

На правах рукописи



Мохамед Юссеф Мохамед Ханфи

**РАЗРАБОТКА МЕТОДОВ КОНТРОЛЯ ПРИРОДНЫХ
РАДИОАКТИВНЫХ ОБРАЗЦОВ НЕОДНОРОДНОГО
СОСТАВА С ОГРАНИЧЕННЫМ ОБЪЕМОМ И
МАССОЙ**

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени
кандидата технических наук

2.2.8– Методы и приборы контроля и диагностики материалов,
изделий, веществ и природной среды

Томск - 2022 г.

Работа выполнена на кафедре экспериментальной физики в ФГБОУ ВО «Уральский федеральный университет имени первого Президента России Б. Н. Ельцина», г. Екатеринбург.

Научный руководитель:

Жуковский Михаил Владимирович, доктор технических наук, профессор

Официальные оппоненты:

Клопотов Анатолий Анатольевич

доктор физико-математических наук, профессор.

ФГБОУ ВО «Томский государственный архитектурно-строительный университет», профессор кафедры прикладной механики и материаловедения

Романовский Олег Анатольевич

доктор физико-математических наук, профессор.

ФГБУН Институт оптики атмосферы им. Е.В. Зуева Сибирского отделения Российской академии наук, руководитель лаборатории дистанционного зондирования окружающей среды.

Защита диссертации состоится «19 » сентября 2022 г. в 15.00 на заседании диссертационного совета ДС.ТПУ.13 на базе ФГАОУ ВО «Национальный исследовательский Томский политехнический университет», по адресу: г. Томск, ул. Савиных, 7, ауд. 215.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке ФГАОУ ВО «Национальный исследовательский Томский политехнический университет» и на сайте: dis.tpu.ru.

Автореферат разослан «__» _____ 2022 г.

Ученый секретарь
диссертационного совета ДС.ТПУ.13,
к.т.н., доцент



Шевелева Е.А.

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность темы исследования. В природе постоянно имеют место различные процессы влияющие на образование и перенос различного рода химических веществ в том числе радиоактивных материалов. При этом радиоактивные материалы могут быть как природного, так и техногенного происхождения. Деятельность человека приводит к тому, что возникают дополнительные источники опасных веществ и новые пути их перераспределения и миграции в окружающей среде.

Человеческая деятельность, связанная с производством и испытаниями ядерного оружия, крупные аварии, например, на Чернобыльской АЭС, работой предприятий ядерного топливного цикла, включая добычу, переработку, обогащение топлива, производство, эксплуатацию реактора, хранение отработавшего топлива, переработку, и хранение отходов, приводит к образованию значительной радиоактивности и поступлению в окружающую среду искусственных радионуклидов таких как ^{137}Cs , ^{90}Sr и ^{129}I и др.

Современные технологии также могут быть причиной поступления естественных радионуклидов. Например, сжигание ископаемого топлива является основной причиной прямого выброса в атмосферу природных радионуклидов. Природные радионуклиды содержатся в материалах, используемых для строительства зданий, сооружений, дорог и других объектов населенных пунктов. В процессе добычи и переработки природного сырья, содержащего природные материалы может происходить концентрирование природных радионуклидов (technologically enhanced naturally occurred radioactive materials).

Радиационные измерения стали важным инструментом для исследователей с начала революции в естествознании на рубеже XIX и XX веков. Вильгельм Рентген, Анри Беккерель, Мария и Пьер Кюри, а также Эрнест Резерфорд разработали методы обнаружения ионизирующего излучения, за которыми последовали многие новые эксперименты и открытия в химии, физике, геологии и биологии. Развитие методов исследования радиоактивности становится все более важным в XX и XXI вв.

Существенный вклад в развитие методов исследования радиоактивности внесли российские ученые, в частности В.И. Вернадский стал основоположником радиохимии в СССР. В основанном В.И. Вернадский Радиевом институте проводились исследования поведения изотопов урана, тория и калия проводились практически во всех абиогенных компонентах наземных экосистемах, в цепочке почва-растение. А.И. Таскаев (Института биологии Коми НЦ УрО РАН) изучал миграцию тяжелых естественных радионуклидов. Он первым изучил полный изотопный состав урана, тория и радона в почвах, растениях и организмах мышевидных грызунов в районах с повышенным естественным радиационным фоном. Им разработаны и внедрены в практику радиоэкологических исследований картографо-статистические методы описания геохимических и радиационных условий. А.В. Трапезников (ИЭРиЖ УрО РАН) представил информацию о накоплении, распределении, миграции ^{90}Sr , ^{137}Cs , тяжелых металлов и других химических токсикантов в реках Иртыш и Обь, а также в их поймах в 2007-2010 годах. Кроме того, он показал закономерности миграции, накопления и

распределения ^{60}Co , ^{90}Sr , ^{137}Cs и $^{239,240}\text{Pu}$ на основных компонентах пресноводных биогеоценозов.

Особую роль в процессах перераспределения радиоактивных загрязнителей играет человеческая деятельность в зонах ее максимальной интенсивности. К таким зонам можно отнести урбанизированную среду, в которой производственная деятельность, строительство, транспортные потоки и т. д. создают уникальные условия, влияющую на все экологические и, в том числе геоэкологические процессы. Происходящие в урбанизированной среде процессы выветривания, эрозии и механического износа поверхностей инициируют каскад седиментационных процессов приводящих к образованию пылегрязевых отложений (наносов). Пылегрязевые отложения накапливаются в пониженных участках рельефа и при определенных условиях запасы таких отложений могут составлять значительную величину. Как показано в работах Селезнева и соавторов (2019, 2020) в российских городах запасы пылегрязевого осадка достигают $2,9 \text{ кг/м}^2$, в том числе $0,5\text{-}1 \text{ кг/м}^2$ составляет пылевая фракция. Актуальность изучения этого явления и контроля запасов пылегрязевого осадка обусловлена экологическими, социальными и экономическими аспектами. В частности происходит концентрированием поллютантов, накопление мусора и других отходов, загрязнение атмосферного воздуха минеральными взвешенными частицами пылевых фракций грязевого осадка. Является актуальным исследование влияние процессов современного седиментогенеза в городской среде на миграцию и накопление искусственных и природных радионуклидов. Анализ распределения природных радионуклидов по объектам урбанизированной среды в зависимости от точки их отбора, сезона образования, распределения по размерным фракциям, корреляции с другими загрязняющими элементами оценить позволяет оценить процессы перераспределения различного рода поллютантов в городских условиях, где на эти процессы влияют как природные факторы, так и антропогенная деятельность. Мониторинг радиоактивных элементов в городских отложениях является инструментом для определения физико-химических свойств как искусственных, так и естественных источников радиоактивности в окружающей среде.

Природно-техногенные объекты, такие как поверхностные отложения городской среды обладают неоднородным составом и включают фракции разного размера частиц а том числе пылевые частицы размером менее 100 мкм . Оценка доли таких частиц и их экологогеохимической роли является важной задачей исследования состояния среды. Выделение отдельных фракций в пробах объектов среды производится методами гранулометрии среди которых наиболее распространенными являются сочетание ситового анализа, декантации и фильтрации и (используются также другие методы). Особенностью гранулометрического анализа таких объектов как почва, грунты и наносы является получение гранулометрических фракций малого объема и массы. Типичная масса фракции $2\text{-}10 \text{ мкм}$, полученная из пробы массой 200 г , составляет $1\text{-}5 \text{ г}$. Радиометрический анализ проб такой малой массы и объема представляет определенную сложность. Разработка соответствующего метода контроля окружающей среды позволит существенно расширить методическую базу экологогеохимических исследований в городской среде.

Одним из простейших аналитических способов обнаружения естественных или искусственных источников излучения является контроль суммарной бета- и альфа-активности. Несмотря на то, что такой контроль не дает информации об изотопном составе образца, этот метод при соответствующей доработке может быть использован для интегральной оценки проб малой массы и объема.

Объекты исследования Образцы поверхностных пылегрязевых отложений, отобранные в жилых кварталах крупных городов России, расположенных в различных климатических и геолого-экологических зонах.

Предметом исследования являются методы определения суммарной альфа- и бета активности в образцах неоднородного состава, малой массы и объема.

Цель работы – разработка методического, технического и метрологического обеспечения контроля радиоактивности природных образцов с особым вниманием к экспериментальным методам исследования образцов малой массы и малого объема и неоднородного состава в различных размерных фракциях городских отложений крупных мегаполисов России в зависимости от климатической зоны, сезона образования отложений, геологических характеристик территории.

Основные задачи исследования:

1. Теоретическое и экспериментальное обоснование метода обнаружения альфа- и бета-радиоактивных изотопов в неоднородном образце малой массы и объема (1–10 г).

2. Разработка методик и экспериментальных установок для контроля суммарной удельной альфа- и бета-активности во фракционированных по размеру образцах природного происхождения.

3. Применение разработанных радиометрических методов контроля и химического анализа для изучения радиоактивных (уран, торий и калий) и потенциально вредных (медь, цинк и свинец) элементов в фракционированных по размеру пробах городских поверхностных отложений (ГПО) естественного происхождения в трех городах России; Екатеринбург, Ростов-на-Дону и Нижний Новгород.

4. Изучение сезонных колебаний суммарной альфа- и бета-активности, а также концентрации потенциально вредных элементов в городских поверхностных отложениях, сформированных в различных климатических и геологических условиях.

5. Выявление корреляционных взаимосвязей между радиоактивными и химическими загрязняющими факторами городских поверхностных отложений, сформированных в различных условиях.

6. Оценка доз облучения населения, связанной с природными радионуклидами в пылегрязевых отложениях.

Научная новизна диссертационной работы заключается в том, что:

1. Впервые разработан метод определения суммарной удельной бета-активности во фракционированных по размеру частиц пробах поверхностных отложений (наносов) малой массы (<5 г) с использованием сцинтилляционных детекторов. Предложена оптимальная форма анализируемого образца, геометрия его расположения относительно детектора. Обоснована методика оценки чувствительности и калибровки метода в зависимости от размерной фракции с

использованием фракционированных сыпучих материалов с известным содержанием К-40.

2. Впервые разработан метод измерения суммарной удельной альфа-активности во фракционированных по размеру пробах поверхностных отложений малой массы (<5 г) с использованием твердотельных ядерных трековых детекторов. Предложена оптимальная форма анализируемого образца, геометрия его расположения относительно многослойной упаковки трекового детектора, условия и продолжительность экспонирования. Обоснована методика оценки чувствительности и калибровки метода с использованием сыпучих материалов с известным содержанием природных радионуклидов.

3. Впервые получены данные о суммарной альфа и бета-активности городских поверхностных пылегазовых отложений по размерным фракциям для трех крупных городов России с разным климатом, расположенных в разных географических зонах.

4. Разработанные методы радиометрического анализа позволили выявить и охарактеризовать взаимосвязь радиометрических характеристик, химического и минерального состава в размерных фракциях поверхностных отложений городской среды.

5. На основе полученных данных впервые оценена эффективная доза облучения, обусловленная ингаляционным поступлением пылевой фракции современных городских поверхностных отложений, для различных сценариев поведения.

Практическая значимость работы. Работа ориентирована на обнаружение радиоактивных веществ в образцах небольшой массы, полученных после фракционирования проб городских отложений. Пробы были отобраны в ходе эколого-геохимических исследований в жилых районах трех крупных городов России: Екатеринбург, Нижний Новгород и Ростов-на-Дону. Суммарные удельные альфа- и бета-активности в различных размерных фракциях проб городских отложений являются показателем физико-химических процессов, значимых с точки зрения их влияния на здоровье человека. Наблюдение за суммарной бета-активностью позволяет также отслеживать техногенное загрязнение, в частности, такие явления, как выброс радионуклида Ru-106 и продуктов его распада, который был зарегистрирован станциями мониторинга в 2017 году. Для различных сценариев физической активности населения сделана оценка эффективной дозы за счет ингаляции пылевой фракции городских отложений.

Методы исследования. В ходе исследования экспериментальный анализ радиоактивных или химических веществ проводился в Институте промышленной экологии УрО РАН. Детектор БДПБ-01 на основе пластикового сцинтиллятора использовался для определения суммарной удельной бета-активности в фракционированных отложениях малой массы. Суммарная удельная альфа-активность в образцах с малой массой фракции (<10 г) проводилась с использованием твердотельных ядерных трековых детекторов (ТЯТД), таких как LR-115 и CR-39. Гранулометрический анализ и разделение проб городских отложений на размерные фракции проводился в лаборатории урбанизированной среды Института промышленной экологии УрО РАН с использованием ситового анализа, декантации и фильтрации. Химический анализ проводился в Химико-аналитическом центре Института промышленной экологии УрО РАН. Анализ проводился с использованием

масс-спектрометрии с индуктивно-связанной плазмой (ICP-MS) для определения содержания урана, тория и потенциально вредных элементов (ПВЭ).

Положения, выносимые на защиту:

1. Методы контроля суммарной удельной бета и альфа-активности в образцах неоднородного состава, малой массы и малого объема на основе применения сцинтилляционных детекторов бета-частиц и трековых детекторов альфа-частиц и условия инструментального контроля в достижении оптимальных метрологических параметров.

2. Суммарная удельная бета-активность поверхностных пылегрязевых отложений (наносов) в крупных городах России не превышает 2,5 Бк/г и в среднем находится в диапазоне от 0,3 до 0,9 Бк/г; суммарная удельная альфа-активность не превышает 0,47 Бк/г и в среднем находится в диапазоне от 0,06 до 0,19 Бк/г.

3. Информативный индикатор геохимической трансформации современной городской среды, в т.ч. изменений минерального состава, ассоциаций макро и микроэлементов в объектах среды по суммарной бета и суммарной альфа-активности размерных фракций поверхностных пылегрязевых отложений.

4. Оценка доз облучения при ингаляционном поступлении взвешенных частиц по суммарной бета и суммарной альфа-активности пылевых фракций поверхностных пылегрязевых отложений, а так же обоснованное заключение о незначительном их вкладе (менее 0,1 мЗв/год) в структуру облучения человека.

Личный вклад автора. Все исследования, результаты которых изложены в диссертационной работе, были проведены автором лично. Во всех совместных работах, которые выполнены в соавторстве, автор участвовал в формулировке цели и задачи исследования, в разработке методов и их применении, в проведении эксперимента, а также проводил обработку и анализ результатов. Из совместных работ включен тот материал, который принадлежит непосредственно соискателю, заимствованный материал представлен в работе ссылками.

Достоверность результатов обеспечивается использованием современных надежных подходов к проведению радиометрических измерений, реализацией системы внутреннего лабораторного контроля качества измерений, интеркалибровкой с использованием различных методов измерения, участием в программе аналитических измерений аттестованного в государственной системе химико-аналитического центра.

Апробация результатов работы.

Результаты работы были представлены на следующих конференциях: XIX Уральская молодежная научная школа геофизики, Екатеринбург: ИГФ УрО РАН, 2018; 5-я Международная конференция по радиоактивности окружающей среды, ENVIRA-2019, 8-13 сентября 2019 г., Прага, Чешская Республика, 7-я Международная молодежная научная конференция «Инновации. Физика. Технологии. ИРТ-2020 18-22 мая 2020 г., Екатеринбург, Россия; 6-я Международная молодежная научная конференция «Инновации. Физика. Технологии ИРТ-2019 20-24 мая 2019 г., Екатеринбург, Россия.

Публикации: по тематике диссертационного исследования опубликовано 11 работ, в том числе 10 статей в изданиях, индексируемых в международных базах цитирования Scopus и Web of Science.

Объем и структура диссертационной работы. Диссертация состоит из введения, четырех глав, заключения и библиографии. Общий объем диссертации 145 страниц, включая 24 рисунка и 25 таблиц. Библиография 212 наименований.

ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во **введении** обоснована актуальность темы диссертации, научная новизна и практическая значимость, а также формулируются цели работы. На основе сформулированных целей поставлены основные задачи исследований и представлены основные положения, выносимые на защиту.

Глава 1. Представлен обзор литературных данных о развитии методов контроля радиоактивности городской окружающей среды, механизмов образования отложений, пыли и твердых частиц (ТЧ), а также физических и химических процессов, которые влияют на цикл ТЧ в окружающей среде. Накопление радионуклидов в отложениях на городской поверхности зависит от их физических и химических свойств. Таким образом, радиоактивность объектов окружающей среды в городской среде отражает возможное радиоактивное загрязнение городской поверхности, а также свидетельствует о значительных процессах миграции в окружающей среде. В этой главе рассматривается загрязнение окружающей среды тяжелыми металлами (потенциально вредными элементами, ПВЭ) и показаны их источники и перенос, а также миграция в окружающей среде.

Глава 2. В главе даны характеристики обследуемых городов: Екатеринбурга, Нижнего Новгорода и Ростова-на-Дону. Даны геологические и климатические характеристики территорий, на которых расположены обследуемые города. Приводятся данные исследований, проведенных ранее ИПЭ УрО РАН, по средним запасам городских поверхностных отложений: Екатеринбург – 3,2 кг/м² (пыль 1,2 кг/м²); Нижний Новгород 2,6 кг/м² (пыль 0,57 кг/м²); Ростова-на-Дону 1,8 кг/м² (пыль 0,70 кг/м²). В ходе исследований отбор проб отложений производился в жилых районах городов. В пределах выделенной области определялась пониженная область ландшафта. Участки отбора проб в ландшафтных зонах характеризуются наличием растительного покрова, грунта, асфальта, крыш домов и склонов на водосборе. Пробы отбирались в верхнем пятисантиметровом горизонте. Масса образца 1,0–2,5 кг. Осуществлялось описание пробного участка, выбранного объекта и фотографическая документация.

Представлена методология эколого-геохимических исследований, основанная на изучении отложений пониженных участков микрорельефа. Образцы были разделены на различные фракции с использованием фильтрации и декантации, а также процессов мокрого и сухого просеивания. В исследованиях, проведенных в ИПЭ УрО РАН, определение содержания тяжелых металлов проводилось методом масс-спектрометрии с ионизацией в индуктивно связанной аргоновой плазме на масс-спектрометре ELAN 9000. Представлены данные анализ нефракционированных проб городских отложений с помощью гамма-спектрометрии.

В главе дано обоснование использования сцинтилляционных детекторов для измерений суммарной удельной бета-активности и твердотельных ядерных трековых детекторов (ТЯТД) для измерений суммарной удельной альфа-активности в пробах малой массы фракционированных образцов ГПО.

В главе дается обзор преимуществ и недостатков методов измерения суммарной альфа- и бета-активности в пробах.

Глава 3. В главе представлены разработанные аналитические методы и обоснованы теоретические и экспериментальные основы калибровки для методов, использованных для контроля суммарной удельной альфа- и бета-активности.

Для определения суммарной концентрации бета-активности бета-счетчик БДПБ-01 был откалиброван с использованием стандартного КС1 (99,8%) в виде зернистого материала (размер зерна 0,5–1 мм). Были измерены различные массы образца КС1 в диапазоне 0,3–20 г, и оценена эффективность регистрации (рис. 1).

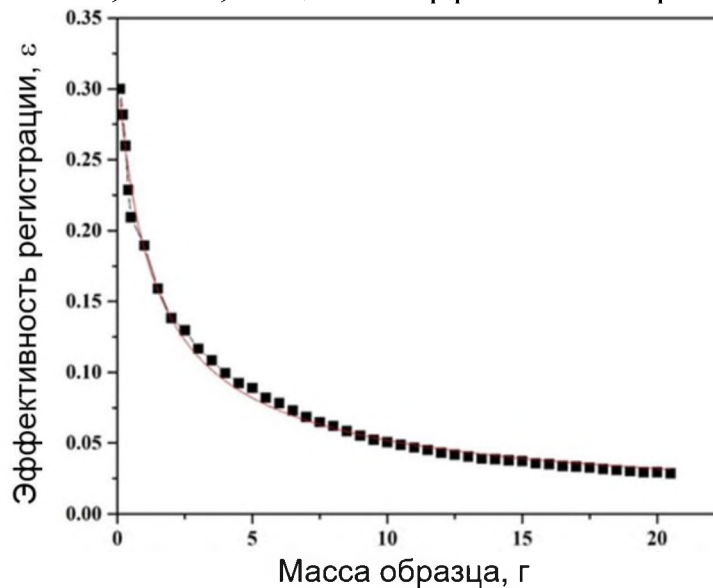


Рис. 1. Зависимость эффективности регистрации калибровочного стандарта – источника КС1 (точки – измерения образца, линия – аппроксимирующая кривая).

Предполагается, что эффективность регистрации бета-излучения зависит от размерной фракции пробы городских отложений. Для оценки этой зависимости и оценки поправочного коэффициента был проведен эксперимент со стандартным источником КС1 и эталонными образцами (ЭО). Были выбраны два контрольных образца (0,1–0,25 мм и 0,05–0,1 мм) массой > 10 г. Была измерена скорость счета для различных масс стандартного источника КС1 и контрольных образцов и оценен поправочный коэффициент (рис. 2).

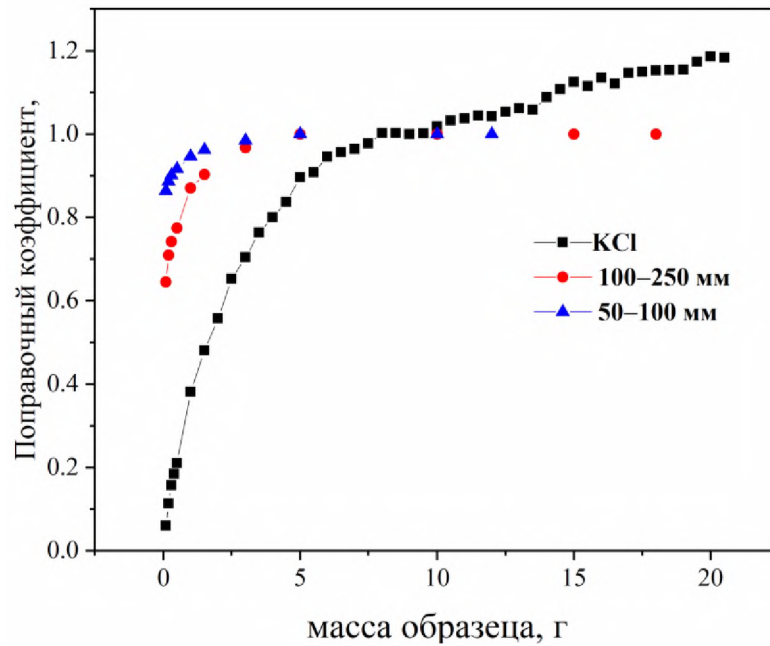


Рис. 2. Зависимость поправочного коэффициента ($I(m)/I(m = 10 \text{ г})$) от массы стандартного источника KCl и ЭО (фракции 0,05–0,1 мм и 0,1–0,25 мм).

Зависимость чувствительности от размера зерна может быть вызвана разными относительными проекционными площадями крупных и мелких зерен, в случаях, когда для анализа доступно небольшое количество материала. Коэффициенты для относительной площади проецирования в соответствии с категорией размера и количеством материала оцениваются как отношение между поправочным коэффициентом размерной доли и поправочным коэффициентом той же массы источника KCl. Зависимость поправочных коэффициентов представлена на рис.3.

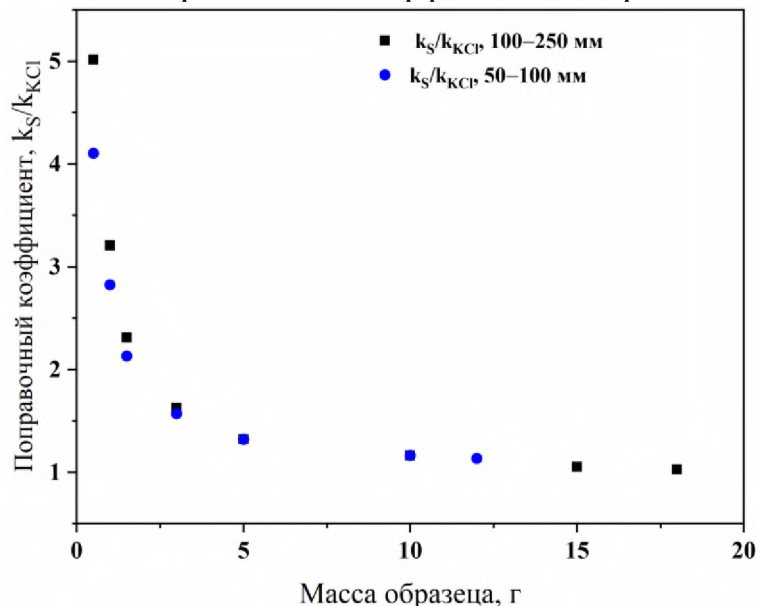


Рис.3. Зависимость поправочного коэффициента между различными размерами фракций образцов и образца KCl.

Результаты коррекции относительной скорости счета представлены на рис. 4.

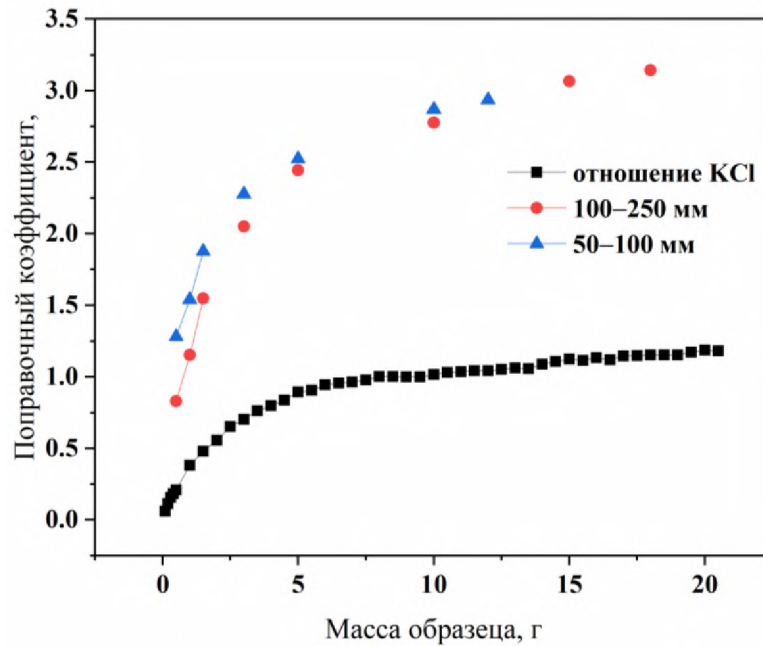


Рис. 4. Зависимость поправочного коэффициента от массы эталонного источника KCl и ЭО (с фракциями 0,05-0,1 мм и 0,1-0,25 мм) после учета размерности фракции.

Используемые для суммарной альфа радиометрии ТЯТД были откалиброваны с использованием различных источников для определения суммарной удельной активности альфа-активности при малых массах. Были выбраны два типа ТЯТД: CR-39 и LR-115 тип II. Отобранные детекторы были откалиброваны с использованием источника монацита в виде зернистого материала с известной удельной активностью тория ($190 \pm 15\%$ Бк/г) и источника ^{239}Pu в виде металлического диска (рис. 5).

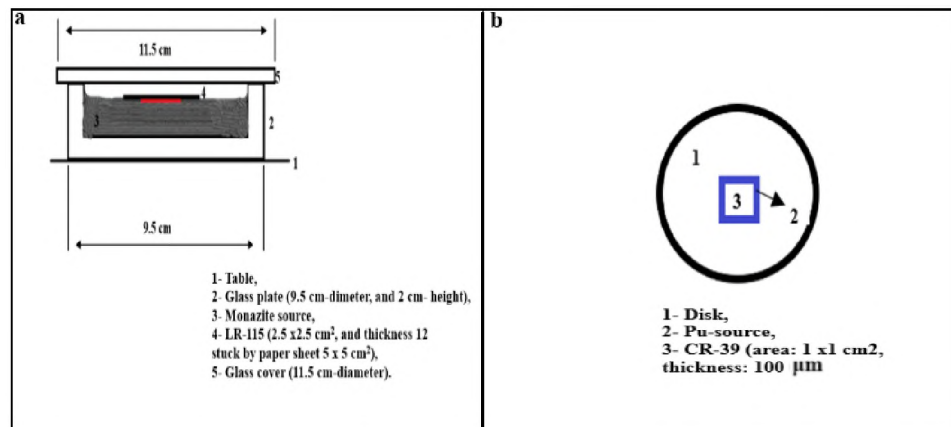


Рис. 5. Метод калибровки для LR-115 и CR-39 с использованием двух источников: (a) – источник монацита, (b) – источник плутония.

Полученные результаты калибровочного эксперимента (табл. 1) иллюстрируют различные характеристики детектирования альфа-частиц в пленках LR-115 и детекторах CR-39. Это различие подтверждается сравнением эффективности регистрации для детекторов CR-39 и пленок LR-115. Эффективность регистрации альфа-треков пленками детекторов CR-39 в 2,0 и 1,4 раза выше, чем у LR-115 для тонкого источника Pu и толстого источника монацита соответственно. Это связано с зависимостью эффективности регистрации детектора от энергии альфа-частиц, испускаемых источником.

Таблица 1. Средняя плотность альфа-треков (трек/см²) со стандартным отклонением (SD).

ТЯТД	Источник Pu	Моноцит
LR-115	993 ± 313 (100 сек)	2091 ± 392 (40 мин)
CR-39	2022 ± 145 (100 сек)	2973 ± 396 (40 мин)

Фракционированные образцы ГПО малой массы помещали в углубление диаметром 2 см, просверленное в пластиковой пластине (рис. 6).

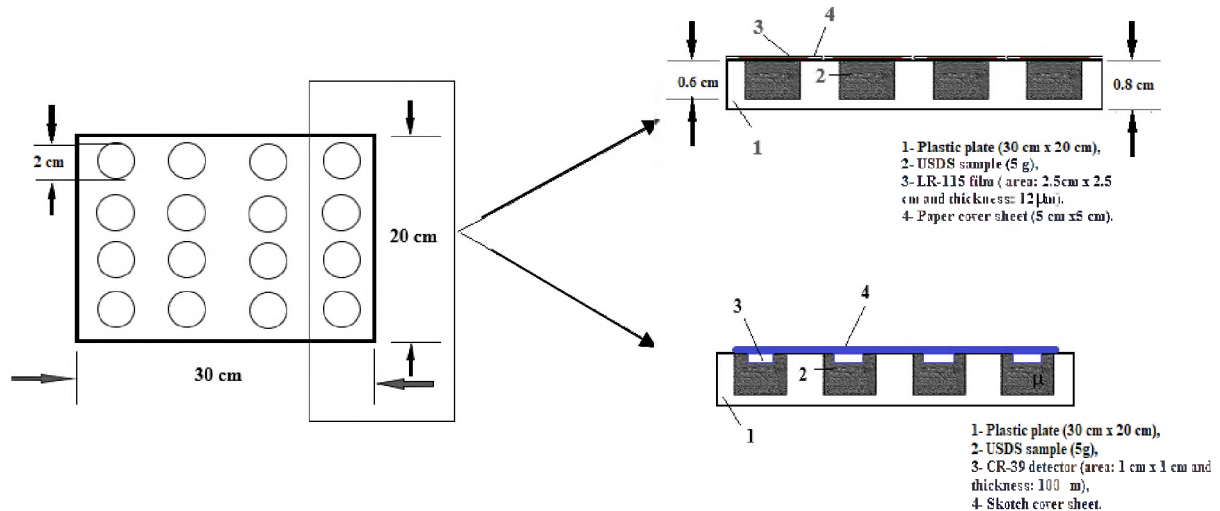


Рис. 6. Схема экспонирования проб фракций ГПО детекторами CR-39 и LR-115.

Детектор CR-39 и пленки LR-115 устанавливали над образцом и экспонировали непосредственно в контакте с фракционированным образцом в течение 3 месяцев. Пластиковые тарелки с образцами хранили в накопительной камере, вентилируемой свежим воздухом с низкой концентрацией радона. В это время альфа-частицы, испускаемые ураном (²³⁸U), торием (²³²Th) и соответствующими продуктами распада, бомбардируют пленки ТЯТД и образуют треки. После облучения экспонированные детекторы травились по стандартным процедурам процесса травления. Плотность треков пленок LR-115 и детекторов CR-39 определялась путем подсчета треков альфа-частиц с помощью искрового счетчика и оптико-электронного микроскопа. Три неэкспонированных детектора пленки LR-115 и пять детекторов CR-39 исследованы в начале экспериментов для определения общего фона. Все последующие подсчеты корректировались с учетом этого фонового значения. Общая суммарная удельная альфа-активность A_α (Бк/г) определялась с использованием уравнения

$$A_\alpha = \frac{\rho t}{k t} \quad (1)$$

В главе также описана методика расчета эффективной дозы за счет вдыхания взвешенных частиц пыли. Дозы оценивались в соответствии с респираторной моделью МАГАТЭ и МКРЗ. Расчеты эффективной дозы проводились для различных уровней физической активности при ингаляционном облучении в течение 20 лет. Эффективная доза (Зв/год) от ингаляции радионуклидов ²³⁸U, ²³²Th и ⁴⁰K в воздушной пыли оценивалась по формуле (2), (МКРЗ, 2012):

$$AED = A_i \times V \times DCF \times C \times t \quad (2)$$

где A_i – концентрация радионуклида (Бк/г), V – интенсивность дыхания ($\text{м}^3/\text{ч}$), DCF – коэффициент дозового перехода (Зв/Бк), C – средняя концентрация пыли ($\text{г}/\text{м}^3$), t – время воздействия (ч).

Особая ситуация имеет место с нерастворимыми формами ^{40}K при ингаляционном поступлении. В литературе нет данных о значениях DCF для соединений ^{40}K типа S при ингаляции. Динамика осаждения нерастворимых частиц в дыхательных путях и их последующий клиренс были рассчитаны с помощью моделей дыхательных путей, описанных в публикациях 66 и 130 ICRP. В результате были получены значения резидентного времени ^{40}K в различных частях дыхательных путей и желудочно-кишечного тракта. Эти значения резидентного времени использовались в качестве входных значений в программном обеспечении IDAC 2.1 (Andersson et al., 2017) для расчета значений DCF для соединений ^{40}K типа S.

Для оценки доз были использованы данные измерений концентрации пыли в воздухе на передвижном пункте отбора проб атмосферной пыли с использованием стратификации по высоте (Baglaeva, 2019). Среднесуточная массовая концентрация пыли в воздухе в городской среде Екатеринбурга составила $96 \text{ мкг}/\text{м}^3$.

В качестве оценки удельная активность природных радионуклидов в пыли использовались результаты измерения суммарной альфа- и бета-активности в пылевой фракции ($<100 \text{ мкм}$) с использованием разработанных методов.

Глава 4.

В главе приведены результаты измерений суммарной бета-активности для фракционированных по размеру частиц проб небольшой массы, которые были собраны в различных ландшафтных зонах (зеленая зона, дороги, проезды и тротуары) жилого района в Екатеринбурге в различные климатические сезоны. Отмечено, что суммарная удельная бета-активность пыли ($2\text{-}100 \text{ мкм}$) имеет статистически значимое различие между зимой и осенью ($p < 0,01$), в то время как зависимость удельной активности мелкого песка ($100\text{-}1000 \text{ мкм}$) от сезона была незначима ($p = 0,1$). Разница между удельной активностью зимней пыли и мелкого песка и весенней пыли и мелкого песка также значима ($p < 0,01$). Отмечается небольшое увеличение средней бета-активности в мелком песке по сравнению с пылью. Разница между удельной активностью пыли и мелкого песка для лета и осени незначима. Суммарная удельная бета-активность варьировалась для разных фракций (пыль, мелкий и крупнозернистый песок) в один и тот же сезон независимо от типа городской зоны. Зимой и весной удельные суммарные бета-активности увеличивались в следующем порядке: пыль → мелкий песок → крупный песок. Летом и осенью наблюдается обратная зависимость – за средней удельной суммарной бета-активностью, наблюдаемой в пыли, следовало понижение активности в мелком песке, и более выражено в крупном песке (рис. 7).

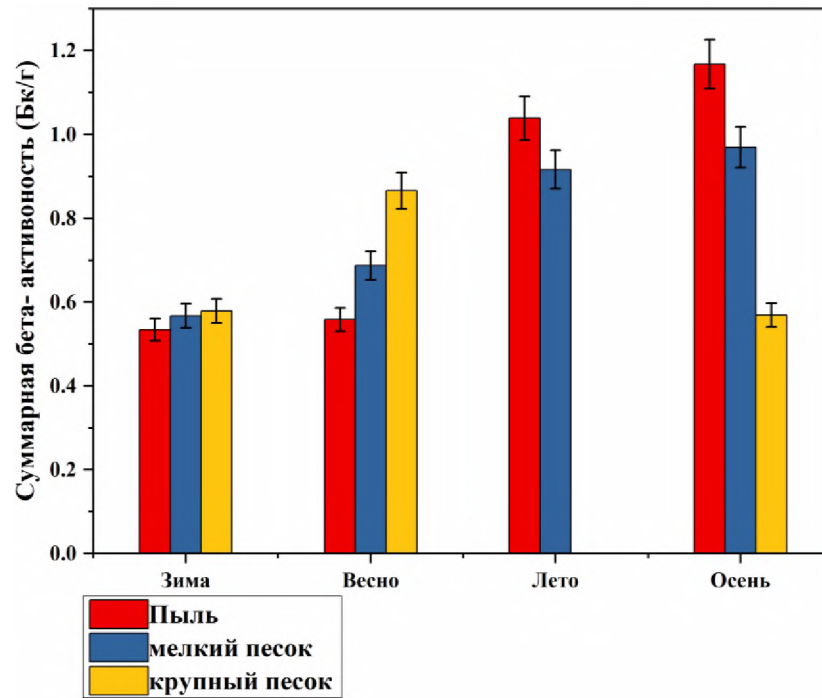


Рис. 7. Средняя суммарная удельная бета-активность ($\text{Бк}\cdot\text{г}^{-1}$) с доверительными интервалами для разных размеров фракций и сезонов независимо от городских зон.

Метод, разработанный в настоящем исследовании, можно охарактеризовать как простейшую из возможных радиоаналитических процедур: его можно рекомендовать в качестве первого шага радиоэкологического скрининга. Удельную активность не фракционированного основного образца массой 200 г можно контролировать с помощью других методов, в то время как данный метод позволяет измерять суммарные удельные бета-активности образцов с малой массой (от 0,3 до 20 г) при однородном размере зерен, полученных после фракционирования. Суммарная удельная бета-активность, полученная в данном исследовании, была сопоставлена с расчетной суммарной бета-активностью, обусловленной ураном, торием и калием в не фракционированных пробах городских отложений в Екатеринбурге. Сопоставление дало хорошую сходимость результатов.

Пассивный метод с использованием твердотельных ядерных трековых детекторов (ТЯТД) был использован для обнаружения низкоуровневой суммарной альфа-активности в фракционированных по размеру пробах городских отложений г. Екатеринбурга с низкой массой (<10 г). Была изучена корреляция между суммарной альфа-активностью и концентрациями потенциально вредных элементов (ПВЭ). Установлено, что миграция естественных радионуклидов и ПВЭ в городскую среду связана с одними и теми же экологическими процессами. Суммарная альфа-активность была изучена для различных групп образцов: снежно-грязевой пульпы (СГП) и ГПО, собираемый из городской среды в разные сезоны. Результаты представлены на рис. 8. Для представления данные с фракционированием по размеру объединены в две группы: пыль (фракции по размеру от 0,002–0,1 мм) и мелкий песок (фракции по размерам от 0,1–1 мм). Из рис. 8 видно, что суммарная удельная альфа-активность в фракции пыли, собранной с помощью СГП и ГПО, имеет более высокое значение, чем во фракции мелкого песка. Это связано с тем, что природные радионуклиды могут вносить вклад в суммарную альфа-активность отложений как за

счет естественных источников, так и из-за антропогенной деятельности. Из рис. 8 также можно увидеть, что удельные активности урана и тория в СГП и ГПО имеют более высокое значение в фракции пыли, чем в мелком песке. Пылевая фракция имеет более высокое содержание потенциально вредных элементов (Cu, Pb и Zn) по сравнению с фракцией мелкого песка. Это связано с экологическими процессами переноса и перераспределения ПВЭ в городах.

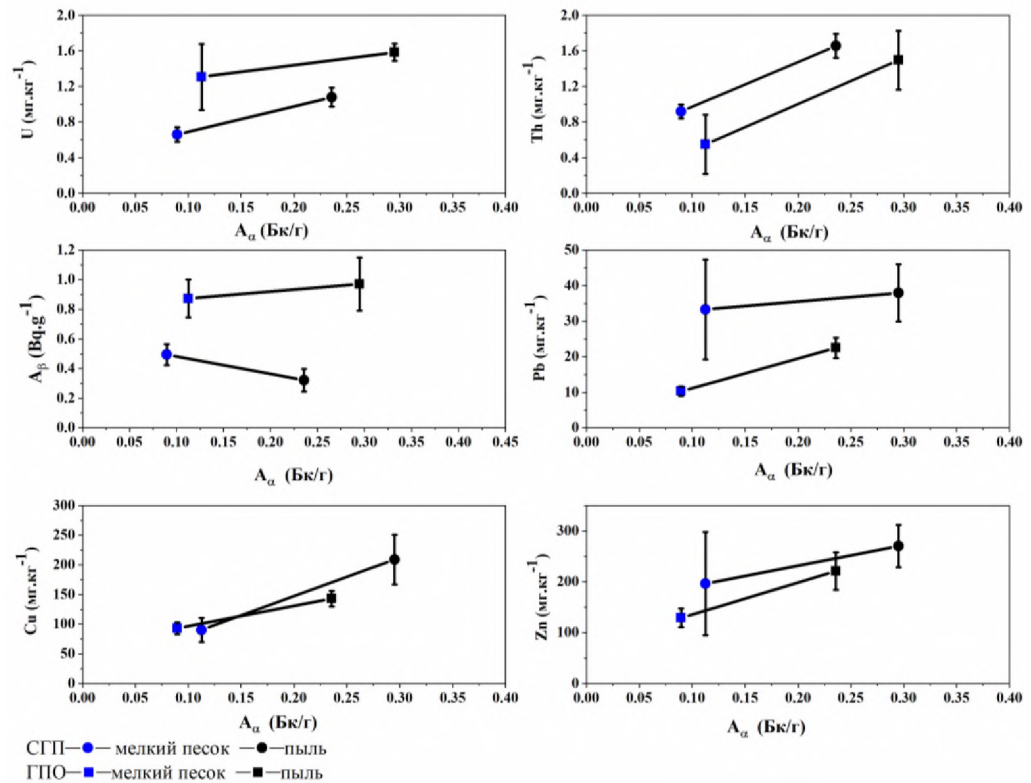


Рис. 8. Зависимость содержания U и Th (мг/кг), суммарной концентрации бета-активности, A_{β} (Бк/г) и ПВЭ (мг/кг) от суммарной концентрации альфа-активности, A_{α} (Бк/г) в СГП (зимний сезон) и ГПО (весна, лето и осень) по фракциям.

Исследование суммарной бета-активности проводилось в городах России, Екатеринбурге, Ростове-на-Дону и Нижнем Новгороде. Для городов характерен континентальный климат, хотя они расположены в разных географических зонах. Объемные городские пробы были разделены на три фракции: пыль (0,002–0,1 мм), мелкий песок (0,1–1 мм) и крупный песок (> 1 мм). Наблюдаемые результаты средней удельной бета-активности ГПО для различных городов, фракции по размеру представлены на рис. 9. Полученные результаты по суммарной удельной бета-активности зависят как от фракции размера, так и города. Самая высокая средняя суммарная удельная бета-активность была обнаружена во фракции пыли, которая примерно одинакова в трех городах 0,8–0,9 Бк/г. В фракциях мелкого и крупного песка средняя суммарная удельная бета-активность зависит от города. Полученные результаты средней удельной бета-активности среди исследованных городов значительно различаются. Самая высокая средняя суммарная удельная бета-активность была обнаружена в Екатеринбурге (0,8 и 0,6 Бк/г в мелкой и крупнозернистой фракциях соответственно), а самая низкая – в Нижнем Новгороде (0,28 и 0,44 Бк/г во

фракциях мелкого и крупного песка соответственно). В Ростове-на-Дону суммарная удельная бета-активность составила 0,34 и 0,54 Бк/г в мелкой и крупной фракциях песка, соответственно.

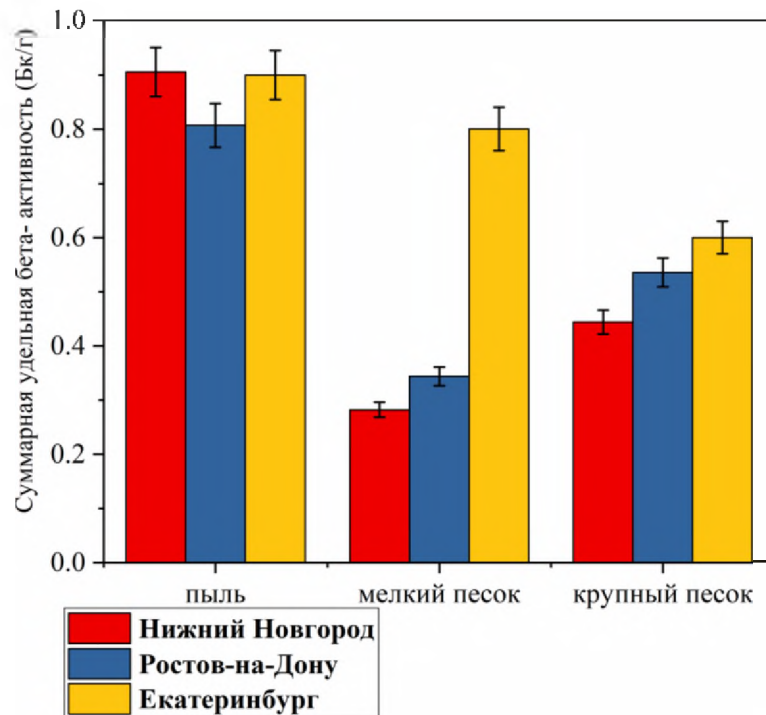


Рис. 9. Средняя общая концентрация бета-активности (Бк·г⁻¹) доверительными интервалами для различных фракций ГПО фракции в трех городах

Во всех трех городах суммарная удельная бета-активность выше во фракции пыли. Более высокая бета-активность пыли может быть связана с выщелачиванием значительного количества органических веществ в пылевую фракцию. Органические вещества во всех городах могут содержать калий-40 с одинаковой эффективностью. Несоответствие в концентрации бета-активности в крупном и мелком песке в Екатеринбурге и других городах может быть связано с различными геологическими условиями. Если в Екатеринбурге геология в основном определяется горами Урала, то в Нижнем Новгороде и Ростове-на-Дону геология связана с аллювиальными процессами рек.

В сентябре и октябре 2017 года, повышенная концентрация Ru-106 в воздухе была зафиксирована станциями мониторинга в Центральной и Восточной Европе. Предполагалось, что произошел выброс радионуклида был объекта на Южном Урале. Можно было ожидать некоторого вклада Ru-106 и его продуктов распада в бета-активность образцов ГПО из Ростова-на-Дону. В других городах ГПО отбирались перед выбросом Ru-106. По данным (Bossew et al. 2019) Ростов-на-Дону подвергся воздействию радиоактивного облака. Как видно из рис. 11, предполагаемые осадки не повлияли на общую бета-активность ГПО в Ростове-на-Дону по сравнению с другими городами.

Разработанный метод использовался для контроля суммарной удельной альфа-активности в пылевой фракции и фракциях мелкого песка, собранных в трех городах России. Статистически значимая разница наблюдалась между средними значениями суммарной удельной альфа-активности во фракции пыли и фракции мелкого песка в каждом городе. Суммарная удельная альфа-активность во фракции пыли выше, чем

во фракции мелкого песка. Это согласуется с результатами химико-минералогического анализа. Размер фракции пыли имеет более высокую концентрацию суммарной альфа-активности, чем фракция мелкого песка из-за естественного разделения основных минералов, составляющих ГПО, со следами урана и тория (полевой шпат, плагиоклаз, амфибол и др.) и незначительным содержанием урана и тория (кварц). В некоторых случаях радиоактивность ГПО связана с монацитом и цирконом. Была обнаружена хорошая корреляция (0,58) между суммарной удельной альфа-активностью и эффективным содержанием урана и тория (рис. 10). Оценка суммарной удельной альфа-активности в различных размерных фракциях ГПО является важным индикатором экологических процессов, которые имеют большое значение с точки зрения их воздействия на здоровье человека.

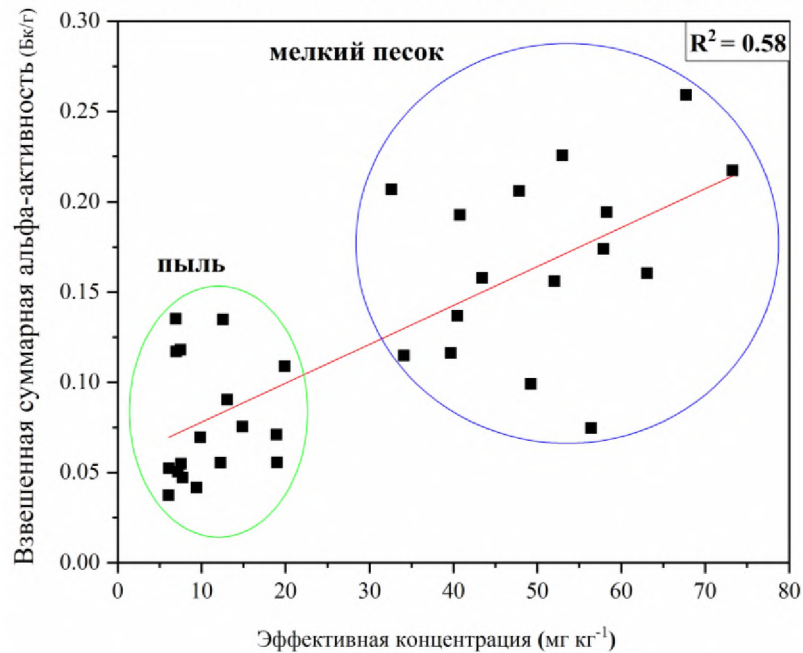


Рис 10. Корреляция между эффективным содержанием урана и тория и взвешенной суммарной альфа-активностью в фракциях пыли и мелкого песка в исследуемых городах.

Фракционирование радиоактивных элементов цепей урана и тория может быть связано с минеральным составом ГПО. Минералогические характеристики отложений зависят от естественных почв и антропогенного вклада, который существенно возрастает в городской среде. В Екатеринбурге геологические характеристики в основном определяются Уральскими горами, а в Нижнем Новгороде и Ростовском Дону геология связана с аллювиальными процессами рек. Минеральный анализ показал различный минеральный состав исследуемых фракций. Минералы, представленные в основном в образцах ГПО (с содержанием > 5%): кварц, полевой шпат, плагиоклаз, хлорит, кальцит, доломит, амфибол и слюда. Кварц вносит наибольший вклад в ГПО, чем другие обнаруженные минералы (содержание > 50%). Кварц практически не содержит радиоактивных элементов. Радиоактивные вещества цепочек распада урана и тория могут содержаться в следовых количествах в таких минералах, как полевой шпат, плагиоклаз, хлорит, кальцит и амфибол. Более высокое содержание некварцевых минералов в пылевых фракциях может быть вызвано более высокой скоростью выветривания всех этих минералов, за исключением кальцита. В то же время кварц - минерал со слабым выветриванием. Таким образом, процессы

естественного выветривания и механического воздействия обоснованно приводят к фракционированию естественной радиоактивности по размерным фракциям в материале отложений. В результате фракция пыли имеет более высокую удельную суммарную альфа-активность, чем фракция мелкого песка. Превышение радиоактивности из-за замещения кальция радием $\text{Ca}(\text{Ra})\text{CO}_3$ может происходить в кальците, что привело к увеличению суммарной удельной альфа-активности в пылевой фракции Ростова-на-Дону по сравнению с Нижним Новгородом. Помимо основных породообразующих минералов, с помощью сканирующего электронного микроскопа (SEM) в ГПО могут быть обнаружены различные дополнительные минералы, в том числе некоторые высокорadioактивные минералы. Установлено, что минералы монацита и циркона могут встречаться в виде зерен или тонких сростков с породообразующими минералами, такими как хлориты, амфиболы и слюды. Мелкие зерна монацита (<10 мкм) заполняют поры плагиоклаза, полевого шпата, циркона, хлорита. Присутствие минералов монацита и циркона в фракциях пыли и мелкого песка ГПО было обнаружено с помощью (SEM), где анализ минералов проводился в размерах фракций ГПО в исследуемых городах и представлен на рис.13.

При металлургической переработке черной и цветной металлургии образуются различные виды шлаков со сростками монацита и циркона. Источниками образования частиц металлургического шлака в городской среде являются эрозия строительных материалов и дорожных материалов, производимых с использованием шлака в качестве наполнителя.

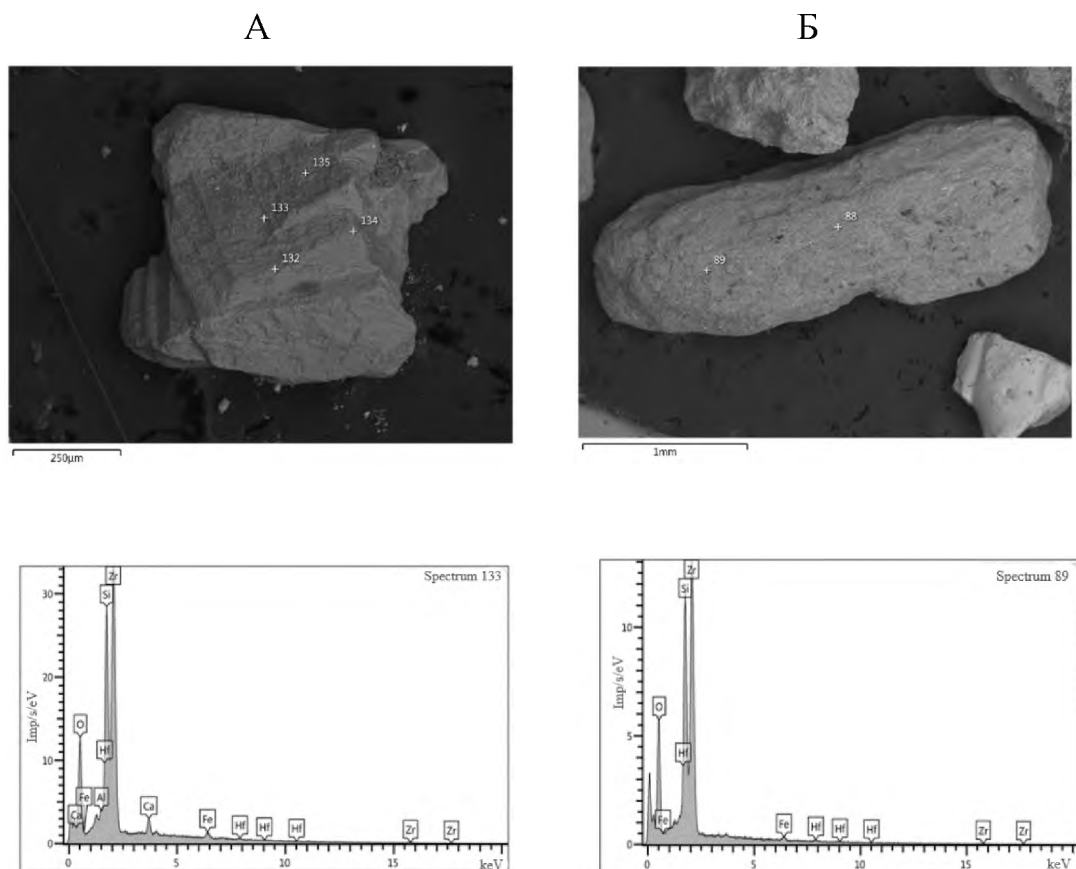


Рис. 13. Минеральный анализ конкретных зерен из образцов ГПО в Екатеринбурге. А) – техногенная частица шлака со сростками циркона (точка 133). Б) – частица антропогенного шлака со сростками циркона (точка 89).

Зерна монацита и частиц циркона могут увеличить радиоактивность всех размерных фракций ГПО. Частицы монацита и циркона размером несколько мкм могут отщепляться от основной частицы шлака, а также увеличивать радиоактивность пылевой фракции ГПО.

Разделение природных радиоактивных элементов между фракциями пыли и мелкого песка в ГПО сопровождается тем же процессом с участием ПВЭ (Pb, Cu и Zn). Видно, что общая альфа-активность и ПВЭ в пыли выше, чем в фракции мелкого песка, что наблюдалась в каждом городе. Это показывает, что радионуклиды в ГПО переносятся и мигрируют из-за антропогенной деятельности, такой как и промышленная деятельность: транспортные выбросы, использование строительных материалов, а также вымывание естественных радионуклидов из городских почв.

Поведение радиоактивных элементов в ГПО и концентрации в пылевой фракции можно рассматривать как индикатор экологических процессов в городской среде:

1) Пылеобразование

Основным источником взвешенных твердых частиц является вторичный подъем дорожной пыли от ветра или турбулентности, вызванной движением транспорта. Воздействие ТЧ связано с повышенной смертностью и широким спектром заболеваний различных органов, особенно сердечно-сосудистых и легочных заболеваний. Фракцию пыли в ГПО нелегко очистить и удалить из городской среды. Таким образом, накопление пылевой фракции в окружающей среде увеличивается.

2) Загрязнение пылевой фракции ПВЭ

Многие загрязнители, включая металлы, наблюдаются в пыли, что может оказывать неблагоприятное воздействие на здоровье человека и окружающую среду. Согласно полученным результатам, фракция пыли имеет более высокую концентрацию потенциально вредных элементов, чем фракция мелкого песка. Можно ожидать, что присутствие ПВЭ связано с городской антропогенной деятельностью. Бытовые выбросы, выветривание фасадов, поверхностей тротуаров и осадки ранее взвешенных частиц (атмосферные аэрозоли) и т. д. также являются источниками загрязнения в жилых районах.

Оценка воздействия на здоровье в окружающей среде зависит от токсичности тяжелых металлов, уровня выбросов, времени года и т. д. Согласно литературным данным воздействие на человека твердых частиц, попадающих в окружающую среду в результате ПВЭ, может привести к различным проблемам со здоровьем, таким как инфекции нижних дыхательных путей, трахеи, бронхов. и рак легких, ишемическая болезнь сердца, ишемический инсульт, внутримозговое кровоизлияние, субарахноидальное кровоизлияние, хроническая обструктивная болезнь легких и др.

Концентрации ^{238}U , ^{232}Th и ^{40}K были оценены в нефракционированных отложениях на городской поверхности в Екатеринбурге, Россия. Средние удельные активности ^{238}U , ^{232}Th и ^{40}K во фракции пыли (0,002-0,05 мм) составляют 48 ± 7 , 28 ± 1 и 510 ± 20 Бк/кг соответственно. Эффективная доза оценивается в зависимости от предлагаемых ежедневных сценариев различных упражнений, которые могут быть отнесены к легкой, умеренной и энергичной физической активности. Результаты

показывают, что общая эффективная доза, полученная в течение 20 лет взрослым человеком с обычной дневной активностью, составляет 5,6 мкЗв при воздействии концентрации воздушной пыли $1 \cdot 10^{-4}$ г/м³, что характерно для города Екатеринбурга. В то время как для умеренной и активной деятельности общая эффективная доза составляет 9,9 и 48,8 мкЗв соответственно в течение 20 лет при концентрации пыли в воздухе, равной суточному предельно допустимому пределу ($1,5 \cdot 10^{-4}$ г/м³).

ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ ДИССЕРТАЦИОННОЙ РАБОТЫ

1. Представлено теоретическое и экспериментальное обоснование методов контроля суммарной удельной альфа- и бета-активности в пробах, фракционированных по размеру частиц и имеющих малый объем и массу, для исследования естественной радиоактивности пылегрязевых отложений городской среды.
2. Представлены и методически обоснованы метод и экспериментальная установка для контроля бета-активности в образцах естественного происхождения с малой массой и объемом с использованием сцинтилляционных детекторов.
3. Представлены и методически обоснованы метод и экспериментальная установка на основе твердотельных ядерных трековых детекторов для контроля суммарной альфа-активности в образцах естественного происхождения с малой массой и объемом.
4. Разработанные экспериментальные методы контроля природной радиоактивности городских поверхностных отложений позволили расширить методическую базу эколого-геохимических исследований городской среды.
5. Разработанные методы проверены с помощью гамма-спектрометрии и химического анализа не фракционированных проб большой массы (0,5-2 кг). Результаты контроля суммарной альфа- и бета-активности в фракционированных образцах с низкой массой согласуются с теоретическими предположениями и экспериментальными данными по распределению естественных радионуклидов по фракциям частиц городской почвы и наносов.
6. В крупных городах России суммарная удельная бета-активность поверхностных пылегрязевых отложений (наносов) не превышает 2,5 Бк/г и в среднем находится в диапазоне от 0,3 до 0,9 Бк/г; суммарная удельная альфа-активность не превышает 0,47 Бк/г и в среднем находится в диапазоне от 0,06 до 0,19 Бк/г.
7. Суммарная бета и суммарная альфа-активность размерных фракций поверхностных пылегрязевых отложений предлагается в качестве нового, информативного индикатора геохимической трансформации современной городской среды, в т.ч. изменений минерального состава, ассоциаций макро и микроэлементов в объектах среды.
8. Распределение суммарной удельной бета-активности в городских отложениях зависит от фракционированного размера частиц: самые высокие значения – в мелкодисперсных фракциях (пыль и мелкий песок). Распределение удельной бета-активности между зимним и осенним сезонами во фракции пыли является значимым.
9. Тип городского ландшафта влияет на уровень суммарной удельной бета-активности, поскольку зеленые зоны демонстрируют более высокое значение, чем другие районы. Наблюдаемые зависимости отражают геохимические процессы,

происходящие при образовании и переносе городских отложений. В частности, это может быть связано с вымыванием естественных радионуклидов из горных пород и почв вместе с дождевой водой.

10. Результаты показали сильную линейную корреляцию ($R = 0,97$) между суммарной удельной альфа- и бета-активностями. Эта корреляция показывает, что суммарная удельная альфа- и бета-активность в городской среде имеет одни и те же источники. Наблюдается корреляция между суммарной удельной альфа-активностью и содержанием Pb ($R = 0,89$), а также суммарной бета-активностью и содержанием Pb ($R = 0,77$), что демонстрирует существование вторичных источников, таких как антропогенное происхождение и транспортные выбросы

11. Размер пылевой фракции имеет примерно одинаковую концентрацию суммарной удельной бета-активности – 0,9 Бк/г в исследуемых городах, расположенных в разных географических зонах. Это можно объяснить наличием радионуклидов, которые мигрировали и переносились в результате одних и тех же естественных и антропогенных процессов, а также присутствием органического вещества с определенным содержанием калия-40. Самая высокая удельная суммарная бета-активность в мелком песке была обнаружена в Екатеринбурге – 0,8 Бк/г.

12. Разница в суммарной концентрации альфа-активности между фракциями пыли и мелкого песка в исследуемых городах значима. Фракция пыли имеет более высокую концентрацию суммарной альфа-активности, чем фракция мелкого песка из-за естественного разделения основных минералов, составляющих ГПО и наличия радиоактивных минералов, таких как монацит и циркон, которые содержат изотопы тория, урана и продукты их распада.

13. ^{106}Ru , выпущенный из неизвестного источника в 2017 году, не повлиял на суммарную бета-активность ГПО в Ростове-на-Дону.

14. Вдыхание пыли в городской среде в Екатеринбурге несет незначительный риск для здоровья из-за содержания природных радиоактивных материалов. При самом неблагоприятном сценарии при продолжительном воздействии эффективная доза облучения не превысит 100 мкЗв.

Список научных работ, опубликованных по теме диссертации

Статьи, опубликованные в рецензируемых научных журналах:

1. **Hanfi M.Y.** Assessment of Radiation Dose From Inhalation of Outdoor Dust Containing Natural Radionuclides / M. Y. Hanfi, I. V. Yarmoshenko, M. V. Zhukovsky // Radiat. Prot. Dosimetry – 2021. – V. 196 – № 3–4 – С. 184–189.
2. **Hanfi M.Y.** Gross alpha and gross beta activity concentrations in the dust fractions of urban surface-deposited sediment in russian cities / M. Y. Hanfi, I. Yarmoshenko, A. A. Seleznev // Atmosphere (Basel). – 2021. – V. 12 – № 5 .
3. **Hanfi M.Y.** Gross alpha activity in urban sediments as an important indicator of urban environmental processes on the example of three Russian cities / M. Y. Hanfi, I. V. Yarmoshenko, E. O. Ilgasheva, A. D. Onishchenko, A. A. Seleznev, A. D. Ryanskaya // J. Environ. Manage.Elsevier Ltd, – 2021. – V. 294 – С. 113011.
4. **Hanfi M.Y.** Assessment of effective doses due to inhalation of natural radioactivity in the dust of urban environment / M. Y. Hanfi, I. V. Yarmoshenko, G. P. Malinovsky, M.

V. Zhukovsky // AIP Conf. Proc. – 2020. – V. 2313 –С. 5–9.

5. **Hanfi M.Y.** Beta radioactivity of urban surface–deposited sediment in three Russian cities / M. Y. Hanfi, V. Yarmoshenko, A. A. Seleznev, G. Malinovsky, E. Ilgasheva, M. V Zhukovsky // Environ. Sci. Pollut. Res.Environmental Science and Pollution Research, – 2020. – V. 27 – № 32 – С. 40309–40315.

6. **Hanfi M.Y.** Health risk assessment quantification from heavy metals contamination in the urban soil and urban surface deposited sediment / M. Y. Hanfi, I. V. Yarmoshenko // J. Taibah Univ. Sci. – 2020. – V. 14 – № 1 – С. 285–293.

7. **Hanfi M.Y.** Heavy metal contamination in urban surface sediments: sources, distribution, contamination control, and remediation / M. Y. Hanfi, M. Y. A. Mostafa, M. V. Zhukovsky // Environ. Monit. Assess. – 2020. – V. 192 – № 32 .

8. **Hanfi M.Y.** Development of an appropriate method for measuring gross alpha activity concentration in low-mass size-fractionated samples of sediment using solid-state nuclear track detectors / M. Y. Hanfi, I. Yarmoshenko, A. A. Seleznev, A. D. Onishchenko, M. V. Zhukovsky // J. Radioanal. Nucl. Chem.Springer International Publishing, – 2020. – V. 323 – № 3 – С. 1047–1053.

9. **Hanfi M.Y.** The gross beta activity of surface sediment in different urban landscape areas / M. Y. Hanfi, I. V Yarmoshenko, A. A. Seleznev, M. V Zhukovsky // J. Radioanal. Nucl. Chem.Springer International Publishing, – 2019. № 0123456789 – .

10. **Hanfi M.Y.** Correcting beta measurements of the surface deposited sediments in different urban zones Correcting Beta Measurements of the Surface Deposited Sediments in Different Urban Zones / M. Y. Hanfi, I. Yarmoshenko, A. Seleznev, M. Zhukovsky // AIP Conf. Proc. 2174, 020217 – 2019. – V. 020217 – № 020217 .

Статьи, опубликованные в материалах конференций:

1. Селезнев. А. А. Современные антропогенные отложения в локальных понижениях микрорельефа на урбанизированных территориях: состав и свойства. Екатеринбург/ А. А. Селезневю М.Ханфи // XIX Уральская молодежная научная школа по геофизике. Сборник науч. Материалов, – 2018.