УДК 550.424:551.464

НОВЫЕ ДАННЫЕ О ДОЛГОЖИВУЩИХ ТЕХНОГЕННЫХ И ЕСТЕСТВЕННЫХ РАДИОАКТИВНЫХ ИЗОТОПАХ В ВЕРХНИХ ГОРИЗОНТАХ ПОЧВЫ В ОКРЕСТНОСТЯХ СЕВЕРОДВИНСКОГО ПРОМЫШЛЕННОГО РАЙОНА

Зыков С.Б., Дружинин С.В., Зыкова Е.Н., Яковлев Е.Ю., Покровский О.С.

Федеральный исследовательский центр комплексного изучения Арктики им. академика Н.П. Лаверова РАН, Архангельск, e-mail: abs2417@yandex.ru

Целью исследования являлся актуальный анализ содержания долгоживущих техногенных и природных радиоактивных изотопов в верхних почвенных горизонтах на территории в непосредственной близости к Северодвинскому промышленному району (СПР). В 2017 г. был проведен отбор проб верхних горизонтов двух основных типов почв. Произведен замер и анализ проб на гамма-спектрометрическом комплексе, определена активность техногенных изотопов 134Cs, 137Cs, 60Co, 152Eu, 154Eu и изотопов естественного ряда, таких как 40K, 226Ra, 232Th. В процессе работы выявлены точки с повышенными значениями техногенных изотопов. Рассчитаны средние значения активностей для торфяно-подзолистых и болотно-торфяных почв. Выявлены точки с повышенными значениями и рассчитана суммарная активность для каждой из них. Кроме того отобранные пробы обрабатывались радиохимическими методами и анализировались на содержание в них изотопов урана 234U, 235U, 238U на альфа-спектрометрическом комплексе. В результате обработки полученных данных были выявлены незначительные превышения активности изотопов урана в некоторых точках отбора проб, однако все эти значения не выходят за пределы фоновых значений. В целом повышенные значения техногенных радионуклидов тяготеют к территории, расположенной к западу от Северодвинского промышленного района. Активность ряда естественных гамма-активных изотопов не имеет на исследованной территории каких либо отличий от активности аналогичных почв. Несбалансированность изотопов 40K, 226Ra, 232Th также отсутствует, что указывает на то, что верхние горизонты почв в местах отбора не подвергались техногенному воздействию. Была заложена основа для мониторинговых исследованной территории в будущем.

Ключевые слова: радиоактивные изотопы, геоэкология, почвы, экологический мониторинг, спектрометрия, радиохимия

NEW DATA ON LONG-LIVING TECHNOGENIC AND NATURAL RADIOACTIVE ISOTOPES IN UPPER LAYERS OF SOIL IN THE NEIGHBORHOOD OF THE SEVERODVINSK INDUSTRIAL AREA

Zykov S.B., Druzinin S.V., Zykova E.N., Yakovlev E.Yu., Pokrovskiy O.S.

Federal Centre for Integrated Arctic Research named after N.P. Laverov RAS, Archangelsk, e-mail: abs2417@yandex.ru

The aim of the study was to analyze the content of long-lived man-made and natural radioactive isotopes in the upper soil horizons in the territory in close proximity to the Severodvinsk industrial region (SIR). In 2017, samples were taken of the upper horizons of the two main soil types. Samples were measured and analyzed for the gamma-spectrometry complex, the activity of man-made isotopes 134Cs, 137Cs, 60Co, 152Eu, 154Eu and natural isotopes, such as 40K, 226Ra, 232Th, was determined. In the process, points with elevated values of man-made isotopes were identified. The average values of activities for peat-podzolic and bog-peat soils are calculated. Identified points with elevated values and calculated the total activities for each of them. In addition, the selected samples were processed by radiochemical methods and analyzed for the content of ²³⁴U, ²³⁵U, ²³⁸U isotopes in them on the alphaspectrometric complex. As a result of processing the obtained data, insignificant excess of the activity of uranium isotopes was detected at some sampling points; however, all these values do not go beyond the background values. In general, the increased values of man-made radionuclides to the territory located to the west of the Severodvinsk industrial region. The activity of a number of natural gamma-active isotopes does not have any differences in the studied area from the activity of similar soils. The imbalance of the isotopes ⁴⁰K, ²²⁶Ra, ²³²Th is also absent, which indicates that the upper soil horizons, at the sites of selection, were not subjected to anthropogenic impact. The foundation was laid for monitoring of the area in the future.

 $Keywords: radioactive\ isotopes,\ geo-ecology,\ soils,\ environmental\ monitoring,\ spectrometry,\ radiochemistry,\ radioch$

Важнейшей задачей изучения окружающей среды является мониторинг радионуклидов в почвах вокруг крупных промышленных центров. Источниками поступления техногенных и естественных радиоактивных изотопов могут быть ядерные энергетические установки, закрытые, точечные источники излучения, химические соединения, применяемые в производстве и аварии. Сред-

немировое значение эквивалентной дозы для населения составляет порядка 3,5 м³ в год, тогда как вклад фонового гамма-излучения в эту дозу составляет не менее 15%, не включая радон и космическое излучение [1]. Определение средних фоновых и повышенных значений активности изотопов вокруг промышленных предприятий является весьма нужным и интересным направлением.

Целью исследования являлся актуальный анализ содержания долгоживущих техногенных и природных радиоактивных изотопов в верхних почвенных горизонтах на территории в непосредственной близости к Северодвинскому промышленному району (СПР). Задача заключалась в том, чтобы определить значения активности таких техногенных и естественных радионуклидов, как ¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs, ⁶⁰Co, ¹⁵²Eu, ¹⁵⁴Eu, ⁴⁰K, ²²⁶Ra, ²³²Th, ²³⁴U, ²³⁵U, ²³⁸U, в верхних горизонтах двух основных типов почв, встречающихся на данной территории. Группа таких радионуклидов, как ⁴⁰K, ²²⁶Ra, ²³²Th, ²³⁴U, ²³⁵Ū, ²³⁸U, относится к природным и на постоянной основе, в большей или меньшей степени, содержится в почве и определяет естественный радиоактивный фон.

Первые два техногенных изотопа ¹³⁴Cs, $(T_{_{1/2}}$ 2,06 лет), $^{137}{\rm Cs}$ $(T_{_{1/2}}$ 30,16 лет) весьма радиотоксичны [2]. Образуются преимущественно при делении ядер в ядерных реакторах, взрывах ядерного оружия, содержатся в радиоактивных выпадениях, радиоактивных отходах, сбросах заводов, перерабатывающих отходы атомных энергетических установок. Эти изотопы цезия одни из главных элементов радиоактивного загрязнения биосферы. Активно поглощаются растениями в обедненных кальцием торфяно-болотных почвах. Несмотря на то, что 134Cs имеет более короткий период полураспада, он обладает более жестким по сравнению с ¹³⁷Cs излучением и большой активностью $(4,7\cdot10^{13} \text{ Бк/г})$ [3].

Не менее опасны и изотопы ⁵⁸Co, ⁶⁰Co. В выбросах АЭС, эксплуатирующихся много лет, даже при безаварийной работе, возможно присутствие продуктов активации таких изотопов, как ⁶⁰Со и других, являющихся следствием коррозии металла и активации растворенных веществ в воде первого контура. Даже при незначительных дефектах оболочек тепловыделяющих элементов продукты деления проникают в теплоноситель. Далее они распространяются по вентиляционным и канализационным системам. Кроме того, ⁶⁰Со широко применяется в гамма-дефектоскопии для контроля и регулирования уровня расплавленного металла в плавильных печах непрерывной разливки, в гамма-толщиномерах и радиоизотопных электрогенераторах.

Высокотоксичными радионуклидами также являются 152 Eu, $(T_{1/2}\ 13,525\ лет)$ 154 Eu $(T_{1/2}\ 8,601\ лет)$ [4]. Источниками поступления изотопов европия могут быть разгерметизация и разрушение закрытых источников гамма-излучения на производстве,

а также отголоски глобальных выпадений от испытаний ядерного оружия в атмосфере в 1960-х гг. Международный стандарт ISO 2919:1999 относит радиотоксичность европия ¹⁵²Еи и ¹⁵⁴Еи к той же группе В1 (высокая токсичность), что и токсичность промышленных радионуклидов ⁶⁰Со и ¹³⁷Сs [4]. Кроме того изотопы европия являются перспективными закрытыми источниками гамма-излучения для нужд промышленности, и их постоянный экологический мониторинг также необходим.

Естественные радиоактивные изотопы 40 К ($T_{1/2}$ 1,248·10⁹ лет), 226 Rа ($T_{1/2}$ 1,6·10³ лет), 232 Th ($T_{1/2}$ 1,405·10¹⁰ лет) вносят существенный вклад в радиационную обстановку местности [5]. Несмотря на то, что генотип человека сформировался на фоне облучения данными радионуклидами их повышенные концентрации в почве и других объектах биосферы оказывают угнетающее и канцерогенное воздействие на организм. Источником избыточного количества ⁴⁰K в почве могут быть калийные удобрения, соли калия, использующиеся в гальванотехнике и аккумуляторах на предприятиях, при сушке газов в металлургии, варке стекла, ядерных реакторах. Следует отметить, что пероксид калия и супероксид калия используются для регенерации воздуха на подводных лодках. Источником поступления ²²⁶ Ra в окружающую среду могут быть локальные свалки приборов со светомассой постоянного действия, применявшейся в 1970-х гг. ²²⁶Ra также может поступать в окружающую среду в виде продукта распада материнского альфа-активного изотопа ²³⁰Th, присутствующего в ядерных энергетических установках. ²³²Th применяется в атомной энергетике в высокотемпературных жидко-солевых реакторах совместно с ураном, плутонием и используется в металлургии в высокотемпературных печах.

Кроме того большой интерес представляют собой изотопы урана, содержащиеся как в природе, так имеющие и техногенное происхождение. Обогащенный и обедненный уран широко используется в промышленности, военном деле, медицине, науке в качестве радиационной защиты, источника ядерной энергии, ядерного оружия, брони, лучевой терапии и генераторов нейтронов [5]. Разумеется, в любой из этих отраслей возможны его утечки и выбросы, которые могут накапливаться в почвах и оказывать негативное влияние на здоровье человека, благодаря альфа-излучению и химической токсичности.

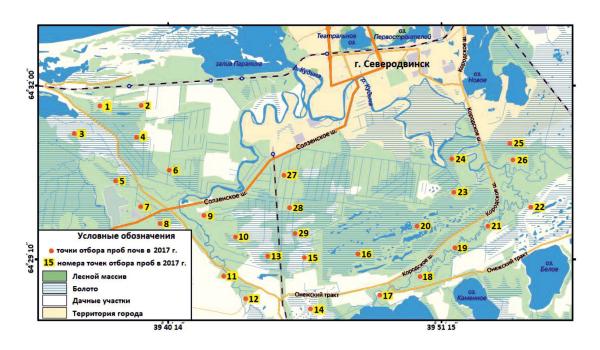


Рис. 1. Схема расположения точек отбора проб почв в районе Северодвинского промышленного района

Материалы и методы исследования

Для решения поставленной задачи была выбрана территория, прилежащая к Северодвинскому промышленному району, на которой содержатся все возможные источники поступления в окружающую среду исследуемых радионуклидов. В ходе экспедиционных работ летом 2017 г. было отобрано 29 проб верхнего почвенного горизонта двух типов почв, которые обозначены как серия образцов SM-XX-17, где XX соответствует номеру точки отбора на рис. 1.

Для болотно-подзолистого типа почв отбирались горизонты Ат-А, на глубину 15 см. На местах с торфяно-болотным верховым типом почв отбирался горизонт Т на глубину до 15 см. В том и другом случае перед отбором проб лесная подстилка и сфагновый очес удалялись. Пробы отбирались титановой лопатой, маркировались и упаковывались в полиэтиленовые пакеты. После доставки в лабораторию пробы высушивались в сушильном шкафу при 70°C и измельчались. Измерение проб производилось на гамма-спектрометре ORTEC с полупроводниковым детектором по геометрии Маринелли. Также был проведен цикл радиохимической подготовки проб для альфа-спектрометрических измерений изотопов урана на спектрометре «Прогрессальфа». Работы проводились с использованием методики «Определение объемной активности изотопов урана 234 и 238 в пробах почв» [6]. Все результаты измерений подвергались обработке на программном обеспечении спектрометров для расчета результатов и контроля погрешности измерений на необходимом уровне.

Результаты исследования и их обсуждение

В результате проведенных исследований верхних горизонтов двух типов почв были определены значения активности вышеупомянутых радионуклидов. К торфяно-болотному верховому типу почв были отнесены 22 образца, сюда вошли пробы, отобранные в точках 1–8, 10, 12–15, 17–25. К болотно-подзолистому типу почв принадлежат 7 проб, отобранных в точках 9, 11, 16, 26–29.

Средние значения активности техногенных изотопов в торфяно-болотных верховых почвах составляют: ¹³⁴Cs 2,32 (Бк/кг); ¹³⁷Cs 21,92 (Бк/кг); ⁶⁰Co 2,88 (Бк/кг); ¹⁵²Eu 4,65 (Бк/кг); ¹⁵⁴Eu 3,43 (Бк/кг) (рис. 2, а). В верхнем горизонте торфяно-подзолистых почв средняя активность искусственных изотопов варьирует от 2,18 до 29,19 Бк/кг (рис. 2, а). Активность ¹³⁷Cs, ⁶⁰Co и ¹⁵⁴Eu несколько выше в верхних горизонтах торфяно-болотного верхового типа, чем в болотно-подзолистых почвах. Средние актив-

ности естественных радиоизотопов, таких как торий и калий, немного выше в болотно-подзолистом типе почв (рис. 2, б). Средние значения этих изотопов, обнаруженные на данной территории, составляют в болотно-подзолистой почве 5,85 Бк/кг, а в торфяно-болотной 8,70 Бк/кг. Средняя активность тория варьирует от 7,87 Бк/кг в болотно-подзолистой до 5,78 Бк/кг в торфяно-болотной почве. Калий-40 показывает средние значения активности 79,55 Бк/кг в торфяно-болотных верховых почвах, достигая 310,34 Бк/кг в болотно-подзолистом типе почв.

По площади района исследования наиболее загрязненными техногенными радио-

нуклидами являются участки в точках отбора проб 2, 4, 5, 6, 7, 9, 13, 20 в которых суммарная гамма-активность техногенных изотопов превышает 50 Бк/кг (рис. 3). Суммарная активность здесь варьирует от 58,3 Бк/кг (точка 2) до 132,1 Бк/кг (точка 7). Наибольший вклад в активность в этих пробах вносит ¹³⁷Cs, аккумулируемый в основном в растительности и органическом веществе. Этим объясняется и то, что только одна точка 9 из вышеупомянутых относится к болотно-подзолистому типу почв, в которой зафиксировано значение гамма-активности выше 50 Бк/кг. В то время как остальные пробы (2, 4, 5, 6, 7, 13, 20) это торфяно-болотный тип почв с высоким содержанием органических веществ.

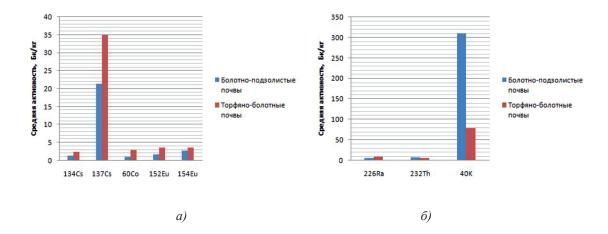


Рис. 2. а) средняя активность техногенных гамма-активных изотопов в верхнем почвенном горизонте; б) средняя активность естественных гамма-активных изотопов в верхнем почвенном горизонте

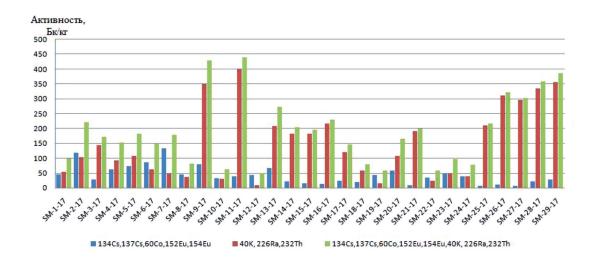


Рис. 3. Соотношение общей гамма-активности техногенных и естественных изотопов и их вклад в общую суммарную активность проб почв

Гамма-активность ряда естественных радионуклидов ⁴⁰K, ²²⁶Ra и²³²Th, характеризуется на данной территории типичными фоновыми значениями. Суммарная активность в верхнем горизонте Т торфяно-болотных почв колеблется от 7,81 Бк/кг (точка 12) до 210,57 Бк/кг (точка 25) и соответствует фоновым значениям в данном типе почв. Разумеется, максимальный вклад в активность этой группы радионуклидов вносит 40К. Отобранные пробы, относящиеся к болотно-подзолистому типу почв, имеют активность несколько выше, чем торфяно-болотные в силу иного естественного минерального состава, имеющего больше калия. Максимальные значения суммарной активности достигают в данном типе почв 439,81 Бк/кг (точка 11). Повышенных значений указывающих на техногенное поступление 40 К, 226 Ra и 232 Th в почву, на данной территории не выявлено.

Отсутствует также несбалансированность изотопов, которая указывает на техногенное воздействие на верхние слои почвы. Из рис. 3 видно, что вклад техногенных изотопов в общую активность почв иногда значительно превышает долю естественных изотопов. Например, в точках отбора проб 7, 12, 19 доля техногенных изотопов превышает вклад естественных изотопов в 2,8; 5,4 и 2,8 раза соответственно.

Интересно и то, что все эти точки относятся к торфяно-болотному типу почв. В болотно-подзолистых почвах большую долю гамма-активности вносят калий содержащие минералы и из-за этого вклад в гамма-активность техногенных изотопов нивелируется.

Изотопы урана, исследованные на данной территории, показали следующие значения альфа активности. В верхних горизонтах торфяно-болотного верхового типа почв среднее значение ²³⁸U в серии отобранных проб составляло 0,383 Бк/кг. Средняя активность ²³⁴U и ²³⁵U составляла соответственно 0,466 и 0,098 Бк/кг почвы. Общая суммарная активность урана в торфяно-болотных почвах варьировала от 0,685 Бк/кг (точка 15) до 1,187 и 1,214 Бк/кг в точке 6 и 23 соответственно. В торфяно-подзолистом типе почв средняя альфаактивность ²³⁸U в образцах была в пределах 0,427 Бк/кг. Средняя активность ²³⁴U, и ²³⁵U составляла соответственно 0,535 и 0,079 Бк/кг почвы. Общая активность изотопов урана в болотно-подзолистых почвах имела минимальные значения

в точке 16 (0,732 Бк/кг), а относительно высокие уровни активности были обнаружены в точке 27 (1,446 Бк/кг). Низкая активность изотопов урана в торфяно-болотных верховых почвах обуславливается низким содержанием минерального вещества и повышенной кислотностью этого типа почв, что обеспечивает переход соединений урана в подвижную форму с последующим вымыванием его в нижележащие горизонты.

Заключение

В целом можно сказать, что наибольшие значения техногенных радионуклидов в верхних горизонтах почв располагаются к западу от Северодвинского промышленного района. Гамма-активность естественных изотопов соответствует фоновым значениям для данных типов почв. В основном наибольшие активности определяются в верхнем горизонте болотно-подзолистых почв. На исследуемой территории не обнаружено превышения активности изотопов ⁴⁰K, ²²⁶Ra и ²³²Th, как и их дисбаланса. В процессе исследований не было выявлено какой либо корреляции в распределении техногенных гамма-активных изотопов и изотопов урана. Учитывая распределение среднегодовых потоков воздушных масс можно предположить, что источником техногенных изотопов на западе от Северодвинского промышленного района могли быть отголоски выбросов с локальных объектов (свалки, хранилища радиоактивных отходов и т.п.) западнее СПР в прошлом. Все полученные значения техногенных и природных гамма-активных изотопов ниже предельно допустимых величин, как и активность трех альфа-активных изотопов урана и не могут оказывать негативного влияния на окружающую среду.

Список литературы / References

1. Кошелев Ф.П., Силаев М.Е., Селиваникова О.В. Технологии ЯТЦ и экология: Учебное пособие. Томск: Изд-во ТПУ, 2008. 208 с.

Koshelev F.P., Silayev M.E., Selivanikova O.V. NFCs technologies and ecology: Manual. Tomsk: TPU publishing house, 2008. 208 p. (in Russian).

- 2. Wieser M.E., Holden N., Coplen T.B. [et al.] Atomic weights of the elements 2011 (IUPAC Technical Report). Pure and Applied Chemistry. 2013. Vol. 85. Is. 5. P. 1047–1078.
- 3. Mietelski J.W., Kierepko R., Lokas E., Cwanek A., Kleszcz K., Tomankiewicz E., Mróz T., Anczkiewicz R., Szałkowski M., Was B., Bartyzel M., Misiak R. Combined, sequential procedure for determination of ¹³⁷Cs, ⁴⁰K, ⁶³Ni, ⁹⁰Sr, ^{230,232}Th, ^{234,238}U, ²³⁷Np, ^{238,239+240}Pu and ²⁴¹Am applied for study on contamination of soils near Zarnowiec Lake (northern Poland). Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry. 2016. № 310 (2). P. 661–670. DOI: 10.1007/s10967-016-4835-0.

4. Дюльдя С.В., Братченко М.И., Скоробогатов М.А. Радионуклиды европия как источники излучения для гамма-радиационных технологий: моделирование распределений поглощенной дозы в гомогенных средах // Вопросы атомной науки и техники. Серия: Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение 2004. № 3 (85). С. 128–14.

Dyuldya S.V., Bratchenko M.I., Skorobogatov M.A. Europium radionuclides as radiation sources for gamma and radiation technologies: modeling of distributions of the absorbed dose in homogeneous environments // Voprosy` atomnoj nauki i texniki. Seriya: Fizika radiacionny`x povrezhdenij i radiacionnoe materialovedenie 2004. № 3 (85). P. 128–14 (in Russian).

5. Головко В. Проблемы обеднённого урана // Наука и техника. 2015. № 9 (112). С. 20–24.

Golovko V. Problems of the impoverished uranium // Nauka i texnika. 2015. No 9 (112). P. 20–24 (in Russian).

6. Методика измерений удельной активности изотопов урана в пробах почв, грунтов, донных отложений и горных пород и строительных материалов на их основе альфа-спектрометрическим методом с радиохимической подготовкой // Лаборатория изотопных методов анализа ФГУП «Всероссийский научно-исследовательский институт минерального сырья им. Н.М. Федоровского». М., 2013. 18 с.

Measurement technique of specific activity of isotopes of uranium (²³⁸U, ²³⁴U, ²³⁵U) in tests of soils, soil, ground deposits and rocks and construction materials on their basis by an alpha and spectrometer method with radiochemical preparation // Laboratoriya izotopny`x metodov analiza FGUP «Vserossijskij nauchno-issledovatel`skij institut mineral`nogo sy`r`ya im. N.M. Fedorovskogo». M., 2013. 18 p. (in Russian).