

Абдушукор ГОФУРОВ,

Базовый докторант Национального университета Узбекистана

E-mail: syntagma94@gmail.com.

Джамшид КАЮМОВ,

Базовый докторант Ташкентского государственного технического университета

Зулайхо СМАНОВА,

Национальный университет Узбекистана, профессор в.б., доктор химических наук

E-mail: smanova.chem@mail.ru

На основе рецензии д.б.н., проф НУУз Абдуллаева М.М.

DEVELOPMENT OF A METHODOLOGY FOR SIMPLIFIED SOIL ANALYSIS FOR THE CONTENT OF STRONTIUM-90 RADIONUCLIDE

Annotation

Determination of strontium-90 content in soil samples by performing calculations through its daughter radionuclide yttrium-90 is the most accurate method, but also requires a lot of time for analysis. A technique is proposed to simplify the analysis of soils for the content of strontium-90 radionuclide. The proposed technique is a sequence of actions aimed at the isolation of strontium and further beta spectrometry of beta particles isolated by strontium itself. The use of a strontium carrier during deposition makes it possible to determine the activity of strontium in samples where it is contained in small quantities. The proposed method measured the activity of Sr-90 radionuclide in soil samples taken near Lake Arnasoy. The average activity of strontium-90 radionuclide in the samples was 2 Bq/kg.

Key words: Sr-90 radionuclide, Lake Arnasai, beta spectrometry, deposition, specific activity, carrier, filtration, yttrium-90

РАЗРАБОТКА МЕТОДИКИ ДЛЯ УПРОЩЕННОГО АНАЛИЗА ПОЧВ НА СОДЕРЖАНИЕ РАДИОНУКЛИДА СТРОНЦИЯ-90

Аннотация

Определение содержания стронция-90 в образцах почвы путем проведения расчетов через его дочерний радионуклид иттрий-90 является наиболее точным методом, но также требует много времени для проведения анализа. Предложена методика для упрощения анализа почв на содержание радионуклида стронций-90. Предложенная методика представляет собой последовательность действий, направленные на выделение стронция и дальнейшую бета-спектрометрию бета частиц, выделяемых самим стронцием. Применение носителя стронция при осаждении позволяет определять активность стронция в образцах, где он содержится в малых количествах. Предложенной методикой была измерена активность радионуклида Sr-90 в образцах почвы, взятых возле озера Арнасой. Средняя активность радионуклида стронций-90 в образцах составила 2 Бк/кг.

Ключевые слова: радионуклид Sr-90, озеро Арнасой, бета-спектрометрия, осаждение, удельная активность, носитель, фильтрование, иттрий-90

TUPROQ TARKIBIDAGI STRONSIY-90 RADIONUKLDI MIQDORINI ANIQLASHNING SODDALASHTIRILGAN USULINI ISHLAB CHIQISH

Аннотация

Tuproq namunalari tarkibidagi stronsiy-90 izotopi miqdorini ushbu radionuklid parchalanganida hosil bo'luvchi ittriy-90 radionuklidi miqdori bo'yicha aniqlash stronsiy-90 miqdorini aniqlashning eng aniq usullaridan biri bo'lishi bilan bir qatorda analiz o'tkazish uchun ko'p vaqt talab qiladi. Shu sababli stronsiy-90 radionuklidi miqdorini aniqlashning soddalashtirilgan usuli taklif etildi. Taklif etilgan usul o'zida namunadagi stronsiy-90 ni cho'ktirish orqali ajratib olish va ajratib olingan stronsiydan ajralib chiqayotgan beta zarrachalar miqdorini beta-spektrometr yordamida o'lchash bosqichlarini mujassamlashtiradi. Stronsiy-90 ni cho'ktirishda tashuvchining qo'llanilishi bu usulni tarkibida juda kam miqdorda stronsiy tutgan namunalarni analiz qilish uchun qo'llash imkonini beradi. Taklif etilgan usul yordamida Arnasoy ko'li atrofidan olingan tuproq namunalariidagi stronsiy-90 izotopi miqdori o'lchandi. Tuproq namunalariidagi stronsiy-90 izotopining o'rtacha aktivligi 2 Bk/kg ni tashkil etishi aniqlandi.

Kalit so'zlar: stronsiy-90 radionuklidi, Arnasoy ko'li, beta-spektrometriya, cho'ktirish, maksimal aktivlik, tashuvchi, filtrlash, ittriy-90.

Введение. В ближайшие 20 лет планируется возведение АЭС у озера Арнасай, расположенного в Джизакской области Республики Узбекистан. Возведение АЭС снизит потребление таких природных ресурсов как уголь и природный газ, за счет использования уранового топлива. Использование изотопов урана для нагревания воды уменьшает количество углекислого газа, выделяемого в атмосферу. Но при неправильной эксплуатации АЭС, при повреждении защитных слоев ядерного реактора, при неправильной утилизации отработанного уранового топлива могут возникнуть проблемы. Серьезные повреждения защитных слоев реактора, а также критические ошибки, допущенные в эксплуатации АЭС и утилизации отработанного ядерного топлива можно легко заметить. Но для определения мельчайших повреждений защитных слоев реактора и ошибок, допущенных при эксплуатации АЭС и утилизации отработанного ядерного топлива требуется постоянный мониторинг окружающей среды на содержание различных радиоактивных изотопов. Чаще всего проверяется содержание радионуклидов Cs-137 и Sr-90, так как при делении ядер урана данные изотопы образуются в большом количестве по сравнению с другими. Если до постройки АЭС, предварительно измерить содержание изотопа Sr-90 в объектах окружающей среды (вода и почва), то затем можно сравнить эти начальные значения с новыми, и в случае, когда они окажутся разными (новые значения больше чем начальные) можно судить о какой-либо проблеме. Как говорил наш президент Шавкат Миромонович Мирзиёев: "Нас беспокоит ухудшение экологической обстановки в нашем регионе и во всем мире" нам нужно

разрабатывать новые методики для выявления возникающих экологических проблем для своевременной борьбы с ними [1].

Литературный обзор. Распространенность различных стабильных изотопов стронция приведено в таблице.

Таблица 1.

Распространённость стабильных изотопов стронция в природе.

В природе встречаются четыре стабильных изотопов стронция				
Изотоп	^{84}Sr	^{86}Sr	^{87}Sr	^{88}Sr
Процентное содержание	0,56 %	9,86 %	7,02 %	82,56 %

^{90}Sr является одним из важных антропогенных радионуклидов с долгосрочным периодом полураспада. Период его полураспада равен 28,8 годам. Он испускает бета-излучение с максимальной энергией 546 кэВ и превращается в ^{90}Y , который распадается с периодом полураспада 64,1 час в стабильный цирконий ^{90}Zr , испуская бета-излучение с максимальной энергией 2,28 МэВ:



Являясь химическим аналогом кальция, стронций может накапливаться в костных тканях человека. Высокая энергия распада изотопа ^{90}Sr , а также его дочернего изотопа ^{90}Y , придает им проявлять значительное радиологическое воздействие на организм человека [2].

Исследователи Udo Ch. Gerstmann и Vlasta Tschöpp из GSF (Институт радиационной защиты, расположенный в Ingolstaedter Landstrasse-1, D-85764 Neuherberg, Германия) модифицировали ранее существовавшую методику определения ^{90}Sr основанную на экстракции ^{90}Y , являющегося дочерним радионуклидом стронция с помощью ТБФ. Данный метод десятилетиями применялся ко многим типам проб, включая аэрозольный фильтр, кости, плоть, трава, молоко, отложения, почва и специи. Сообщенное химическое восстановления (выделение) иттрия при экстракции ТБФ обычно были высокими [3].

Lawrence Jassin, E. Philips Horwitz и Daniel McAlister предложили некоторые методы определения радиоактивных изотопов стронция:

1. Быстрый радиохимический метод определения общего радиостронция (Sr-90) в воде из окружающей среды. Это тест, которого можно проводить, подразумевая отсутствие изотопа ^{89}Sr в исследуемом образце.

2. Eichrom SRW01 – Стронций 89, 90 в воде. «После прорастания иттрия в течении 1 недели»

3. Быстрое разделение актинидов и радиостронция в образцах растительности. Если требуется дифференциация 89 / 90 Sr, то есть метод быстрого дифференцирования методом подсчета Черенковского свечения для более быстрого определения ^{89}Sr и ^{90}Sr . ^{89}Sr можно измерить непосредственно по счетчику Черенкова, используя методику, пользуется преимуществом высокой эффективности счета Черенковского эффекта ^{89}Sr по сравнению с ^{90}Sr [4].

Андрющенко А.Ю., Беликов К.Н. и Шевцов Н.И. при помощи модельных растворов с содержанием стабильного изотопа стронция 10 мкг/мл изучили сорбционные свойства Na-мароденита и гидроксилпатита. Исследована селективность сорбентов в присутствии избытка Na, K, Cs, Ba, Mg, Sr, Co, Y, установлены оптимальные параметры сорбции, позволяющие количественно извлекать стронций из растворов. В оптимальных условиях изучена сорбция радионуклида стронция-90 из растворов с активностью от 2 до 200±10% Бк в 100 мл [5].

Takeshi Ohno, Mitsumi Hirono и другие исследователи разработали методику определения содержания радионуклида стронций-90 в образцах с использованием тройного квадрупольного масс спектрометра с индуктивно связанной плазмой. Чувствительность данной методики составляет $5 \cdot 10^{-12}$ а предел обнаружения Sr-90 в 1 грамме пробы составляет 0,6 Бк/кг. К применению данной методики мешает наличие изотопов Zr-90, который можно устранить проведя реакцию с кислородом. А применение тройного квадрупольного МС-ИСП необходимо для определения Sr-90 при присутствии Sr-88 [6].

J.Feuerstein, S.F.Boulyga и другими была предложена схожая методика определения содержания радионуклида стронций-90 с использованием МС-ИСП с динамической реакционной ячейкой. В этой методике использовалась специфическая смола, которая отделяет радионуклиды Sr-90 от Zr-90, благодаря чему была достигнута высокая точность измерения в образцах. Также в динамической ячейке проводилась реакция с кислородом для достижения более точных результатов. Предел обнаружения по данной методике составил 4 мкг/грамм или 0,02 Бк/грамм в незагрязненных образцах почвы [7].

Существует метод определения содержания радионуклида Sr-90 в образцах почвы, воды и молока с использованием ускорительной масс-спектрометрии, которая не находила применение из-за отсутствия корректных рекомендаций по подготовке образцов к анализу [8].

Для ускорения определения содержания радионуклида Sr-90 в природных образцах исследователями Turkington G., Gamage K. и другими было предложено смоделировать особый детектор который подсчитывал бы электроны с энергией 0,546 МэВ падающие на него с образца [9].

Кроме этого описана практическая процедура определения Sr-90 и Sr-89 в смесях с использованием последовательного подсчета по Черенкову и жидкостной сцинтилляции. Эти два нуклида испускают только бета частицы. Их выделяют из Y-90 и затем, сначала подсчитывают для излучения Sr-89, который распадается выделяя бета частицы с энергией 1463 кэВ, затем добавляется сцинтилляционный раствор и ведется расчет для Sr-90 который распадается выделяя бета частицы энергией 546 кэВ [10].

Методология исследования. Определение содержания Sr-90 требует продолжительного анализа. При использовании базовых методов анализа, которые базируются на определении содержания радионуклида Sr-90 через его дочерний радионуклид Иттрий-90, для проведения анализа требуется около 14 дней. Существуют и современные методы анализа образцов на содержание радионуклида Sr-90, которые допускают получение результатов в

относительно короткие сроки, но для их проведения требуется специальное оборудование. Учитывая зависимость различных методов анализа от конкретного оборудования большинство научных институтов разрабатывают свои методики для определения содержания радионуклида Sr-90 в образцах почвы исходя от наличия тех или иных приборов в своих лабораториях. Нами была проведена работа по разработке более быстрого способа определения содержания радионуклида Sr-90 исходя от оборудования, присутствующего в лабораториях заведений производящих совместную работу [11].

Отбор проб почвы производились согласно ГОСТ Р 54041-2010 Почвы. Метод определения стронция-90.

Из проб почвы массой 3 кг методом квартования отбирали по 2 образцов массой по 100 грамм. Одна из них использовалась для приготовления счетного образца по методике О'з О'У 0794:2019 ФР.1.40.2018.30080 15.11.2019 г (Методика измерений удельной активности цезия-137 и стронция-90 с применением радиохимического концентрирования в пробах пищевой продукции, почвы, других объектов окружающей среды и биопробах с помощью спектрометра-радиометра гамма-, бета- и альфа- излучения МКГБ-01 «РАДЭК»). Вторая из них обрабатывалась следующим образом:

1. Образец почвы массой 100 грамм промывали 2 Н раствором HCl объемом 500 мл. В полученный раствор добавляли 0,1 грамм соли Sr(NO₃)₂. К полученному раствору приливали 1 М раствор аммиака до достижения pH=9.

2. Производилась фильтрация осадка. В полученный фильтрат добавляли (NH₄)₂CO₃ или Na₂CO₃ для осаждения щелочноземельных элементов.

3. Для исключения ошибок из-за ионов бария, полученный осадок растворяли в 2 Н уксусной кислоте и затем добавлением 0,5 %-ного раствора K₂Cr₂O₇ осаждался барий.

4. Для исключения ошибок из-за ионов кальция в полученный раствор приливали 0,1 М-ный раствор (NH₄)₂SO₄. Затем отделяли выпавший осадок фильтрованием.

5. В полученный раствор добавляли 10 % раствор Na₂CO₃ для осаждения стронция. Полученный осадок отделяли фильтрованием далее высушивали его.

Для измерения бета-активности образцов использовали Спектрометр-радиометр МКГБ-01 оснащенный блоком детектирования бета-излучения БДЕБ-60. Перед измерением активности бета активности обработанных проб производилась подготовка радиометра к работе согласно правилам эксплуатации данного прибора и измерялась фоновая бета активность помещения для получения более точных результатов воспользовавшись встроенной функцией программы «ASW» которая позволяют проводить различные расчеты с помощью спектрометра-радиометра МКГБ-01 «РАДЭК». Как стандартный образец проверки блока детектирования бета-излучения использовался источник ⁹⁰Sr-⁹⁰Y из комплекта градуировочных источников прилагающегося к прибору.

После данных этапов обработки активность полученного счетного образца измерялась в блоке детектирования бета-излучения БДЕБ-60 который оснащен с пластмассовым сцинтиллятором Ø60x12 мм Спектрометра-радиометра МКГБ-01 в течении 1 часа. Активность в величине Вq/kg получали путем использования программы «ASW» которая прилагалась к спектрометру-радиометру и способна рассчитывать активность в величине Вq/kg при введении массы самого образца.

Анализ и результаты. Проведя анализ почв возле озера Арнасай мы получили следующие результаты:

Таблица 2.

Активность радионуклида стронций-90 в образцах почвы

№ пробы	Удельная активность радионуклида Sr-90	
	Измеренная по методика О'з О'У 0794:2019 ФР.1.40.2018.30080.	Измеренная после подготовки счетных образцов по предложенной нами методике
1	2,2 Бк/кг	2,0 Бк/кг
2	2,3 Бк/кг	2,2 Бк/кг
3	2,1 Бк/кг	1,9 Бк/кг
4	1,7 Бк/кг	1,5 Бк/кг
5	1,9 Бк/кг	1,7 Бк/кг

Содержание стронция в почве возле места постройки АЭС не превышает нормы, установленные в СанПиН № 0366-19 а также в НРБ-2006. Полученные результаты можно использовать как эталонные для сравнения с дальнейшими результатами.

Точность результатов, полученные при обработке проб предложенным нам способом было равно 90% по сравнению с методикой О'з О'У 0794:2019 ФР.1.40.2018.30080.

Вывод. Измерена удельная активность радионуклида ⁹⁰Sr в образцах почвы, взятых возле озера Арнасай. Установлено, что удельная активность радионуклида ⁹⁰Sr в образцах почвы, взятых возле озера Арнасай не превышает установленную в НРБ-2006 предельную удельную активность для данного радионуклида в помещениях или на рабочем месте.

Разработан более упрощенный способ определения содержания радионуклида стронция-90 в образцах почвы. Недостаток разработанного упрощенного метода в том, что он уступает по своей точности измерения содержания ⁹⁰Sr в образцах почвы методу предложенному компанией «РАДЭК». Его преимуществом является относительно короткое время затрачиваемое на подготовку счетных образцов для последующего выполнения измерений.

ЛИТЕРАТУРА

1. Yangi O'zbekistonda erkin va farovon yashaylik. (O'zbekiston Respublikasi Prezidenti Shavkat Mirziyoyevning Oliy Majlisga Murojaatnomasi hamda O'zbekiston Yoshlari forumida so'zlagan nutqidan iqtiboslar). Nashriyot uyi tasvir. 23.02.2017. 28 – bet.
2. Полуэктов Н.С., Мищенко В.Т., Кононенко Л.И., Бельтюкова С.В. Аналитическая химия стронция. –Москва.: Издательство «НАУКА», 1978. –7 с.
3. Udo Ch Gerstmann., Vlasta Tschöpp. Determination of ⁹⁰Sr/⁹⁰Y in wheat grains, soil, and deposition samples by TBP extraction and Cerenkov counting // Radiocarbon. Arizona, 2006. – Vol 48 – №2, Pages 197-204

4. Terence O'Brien, Lawrence Jassin, E. Philips Horwitz, Daniel McAlister. The Rapid Determination of Strontium-89 and Strontium-90 in Environmental Samples. // MARC IX: Conference. – Kailua-Kona, 2012 – P. 1-95.
5. Андриященко А.Ю., Беликов К.Н., Шевцов Н.И. Применение Na-морденита и гидроксилалпатита в сорбционно-сцинтиляционном определении Sr-90 // Методы объекты химического анализа. – Киев, 2011. – том 6, – № 3. С 143-148.
6. Takeshi Ohno, Mitsumi Hirono, Shinichiro Kakuta, Shuhei Sakata. Determination of strontium 90 in environmental samples by triple quadrupole ICP-MS and its application to Fukushima soil samples // Journal of Analytical Atom Spectroscopy. United Kingdom 2018 – Volume 33. Issue 6, P 1081-1085.
7. J.Feuerstein, S.F.Boulyga, P.Galler, G.Stingader, T.Prohaska. Determination of (90)Sr in soil samples using inductively coupled plasma mass spectrometry equipped with dynamic reaction cell (ICP-DRC-MS) // Journal of Environmental Radioactivity. 2008 Nov;99(11):1764-9. doi: 10.1016/j.jenvrad.2008.07.002. Epub 2008 Aug 28. PMID: 18760512.
8. Yukihiro Satou, Keisuke Sueki, Kimikazu Sasa, Tetsuya Matsunaka, Tsotomu Takahashi, Nao Shibayama, Daiki Izumu, Norikazu Kinoshita, Hiroyuki Matsuzaki. Technological developments for strontium-90 determination using AMS. // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. 15 October 2015. Volume 361. ISSN 0168-583X, <https://doi.org/10.1016/j.nimb.2015.04.032>. Pages 233-236.
9. Turkington G., Gamage K., A.A. and Graham J.. Detection of Strontium-90, a Review and the Potential for Direct In Situ Detection. In: IEEE Nuclear Science Symposium, Sydney, Australia, 10-17 Nov 2018, ISBN 978138684948 (doi: 10.1109/NSSMIC.2018.8824504)
10. Raymond B. Randolph. Determination of strontium-90 and strontium-89 by Cerenkov and liquid-scintillation counting. // The International Journal of Applied Radiation and Isotopes. Volume 26, Issue 1, 1975, Pages 9-16. ISSN 0020-708X.
11. Бахур А. Е., Мануилова Л.И., Зуев Д.М., Иванова Т.М., Трухина Т.П. Стронций-90 в почвах: радиохимические и инструментальные методы определения // Аппаратура и новости радиационных измерений. – Москва, 2003. – №1. – С. 20-28