.V. Timonova, A.M. Raimkanova

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

The article provides methodological approaches to research into ^3H speciation in soil. The quality and efficiency of the autoclave decomposition technique was assessed, which was used for separating bound ^3H . Soil and zeolite were used as samples for assessing the impact of the matrix structure on ^3H extraction process. In the course of the experiment, a tracer of the different activity – 100 to 100,000 Bq/l was used for assessing completeness of extraction and the impact of ^3H content. Each experiment were conducted in several replications. At each experimental stage, a blank test was conducted to assess its 'integrity'.

It was shown that the efficiency of this technique is about 27–48%. It was found that significant losses are related to an incompletely open matrix and features of the analysis carried out. It was revealed that the matrix structure and the content of ^3H do not affect the extraction efficiency of ^3H bound forms from soil. Authors suggested a number of approaches to improve the technique efficiency, such as measuring the ratio of reagents and omitting the centrifuging stage.