

Экспериментальное исследование предела обнаружения ^{236}U в воздухе с использованием радиохимического выделения и альфа-спектрометрии

А.Д. Геденов¹, И.В. Колчин^{1,2}, А.К. Авениров²

¹ ФГУП НПО «Радиовый институт им. В.Г. Хлопина», Санкт-Петербург

² Санкт-Петербургский государственный университет,
Санкт-Петербург

Основными источниками поступления урана в окружающую среду являются горнодобывающие предприятия, ядерные испытания, аварии ядерных реакторов и предприятия ядерного топливного цикла. Радионуклид ^{236}U образуется из ^{235}U при захвате тепловых нейтронов и используется для идентификации следов техногенного урана. В данной работе описан чувствительный метод для определения ^{236}U в приземном слое атмосферного воздуха, включающий озонение и прокаливание фильтров после прокачки атмосферного воздуха, полное растворение остатка в смеси минеральных кислот, выделение и очистку урана от примесей с использованием анионообменной хроматографии и изготовление альфа-спектрометрического источника. Длительные альфа-спектрометрические измерения проводились на альфа-спектрометре с кремниевым ионно-имплантированным планарным детектором. Предел обнаружения ^{236}U в приземном слое атмосферного воздуха составил 5×10^{-9} Бк/м³ (2 нг/м^3).

Ключевые слова: ^{236}U , приземный слой атмосферного воздуха, анионообменная хроматография, альфа-спектрометрия.

Введение

Радионуклид ^{236}U ($T_{1/2} = 2,342 \times 10^7$ лет) образуется по реакции $^{235}\text{U} (n, \gamma) ^{236}\text{U}$ и используется для идентификации следов техногенного урана в пробах окружающей среды, отобранных в районе расположения предприятий ядерного топливного цикла, ядерных полигонов и АЭС. По данным работы [1], общее количество наработанного ^{236}U составляет около 10^6 кг. Изотопное отношение $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ для проб воды, почвы и донных отложений, отобранных на значительном удалении от потенциальных источников ^{236}U , находится в интервале $6 \times 10^{-10} - 1,5 \times 10^{-9}$ [1, 2]. В почвах вблизи Чернобыльской АЭС это отношение достигает $10^{-6} - 10^{-3}$ [3, 4] и по мере удаления от аварийного блока АЭС на 200 км выходит на уровень 2×10^{-7} . В работе [5] были проведены измерения изотопного отношения $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ в пробах почвы вблизи заводов Рокки Флэтс (Колорадо, США), донных отложений из реки Аштабула (Огайо, США), загрязненных выбросами заводов, перерабатывавших в 1962–1988 гг. обедненный и обогащенный уран, а также в донных отложениях из дельты реки Мёрси (Ливерпуль, Великобритания), накапливавших радионуклиды, выброшенные в окружающую среду заводами оружейного комплекса Селлафилд (Великобритания). Наибольшее значение изотопного отношения $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ для проб, отобранных в районе расположения предприятий атомной промышленности, равное $1,4 \times 10^{-4}$, было зафиксировано для донных отложений р. Аштабула. В почвах из окрестности заводов Рокки Флэтс максимальное отношение $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ составило $2,8 \times 10^{-6}$, в донных отложениях р. Мёрси – $4,4 \times 10^{-6}$. В иголках сосны, отобранных вблизи завода по газодиф-

фузионному обогащению урана, изотопное отношение $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ достигает значений 8×10^{-5} [6].

Все экспериментальные результаты по измерению $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ в работах [1–6] были получены с помощью масс-спектрометрии с индуктивно связанной плазмой (ICP-MS) и ускорительной масс-спектрометрии (AMS). Существенным недостатком этих методов является невозможность прямого измерения концентрации ^{236}U в исследуемых пробах, поскольку возможности данных методов основаны на измерении изотопных отношений. Указанный недостаток отсутствует в альфа-спектрометрическом методе, который позволяет одновременно измерять содержание ^{238}U , ^{234}U и ^{235}U в пробах окружающей среды после радиохимического выделения урановой фракции с радиоактивным индикатором ^{232}U [7, 8]. Сравнению наиболее перспективной разновидности масс-спектрометрии с индуктивно связанной плазмой метода ICP-SFMS и альфа-спектрометрии для идентификации переработанных урановых материалов посвящена работа [9]. Однако авторы работы [9] ограничили свое исследование только пробами обогащенных окислов урана. Предел обнаружения ^{236}U в растворенных 10 мг навесках окислов урана составил 1,1 мкг/г для ICP-SFMS и 13 мкг/г для альфа-спектрометрии.

Цель исследования. Цель настоящей работы состояла в экспериментальном исследовании предела обнаружения ^{236}U в пробах окружающей среды после радиохимического выделения урановой фракции и альфа-спектрометрических измерений. В качестве объекта исследований был выбран приземный слой атмосферного воздуха. В рассмотренной нами научно-технической

литературе данных о методиках измерения ^{236}U и его содержании в приземном слое атмосферного воздуха обнаружено не было.

Материалы и методы

Пробы аэрозолей из приземного слоя атмосферного воздуха отбирали на фильтры ФПП-15 (ткань Петрянова) внутри и за пределами зоны наблюдения предприятия ядерного топливного цикла. Снятые фильтры после прокачки воздуха озоняли и прокаливали при 1000°C . Для контроля химического выхода в навеску золы до ее прокаливания вносили радиоактивный индикатор ^{232}U . Прокаленный остаток полностью растворяли в смеси концентрированной плавиковой, азотной и соляной кислот. Затем проводили соосаждение урана с $\text{Fe}(\text{OH})_3$ и его очистку от примесей на анионообменной смоле АВ-17. Конечным этапом было изготовление альфа-спектрометрического источника выпариванием выделенной урановой фракции с тетраэтиленгликолем (ТЭГ) на кварцевом диске. Изготовленные альфа-спектрометрические источники измеряли на кремниевом ионно-имплантированном планарном детекторе альфа-частиц с площадью чувствительной поверхности 1200 мм^2 и разрешением 30 кэВ на альфа-линии 5500 кэВ . Экспозиция составляла от 4 до 15 суток. Контроль достоверности методики измерений проводился [8] с использованием эталонной пробы донных отложений IAEA-300.

Результаты и обсуждение

В таблице 1 приведены ядерно-физические данные [10, 11] для изотопов урана. Альфа-спектры урановых фракций, выделенных из озоненных фильтров, приведены на рисунках 1 и 2.

Таблица 1

Ядерно-физические характеристики изотопов урана

Нуклид	Период полураспада, лет	Энергии основных альфа-линий, кэВ	Выход на распад, %
^{234}U	$2,445 \times 10^5$	4775	71,8
		4723	27,9
^{235}U	$7,038 \times 10^8$	4599	5,4
		4558	4,5
		4417	2,1
		4397	54
		4366	17
		4326	4,7
		4218	5,7
^{236}U	$2,342 \times 10^7$	4494	73,9
		4445	26,0
^{238}U	$4,468 \times 10^9$	4197	76,8
		4150	23,0

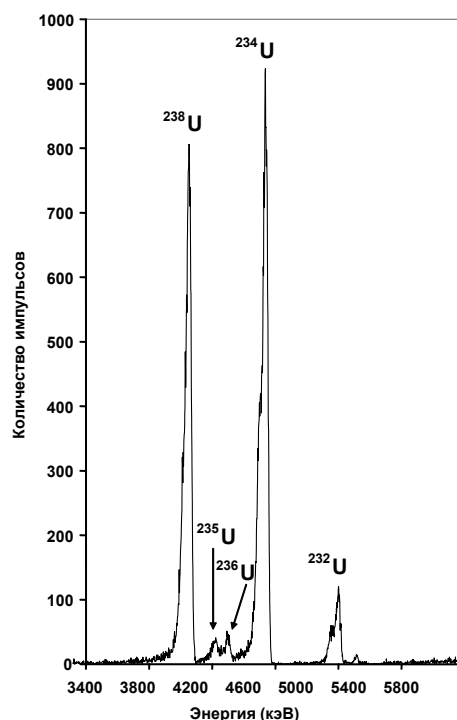


Рис. 1. Альфа-спектр урана, выделенного из озонённого фильтра. Прокачка $157\,000\text{ м}^3$ приземного слоя атмосферного воздуха в зоне наблюдения предприятия ядерного топливного цикла. Время измерения 4 суток

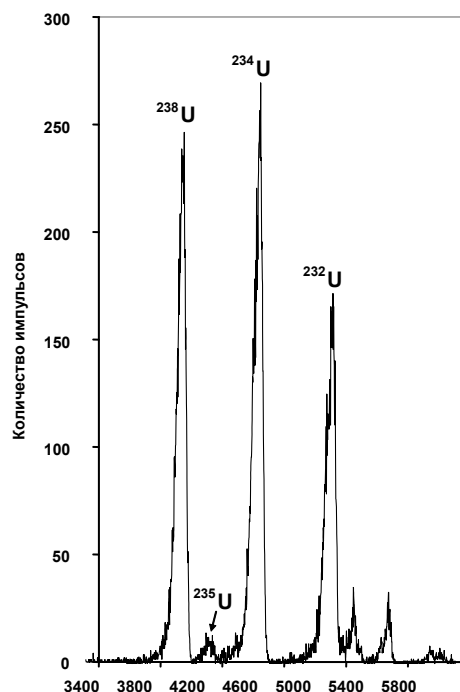


Рис. 2. Альфа-спектр урана, выделенного из озоненного фильтра. Прокачка $207\,000\text{ м}^3$ приземного слоя атмосферного воздуха за пределами зоны наблюдения предприятия ядерного топливного цикла. Время измерения 15 суток

Таблица 2

Содержание изотопов урана в приземном слое атмосферного воздуха

Место пробоотбора	Концентрация радионуклида, Бк/м ³			
	²³⁴ U	²³⁵ U	²³⁶ U	²³⁸ U
В зоне наблюдения предприятия ядерного топливного цикла	$(8,2 \pm 0,7) \times 10^{-6}$	$(2,5 \pm 0,7) \times 10^{-7}$	$(2,5 \pm 0,7) \times 10^{-7}$	$(7,2 \pm 0,7) \times 10^{-6}$
За пределами зоны наблюдения предприятия ядерного топливного цикла	$(1,1 \pm 0,1) \times 10^{-6}$	$(5,5 \pm 0,8) \times 10^{-8}$	–	$(9,3 \pm 0,8) \times 10^{-7}$

Таблица 3

Изотопные отношения изотопов урана (г/г) в приземном слое атмосферного воздуха

Место пробоотбора	²³⁴ U/ ²³⁸ U	²³⁵ U/ ²³⁸ U	²³⁶ U/ ²³⁸ U
В зоне наблюдения предприятия ядерного топливного цикла	$(6,0 \pm 0,1) \times 10^{-5}$	$(5,3 \pm 0,2) \times 10^{-3}$	$(1,8 \pm 0,1) \times 10^{-4}$
За пределами зоны наблюдения предприятия ядерного топливного цикла	$(6,0 \pm 0,1) \times 10^{-5}$	$(7,7 \pm 0,4) \times 10^{-3}$	–

Анализ альфа-спектра, приведенного на рисунке 1, указывает на присутствие ²³⁶U в приземном слое атмосферного воздуха, отобранного в зоне наблюдения предприятия ядерного топливного цикла. За пределами зоны наблюдения в пробе приземного слоя атмосферного воздуха альфа-пики ²³⁶U с энергией 4494 кэВ и 4445 кэВ отсутствуют (см. рис. 2). Обработка полученных альфа-спектров с помощью программы Genie 2000. 3.1. Alpha Analysis Software позволила рассчитать концентрации изотопов ²³⁴U, ²³⁵U, ²³⁶U и ²³⁸U в указанных точках пробоотбора (табл. 2). Изотопные отношения идентифицированных изотопов урана приведены в таблице 3.

Поскольку естественное содержание ²³⁸U и ²³⁵U в приземном слое атмосферного воздуха находится в интервале $1 \times 10^{-7} - 1 \times 10^{-5}$ Бк/м³ и $5 \times 10^{-8} - 1,8 \times 10^{-6}$ Бк/м³ соответственно [7], приведенные в таблице 2 концентрации ²³⁸U и ²³⁵U указывают на глобальное (фоновое) содержание этих радионуклидов в измеренных пробах воздуха. Однако присутствие альфа-линии ²³⁶U в спектре на рисунке 1, позволяет надежно идентифицировать уран техногенного происхождения в приземном слое атмосферного воздуха, отобранного в зоне наблюдения предприятия ядерного топливного цикла. Величина изотопного отношения ²³⁶U/²³⁸U в этой пробе воздуха (см. табл. 3) оказалась наиболее близкой к значению $1,4 \times 10^{-4}$, измеренному в работе [5] для донных отложений р. Аштабула, загрязненных выбросами обеднённого и обогащенного урана.

Оценка предела обнаружения ²³⁶U в воздухе была проведена на основе статистического подхода для малого числа событий для области энергий 4,44 – 4,49 мэВ на рисунке 2. Предел обнаружения ²³⁶U в приземном слое атмосферного воздуха с использованием радиохимического выделения и альфа-спектрометрии составил 5×10^{-9} Бк/м³ (2 нг/м³) при прокачке не менее 200 000 м³.

Литература

- Steiner, P. Natural and anthropogenic ²³⁶U in environmental samples / P. Steiner [et al.] // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research. – 2008. – В 266. – Р. 2246–2250.
- Quinto, F. The first use of ²³⁶U in the general environment and near a shutdown nuclear power plant / F. Quinto [et al.] // Applied Radiation and Isotopes. – 2009. – В 67. – Р. 1775–1780.
- Mironov, V.P. Determination of irradiated reactor uranium in soil samples in Belarus using ²³⁶U as irradiated uranium tracer / V.P. Mironov [et al.] // Journal of Environmental Monitoring – 2002. – В 4. – Р. 997–1002.
- Hotchkis, M.A.C. Measurement of ²³⁶U in environmental media / M.A.C. Hotchkis [et al.] // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research. – 2000. – В 172. – Р. 659–665.
- Ketterer, M.E. Anthropogenic ²³⁶U at Rocky Flats, Ashtabula river harbor, and Mersey estuary: three case studies by sector inductively coupled plasma mass spectrometry / M.E. Ketterer [et al.] // Journal of Environmental Radioactivity. – 2003. – В 67. – Р. 191–206.
- Belew, W.L. Detection of uranium enrichment activities using environmental monitoring techniques / W.L. Belew [et al.] // K/NSP-129 (Oak Ridge, Tennessee, USA). – Vienna. March 30. – 1993. – Р. 1–9.
- Jia, G. Concentration and characteristics of depleted uranium in water, air and biological samples collected in Serbia and Montenegro / G. Jia [et al.] // Applied Radiation and Isotopes. – 2005. – В 63. – Р. 381–399.
- Авениров, А.К. Альфа-спектрометр для многосуточных измерений изотопов урана, плутония и америция, выделенных из проб окружающей среды / А.К. Авениров [и др.] // Радиация и экосистемы: материалы международной научной конференции / под общ. ред. Е.Ф. Конопки. – Гомель: РНИУП «Институт радиологии», 2008. – С. 135–138.
- Varga, Z. Detection of previous neutron irradiation and reprocessing of uranium materials for nuclear forensic purposes / Z. Varga [et al.] // Applied Radiation and Isotopes. – 2009. – В 67. – Р. 516–522.
- Хольнов, Ю.В. Оцененные значения ядерно-физических характеристик радиоактивных нуклидов, применяемых в народном хозяйстве / Ю.В. Хольнов [и др.]. – М.: Энергоиздат, 1982. – С. 82, 140, 158.

11. Хольнов, Ю.В. Оцененные значения ядерно-физических характеристик радиоактивных нуклидов, применя-

емых в технике и медицине / Ю.В. Хольнов [и др.]. – М.: Энергоатомиздат, 1984. – С. 105.

A.D. Gedeonov¹, I.V. Kolchin^{1,2}, A.K. Avenirov²

An Experimental Investigation of the ^{236}U Detection Limit in the Surface Air Using Radiochemical Separation and Alpha-spectrometry

¹ Research-Industrial Association V.G. Khlopin Radium Institute, Saint-Petersburg

² Saint-Petersburg State University, Saint-Petersburg

Abstract. Due to nuclear weapon testing, nuclear reactor accidents, uranium mining and nuclear fuel reprocessing, additional uranium has been introduced into the environment. ^{236}U isotope is produced from ^{235}U by capture of a thermal neutron and it can be used as an indicator for artificial uranium in the environment. In this paper the sensitive method for ^{236}U determination in the surface air is described. This method includes a total dissolution of the air dust in a mixture of mineral acids, uranium concentration and purification by anion-exchange chromatography. Long time measurements of the separated uranium fraction are made with the use of alpha-spectrometer based on PIPS-detector. The lower limit of detection for ^{236}U in the surface air is determined as $5 \cdot 10^{-9} \text{ Bq/m}^3$ (2 ng/m^3).

Key words: ^{236}U , surface air, anion-exchange chromatography, alpha-spectrometry.

А.Д. Гедеонов
Тел. (факс) (812) 346-11-02
E-mail: gedeonov@pop3.rcm.ru

Поступила: 05.11.2011 г.

Уважаемые читатели! В т. 4, № 3 за 2011 г. были допущены технические ошибки.

Таблицу 5 на странице 11 и таблицу 8 на странице 41 следует читать следующим образом:

Таблица 5

Максимальные удельные активности ^{134}Cs в молоке, овощах, рыбе и морепродуктах и соответствующие им дозы внутреннего облучения за счет «фукусимских» радиоактивных выпадений для различных рационов питания

Территория	Максимальная удельная активность ^{134}Cs , Бк/кг			Максимальная оценка годовой дозы внутреннего облучения, мкЗв в год	
	Молоко	Овощи	Рыба и морепродукты	Рацион 1	Рацион 2
Приморский край	1,2	0	5,7	34,0	8,0
Остров Сахалин	1,0	1,1	4,7	19,0	10,0
Остров Кунашир	2,5	1,8	4,7	24,0	19,0

Таблица 8

Результаты консервативной оценки максимальных доз внутреннего облучения взрослых жителей, проживающих в обследованных НП юго-восточной части Сахалинской области

Населенный пункт	СГЭДвнутр, мЗв/год
Отрада	0,089
Головнино	0,04
Южно-Курильск	0,03
Малокурильское	0,04
Крабозаводское	0,03