

УДК 614.876;551.510.72

СРАВНИТЕЛЬНАЯ ОЦЕНКА ВЫПАДЕНИЯ РАДИОНУКЛИДОВ НА ТЕРРИТОРИИ ТОМСКОГО РАЙОНА (РОССИЯ) И НАЦИОНАЛЬНОГО ПАРКА МЕРКАНТУР (ФРАНЦИЯ)

Л.П. Шура, В.Д. Каратаев, Е.Г. Кузнецова, Ж. Ардиссон*, Ж. Барси*

Томский политехнический университет

*Университет София-Антиполис, г. Ницца (Франция)

E-mail: shura@interact.phtd.tpu.edu.ru

Проведена сравнительная оценка поверхностной радиоактивности почв Томского района и Национального парка Меркантур (Франция), обусловленная трансурановыми элементами и ^{137}Cs . Вычислены изотопные отношения по удельным активностям $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$, $^{238,240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ и $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$, которые позволяют определить наиболее вероятные источники появления радионуклидов в атмосфере. Результаты работы использованы для оценки радиационной обстановки и определения источников техногенной радиоактивности на обследуемых территориях.

Введение

Глобальные выпадения радиоактивных элементов из верхних слоев атмосферы, накопленные в результате испытаний ядерного оружия, аварии на Чернобыльской АЭС, аварийных и штатных выбросов с предприятий ядерно-топливного цикла, являются источниками загрязнения подстилающих территорий долгоживущим гамма-радиоактивным элементом ^{137}Cs и трансурановыми элементами.

По оценкам некоторых авторов [1, 2] территория Европейского континента подвержена влиянию глобальных выпадений от наземных испытаний ядерного оружия, интенсивность которых достигла максимального уровня к началу 60-х годов прошлого века. В результате испытаний в окружающую среду было выброшено примерно $1,1 \cdot 10^{18}$ Бк радионуклида ^{137}Cs , $1,5 \cdot 10^{16}$ Бк изотопов $^{239,240}\text{Pu}$ [1]. Вторым крупным источником радиоактивного загрязнения стала авария на Чернобыльской АЭС в 1986 г. Выброшенная в атмосферу в результате этой аварии активность создала повышенный уровень радиоактивного загрязнения обширных территорий следующими радионуклидами: ^{137}Cs – $8,5 \cdot 10^{16}$ Бк; ^{238}Pu – $3,5 \cdot 10^{13}$ Бк; ^{239}Pu – $3 \cdot 10^{13}$ Бк; ^{240}Pu – $4,2 \cdot 10^{13}$ Бк [3]. Кроме того, вследствие штатной работы и аварийных инцидентов на предприятиях ядерного топливного цикла возникли локальные участки с высоким содержанием ^{137}Cs и трансурановых элементов. Так, сбросы в Ирландское море жидких радиоактивных отходов с заводов по переработке ядерного топлива в Селлафильде (Великобритания) составили: ^{137}Cs – $3 \cdot 10^{16}$ Бк; $^{239,240}\text{Pu}$ – $6,8 \cdot 10^{14}$ Бк; ^{241}Am – $8,9 \cdot 10^{14}$ Бк. На мысе Аг (Франция) сброшено $3 \cdot 10^{12}$ Бк радионуклидов $^{239,240}\text{Pu}$ [2, 4]. Работа предприятий ядерно-топливного цикла бывшего Советского Союза также характеризуется вкладом в радиоактивное загрязнение близлежащих территорий. По данным авторов работы [5], комплекс «Маяк», производящий оружейный плутоний, сбросил около $9,25 \cdot 10^{16}$ Бк радиоактивных отходов (из них 25 % радионуклида ^{90}Sr и радионуклида ^{137}Cs) в р. Теча и озеро Карачай в период между 1949 и 1952 гг. Сибирский химический комбинат (СХК), производивший плутоний, в период с 1955 по 1990 гг. сбросил радиоактивные отходы активностью $3,7 \cdot 10^{19}$ Бк в р. Томь [5].

Несмотря на то, что радиоактивное загрязнение выбросами предприятий ядерно-топливного цикла, по сравнению с первыми двумя источниками, имеет локальное географическое распространение, его нужно принимать в расчет при оценке радиационной обстановки на каждой конкретной территории.

Данные о поверхностном загрязнении почвы техногенными радионуклидами, такими как ^{137}Cs , $^{239,240}\text{Pu}$, ^{238}Pu и ^{241}Am , позволяют оценить уровень воздействия радиоактивности на обследуемую территорию. Кроме того, значения изотопных отношений удельных активностей между указанными радионуклидами, аккумулированными в почве, являются важной информацией для определения источников радиоактивного загрязнения.

Объекты и методы исследования

Пробоотбор. Территория Национального парка Меркантур, находящаяся в 50 км к северу от г. Ниццы на юге французских Альп ($43^{\circ}43$ с.ш. и $7^{\circ}15$ в.д.), была выбрана для исследования факторов, влияющих на радиационную обстановку юго-востока Франции. Тип экосистемы «полунатуральный», более 40 % территории покрыто хвойными лесами и высокогорными пастбищами (44 %). Климат горного массива Меркантур характеризуется мягкой зимой и жарким летом. Средняя годовая температура – между 4 и 8 °С. Уровень атмосферных осадков составляет 1250 мм/год, максимум которых приходится на весну и осень [6]. Территория пробоотбора находится на высоте порядка 2000 м над уровнем моря.

В Томской области с точки зрения радиоактивного загрязнения представляет интерес обследование территории, находящейся в непосредственной близости от санитарно-защитной зоны (СЗЗ) СХК, в 35 км к северо-востоку от г. Томска ($56^{\circ}29$ с.ш. и $82^{\circ}36$ в.д.) – площадка 1. Полагая, что влияние СХК на радиационную обстановку вблизи г. Томска является локальным, в качестве реперной точки пробоотбора выбрана площадка 2, которая располагалась в 20 км к югу от г. Томска (см. рис. 1). Обследуемая территория характеризуется равнинным болотистым ландшафтом со средним возвышением порядка 200 м над уровнем моря. Тип экосистемы –

«полунатуральный», с многочисленными пастбищами, сельскохозяйственными полями и смешанными лесами. Климат региона резко континентальный. Средняя температура января колеблется между -19 и -21 °С, июля – $+17$ и $+18$ °С. Средняя норма годовых осадков составляет 400...550 мм [7].

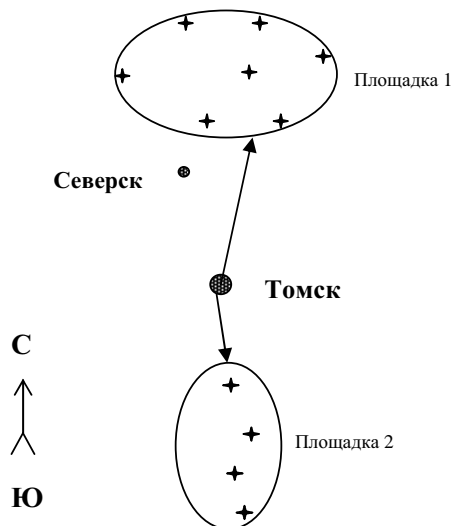


Рис. 1. Карта-схема пробоотбора в Томском районе

Для анализа атмосферных выпадений техногенных радионуклидов выбраны площадки, неподверженные хозяйственной деятельности человека. В пробоотборе использованы стандартные методики [8]. Образцы почвы отбирали цилиндрическим пробоотборником площадью 113 см² на глубину 15 см. После отделения слоя лесной подстилки пробы почвы высушивали на открытом воздухе в летнее время и измельчали, корни и камни, диаметром более 2 мм, исключали из пробы. Для каждой пробы рассчитывали естественную плотность по формуле: $d=m/(S \cdot h)$, где: m – масса пробы почвы, кг; S – поверхность пробоотбора, м²; h – глубина пробоотбора, м. Полученные значения плотности использовали для пересчета удельной массовой активности (Бк/кг), определенной с помощью гамма- и альфа-спектрометрического метода, в удельную поверхностную активность (Бк/м²). Результат пересчета в поверхностную активность представляет реальное содержание радионуклидов в почве, учитывающее специфические условия нахождения радионуклидов в природной среде, такие как: влажность; естественная плотность; распределение по размерам почвенных частиц. Массовая активность показывает содержание радионуклидов в образце почвы, подготовленной к спектрометрическим измерениям.

В рамках международного сотрудничества с Лабораторией радиохимии и радиоэкологии Университета София-Антиполис г. Ницца (Франция) в пробах почвы измерена удельная массовая активность ¹³⁷Cs. Затем пробы подвергнуты радиохимическому анализу, определены удельные массовые активности радионуклидов ²³⁸Pu, ^{239,240}Pu и ²⁴¹Am альфа-спектрометрическим методом.

Гамма-спектрометрия ¹³⁷Cs. Удельную активность гамма-излучающего радионуклида ¹³⁷Cs определяли инструментальным спектрометрическим методом без предварительной радиохимической подготовки проб. В измерениях использовали полупроводниковый детектор HPGe EG&G Ortec с относительной эффективностью регистрации 28 % и энергетическим разрешением 1,85 кэВ по гамма-линии с энергией 1,33 МэВ. Полученные спектры регистрировали и обрабатывали на автоматизированном многоканальном анализаторе Spectrum Master EG&G Ortec 919, оснащенный программой Gamma Vision. Измерения проводили с экспозицией 1...4 сут. в зависимости от активности образца почвы. Геометрию измерений формировали цилиндрической пластиковой кюветой объемом 0,12 л. В качестве калибровочного источника использована навеска грунта, насыщенная водным раствором, содержащим ¹³⁷Cs и ¹⁵²Eu известной активности в той же геометрии. Естественный гамма-фон ослабляли пассивной защитой, окружающей со всех сторон детектор. Защита сконструирована из свинцовых блоков и медных листов толщиной 5 см и 2 мм, соответственно. Пик полного поглощения энергии фотонов гамма-излучения ¹³⁷Cs в спектре остаточного фона формировался с интенсивностью $5 \cdot 10^{-4}$ событий/с. Погрешность измерений составляла менее 5 % от значения полученной удельной массовой активности.

Радиохимический анализ трансурановых элементов. Стандартные методики определения сравнительно невысоких концентраций трансурановых элементов, таких как ²³⁸Pu, ^{239,240}Pu и ²⁴¹Am, в пробах почвы заключаются в выделении радиоактивных элементов из вещества образца, их радиохимическом разделении, осаждении из раствора на подложку, изготовленную из нержавеющей стали в форме диска, и последующей альфа-спектрометрией приготовленного препарата [9]. В Лаборатории радиохимии и радиоэкологии Университета София-Антиполис разработана и аттестована методика одновременного определения концентрации изотопов плутония и америция, выделенных из проб почвы [10]. Навеску почвы массой 10...20 г после озоления и добавки индикаторов (²⁴²Pu и ²⁴³Am) растворяли в азотной кислоте. Изотопы америция и плутония разделяли в ионообменной колонке на анионной смоле. После очистки препаратов от радионуклидов естественного, искусственного происхождения и других химических элементов, определяемые изотопы электролитически осаждали на диск. Максимальный радиохимический выход разделения составлял 90 % для изотопов плутония и 50 % – для америция.

Альфа-спектрометрия трансурановых элементов. Содержание изотопов ²³⁸Pu, ^{239,240}Pu и ²⁴¹Am в почве определено на автоматизированном альфа-спектрометре фирмы EG&G Ortec 576A с кремниевым детектором, легированным имплантированными атомами бора. Чувствительная поверхность детектора со-

ставляла 450 мм². Спектры получены и проанализированы на многоканальном анализаторе *Spectrum Master EG&G Ortec 919*. Энергетическое разрешение спектрометра определено по линии 5,499 МэВ изотопного образцового источника ²³⁸Pu и составляло 20 кэВ. Для калибровки спектрометра по энергии использовали осажденные из растворов на стальной диск электролитическим способом альфа-радионуклиды ²⁴²Pu и ²⁴³Am с известной активностью. Время измерения выбирали также в пределах 1...4 сут. Погрешность измерений составляла 3...10 % от значения полученной удельной массовой активности.

Контроль достоверности результатов. Для проверки достоверности полученных результатов, аттестации используемых методик подготовки и измерения проб использовали стандарты почвы, предоставленные МАГАТЭ для аттестации методик радиохимического разделения и гамма-, альфа-спектрометрии (IAEA-326, IAEA-327 и IAEA-375). Кроме того, были проведены измерения одних и тех же проб почвы в разных лабораториях. В рамках сотрудничества с Лабораторией измерения радиоактивности окружающей среды Института ядерной безопасности (Орсэ, Франция) значения удельной массовой активности по альфа-излучающим радионуклидам сравнивали со значениями, полученным в Лаборатории радиохимии и радиоэкологии Университета София-Антиполис. На рис. 2, а, представлен результат сравнения удельной активности по ^{239,240}Pu. Коэффициент линейной регрессии равен 0,9.

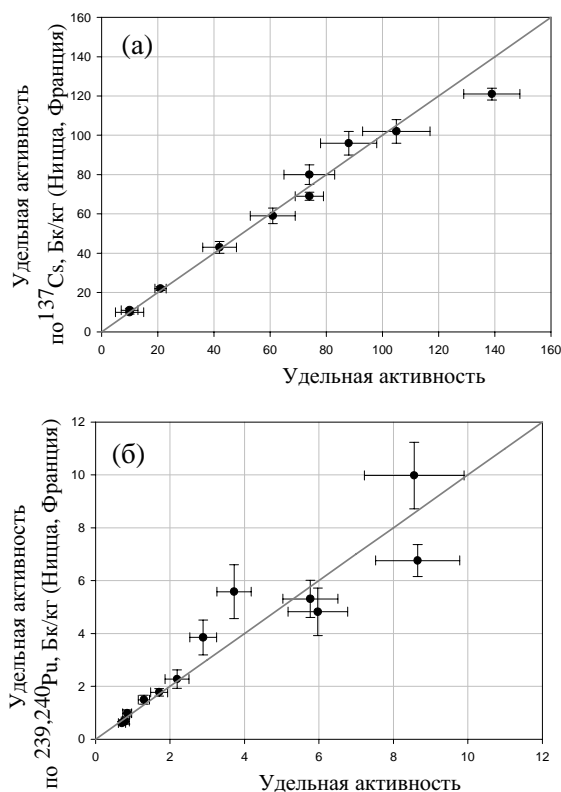


Рис. 2. Сравнение результатов измерения удельной массовой активности по ^{239,240}Pu (а) и по ¹³⁷Cs (б) в межлабораторных сравнительных экспериментах

Измерение удельной массовой активности почвы по гамма-излучающим радионуклидам проводили также и в Лаборатории радиационного контроля Томского политехнического университета. На рис. 2, б, приведено сравнение удельной массовой активности по ¹³⁷Cs, полученной в лабораториях г. Томска и Ниццы. Коэффициент линейной регрессии составляет 0,99.

Процедуры интеркалибровки показали хорошее согласие полученных результатов в пределах погрешностей.

Результаты анализов и обсуждение

Исследованы удельные массовые активности радионуклида ¹³⁷Cs и трансурановых элементов в пробах почвы, отобранных в России и во Франции. Результаты пересчитаны в удельные поверхностные активности, определяющие уровень загрязнения исследуемой местности (табл. 1). Поскольку разброс в измеренных значениях активности велик, то в таблице приводятся не только средние, но и минимальные и максимальные значения.

Таблица 1. Поверхностные активности радионуклидов, Бк/м²

Место отбора проб	Нуклид	min	max	среднее	
Томск	Площадка 1	¹³⁷ Cs	780±50	3700±110	1900±160
		^{239,240} Pu	50±4	230±40	140±30
		²³⁸ Pu	1±0,2	6±0,5	3±0,5
	Площадка 2	²⁴¹ Am	5±1	30±5	20±3
		¹³⁷ Cs	460±30	920±30	660±30
		^{239,240} Pu	20±2	30±3	20±2
Меркантиур	²³⁸ Pu	0,4±0,1	2,0±0,3	1±0,1	
	²⁴¹ Am	3±1	20±3	10±1	
	¹³⁷ Cs	2900±200	29200±1600	14200±1000	
	^{239,240} Pu	30±3	180±20	90±10	
	²³⁸ Pu	1±0,2	7±1	3±0,5	
	²⁴¹ Am	7±1	80±20	30±10	

Поверхностная активность ¹³⁷Cs. Согласно оценкам, приведенным в [11], уровень, соответствующий глобальным выпадениям ¹³⁷Cs на территории северо-восточной Сибири, оценивается в 800 Бк/м², тогда как авторы работы [12] для территории Западной Европы за «глобальный» цезий принимают значительную поверхностную активность порядка 3000 Бк/м². Такая разница в значениях обусловлена географическим положением указанных территорий.

«Чернобыльские» выпадения ¹³⁷Cs на территорию Западной Европы оцениваются в 30...100 кБк/м² в зависимости от географического положения [12, 13]. Авторы работы [14] в 1992 г. провели исследование радиоактивного загрязнения территории Национального парка Меркантиур в результате Чернобыльской аварии. Они приводят оценку поверхностной активности ¹³⁷Cs в 20...50 кБк/м² (или 14...35 кБк/м² с учетом радиоактивного распада на 2004 г.). В ряде работ отмечено, что вклад ¹³⁷Cs от Чернобыльской АЭС в радиоактивное загрязнение территории Сибири невелик, что обусловлено большой дистанцией и преимущественным движением атмосферных фронтов в сторону Западной Европы в течение первых недель после аварии [11, 15, 16].

Очевидно, что присутствие ^{137}Cs на территории *площадки 2* обусловлено лишь последствиями атмосферных испытаний ядерного оружия с уровнем выпадений на поверхность земли порядка 700 Бк/м^2 . Уровень поверхностной активности ^{137}Cs (порядка 2000 Бк/м^2) на территории *площадки 1* указывает на дополнительный источник поступления ^{137}Cs . Таким источником может быть радиохимическое производство на СХК. Очевидно, что присутствие ^{137}Cs в почве Национального парка Меркантур обусловлено исключительно последствиями аварии на Чернобыльской АЭС.

Поверхностная активность $^{239,240}\text{Pu}$. Как и в случае с ^{137}Cs , уровень выпадений на почву изотопов $^{239,240}\text{Pu}$ зависит от типа источника его поступления в атмосферу. Атмосферным выпадениям на территории Западной Европы изотопов $^{239,240}\text{Pu}$ в результате наземных испытаний ядерного оружия соответствует поверхностная активность порядка 60 Бк/м^2 [17]. По аналогии с поверхностной активностью ^{137}Cs , в почвах Сибири можно ожидать меньшее значение «глобального плутония» по сравнению с Европейской территорией. Можно предположить, что полученное нами значение поверхностной активности $^{239,240}\text{Pu}$ в почвах массива Меркантур, равное 90 Бк/м^2 , соответствует глобальным выпадениям плутония в Западной Европе, а поверхностная активность 20 Бк/м^2 по $^{239,240}\text{Pu}$, полученная в нашей работе для почвы на территории *площадки 2*, соответствует уровню глобальных выпадений плутония для территории Сибири. По средним оценкам эта цифра в 4 раза меньше, чем для территории Западной Европы. С оценками глобальных выпадений ^{137}Cs наблюдается такое же соотношение между его содержанием в почвах Западной Европы и Сибири. Таким образом, можно уверенно утверждать, что радиоактивность по $^{239,240}\text{Pu}$ на территориях Западной Европы и *площадки 2* Томского района создана глобальными выпадениями из атмосферы, обусловленными испытаниями ядерного оружия.

Территория *площадки 1* характеризуется повышенным содержанием $^{239,240}\text{Pu}$ в почве (140 Бк/м^2) и по сравнению с *площадкой 2*, и по сравнению с территорией Западной Европы. Аналогично загрязнению ^{137}Cs , можно предположить наличие локального источника поступления $^{239,240}\text{Pu}$ в почву *площадки 1*, территориально расположенного вблизи нее.

Поверхностная активность ^{238}Pu , ^{241}Am . Уровни загрязнения изотопами ^{238}Pu и ^{241}Am для обследуемых территорий различаются незначительно. Это связано с невысокой их поверхностной активностью и, как следствие, большим статистическим разбросом результатов измерений, который не позволяет достоверно определять разницу в значениях. Кроме того, ^{241}Am образуется путем распада ^{241}Pu , что вносит дополнительный вклад в общее содержание америция в почве, содержащей изотопы плутония. Поэтому судить об источниках поступления этих изотопов на обследуемые территории затруднительно. Возникает необходимость в поиске

дополнительной информации по содержанию техногенных радионуклидов в почвах. Такую информацию может дать анализ значений изотопных отношений, вычисленных по удельным активностям между исследуемыми радионуклидами в почве.

Изучение изотопных отношений удельных активностей $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$, $^{239,240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ и $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$. По измеренным значениям удельной массовой активности ^{137}Cs и трансурановых элементов в почве вычислены изотопные отношения между радионуклидами и проведено сравнение со значениями, приведенными в литературе, характеризующими различные источники поступления указанных радионуклидов в почву обследованных территорий (табл. 2).

Таблица 2. Сравнительный анализ изотопных отношений удельных массовых активностей $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$, $^{239,240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ и $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$, взятых из литературных источников и полученных в измерениях

Источники загрязнения территорий		$^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$	$^{239,240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$	$^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$
Глобальные выпадения		$0,030 \pm 0,007$ [12]	$0,028 \pm 0,003$ [17]	$0,30 \pm 0,07$ [12]
Чернобыль		$0,42 \pm 0,01$ [19]	$0,0028 \pm 0,0007$ [17]	$1,170,1$ [23]
«Маяк»		$0,012 \pm 0,003$ [20]	–	–
Селла-фильд		$0,19 \pm 0,02$ [21]	$0,25 \pm 0,01$ [18]	$0,80 \pm 0,04$ [24]
Аг		$0,50 \pm 0,01$ [22]	–	–
Томск	Площадка 1	$0,019 \pm 0,002$	$0,060 \pm 0,008$	$0,123 \pm 0,008$
	Площадка 2	$0,047 \pm 0,008$	$0,038 \pm 0,004$	$0,40 \pm 0,05$
Меркантур		$0,038 \pm 0,004$	$0,0060 \pm 0,0008$	$0,36 \pm 0,03$

Изотопные отношения $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$, полученные для территорий *площадки 2* Томского района и массива Меркантур, имеют численные значения, хорошо согласующиеся с литературными данными для территорий, содержащих в почве изотопы плутония, выброшенные в атмосферу в результате наземных и атмосферных испытаний ядерного оружия [12]. Это подтверждает наше предположение о «глобальном» характере накопления изотопов плутония на обследованных территориях. Для *площадки 1* такое отношение сравнимо со значением, характерным для ядерного производства «Маяк», производившего оружейный плутоний [20, 25].

Отношение $^{239,240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$, полученное для *площадки 2* Томского района, так же, как и предыдущее отношение, указывает на «глобальный» источник поступления плутония и цезия в почву. *Площадка 1* характеризуется повышенным значением отношения $^{239,240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$, которое косвенно указывает на превышение содержания $^{239,240}\text{Pu}$ над ^{137}Cs в почве, а также на отличный от «глобального» источник поступления данных радионуклидов на указанную территорию. Для территории Меркантур такое отношение одного порядка со значением,

характерным для «чернобыльских» выпадений на территории Западной Европы [17].

Отношение $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ позволяет сделать окончательный вывод о происхождении трансурановых элементов на обследуемых территориях. Присутствие изотопов плутония и америция на территориях площадки 2 Томского района и массива Меркантур обусловлено «глобальным» источником этих изотопов, что показывает равенство изотопных отношений $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ для этих территорий и территорий, загрязненных в результате глобальных атмосферных выпадений от испытаний ядерного оружия [12]. Тогда как указанное отношение, полученное для площадки 1 Томского района, имеет меньшее значение, что косвенно указывает на превышение содержания $^{239,240}\text{Pu}$ над ^{241}Am в почве и подтверждает влияние СХК на указанную территорию.

Выводы

Проведена комплексная оценка радиационной обстановки и определены источники техногенной радиоактивности с использованием ядерно-физических методов анализа. На основании исследования загрязнения территорий Томского района и массива Меркантур (Франция) радионуклидами техногенного происхождения определена поверх-

ностная активность ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$ и ^{241}Am . Изотопные отношения удельных массовых активностей указанных радионуклидов позволили определить источники их поступления в почву обследованных территорий.

1. Радиоактивное загрязнение территории Томского района складывается из двух источников – глобального загрязнения радионуклидами техногенного происхождения в результате атмосферных, наземных испытаний ядерного оружия и выбросов Сибирского химического комбината. Присутствие техногенных радионуклидов на территории Томского района в результате деятельности СХК носит локальный характер, что подтверждается разницей в значений поверхностной активности в почвах контрольного участка и в непосредственной близости от СЗС СХК.
2. Радиационная обстановка на территории массива Меркантур (юго-восток Франции) обусловлена глобальным загрязнением трансурановыми элементами в результате испытаний ядерного оружия и ^{137}Cs – в результате аварии на Чернобыльской АЭС. Влияние предприятий ядерной индустрии Западной Европы на непосредственное радиоактивное загрязнение территории национального парка Меркантур не установлено.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Harley J.H. Plutonium in the environment – a review // *Journal of Radiation Research*. – 1980. – V. 21. – № 1. – P. 83–104.
2. Assinder D.J., Yamamoto M., Kim C.K., Seki R., Takaku Y., Yamauchi Y., Igarashi S., Komura K., Ueno K. Radioisotopes of thirteen elements in intertidal coastal and estuarine sediment in the Irish Sea // *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*. – 1993. – V. 170. – № 2. – P. 333–346.
3. Devell L. e. a. The Chernobyl reactor accident source term: development of a consensus view. CSNI Report in preparation, OECD/NEA. – Paris, 1995. – 37 p.
4. Holm E. Strategy and methodologies for applied marine radioactivity studies // *Materials of Regional Training Course, IAEA, Helsinki, Finland, 9–20 Sept., 1996*. – P. 14–22.
5. Paluszkiwicz T., Hibler L.F., Richmond M.C., Bradley D.J., Thomas S.A. Modeling the potential radionuclide transport by the Ob and Yenisey Rivers to the Kara Sea // *Marine Pollution Bulletin*. – 2001. – V. 43. – № 1–6. – P. 111–121.
6. Atlas du Parc national du Mercantour / J.Y. Biancheri, J. Claudin. – Nice: MEDD, Parc national du Mercantour, 2002. – 80 p.
7. Бояркина А.П., Байковский В.В., Васильев Н.В., Глухов Г.Г., Медведев М.А., Писарева Л.Ф., Резчиков В.И., Шелудько С.И. Аэрозоли в природных планшетах Сибири. – Томск: ТГУ, 1993. – 157 с.
8. ГОСТ 17.4.3.01-83. Охрана природы. Почвы. Общие требования к отбору проб.
9. Ballestra S. Radioactivité artificielle et environnement marin. Etude relative aux transuraniens. These d'etat, l'UNSA. – Monaco, 1980. – 90 p.
10. Michel H. Contribution a l'etude des processus de transfert atmosphere – sediment d'elements transuraniens a longue vie dans un systeme lacustre europeen. These, l'UNSA. – Nice, 1999. – 170 p.
11. Bossew P., Ichikawa M., Mraz G., Wallner G., Wenisch A. Radiological investigations in the surroundings of Bilibino, Chukotka, Russia // *Journal of environmental radioactivity*. – 2000. – V. 51. – № 3. – P. 299–319.
12. Bunzl K., Kracke W. Cumulative deposition of ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{241}Am from global fallout in soils from forest, grassland and arable land // *Journal of environmental radioactivity*. – 1988. – V. 8. – № 1. – P. 1–14.
13. Olsen R.A. The transfer of radiocaesium from soil to plants and fungi in seminatural ecosystems // *Studies in environmental science*. – 1998. – V. 62. – № 4. – P. 265.
14. Barci-Funel G., Dalmasso J., Ardisson G. Deposition of long-lived radionuclides after the Chernobyl accident in the forestall massif of Boreon // *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Letters*. – 1992. – V. 164. – № 3. – P. 157–169.
15. Tcherkezian V., Galushkin B., Goryachenkova T., Kashkarov L., Liul A., Roschina I., Rumiantsev O. Forms of contamination of the environment by radionuclides after the Tomsk accident (Russia, 1993) // *Journal of environmental radioactivity*. – 1995. – V. 27. – № 2. – P. 133–139.
16. Cochran J.K., Moran S.B., Fisher N.S., Beasley T.M., Kelley J.M. Sources and transport of anthropogenic radionuclides in the Ob River system, Siberia // *Earth and Planetary Science Letters*. – 2000. – V. 179. – № 1. – P. 125–137.
17. Bunzl K., Kracke W., Schimmack W. Residence times of fallout $^{239,240}\text{Pu}$, ^{238}Pu , ^{241}Am and ^{137}Cs in the upper horizons of an undisturbed grassland soil // *Journal of environmental radioactivity*. – 1994. – V. 22. – № 1. – P. 11–27.
18. Jones D.J., Roberts P.D., Strutt M.H., Higgs J.J., Davis J.R. Distribution of ^{137}Cs and inventories of ^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$, ^{241}Am and ^{137}Cs in Irish Sea intertidal sediments // *Journal of Environmental Radioactivity*. – 1999. – V. 44. – № 2–3. – P. 159–189.
19. Hotzl H., Rosner G., Winkler R. Ground deposition and air concentrations of Chernobyl fallout radionuclides at Munich-Neuherberg // *Radiochimica Acta*. – 1987. – V. 41. – № 4. – P. 181–190.

20. Trapeznikov A.V., Pozolotina V.N., Chebotina M.Y. et al. Radioactive contamination of the Techa River, the Urals // Health Physics. – 1993. – V. 65. – № 5. – P. 481–488.
21. Ryan T.P., Dowdall A.M., Long S., Smith V., Pollard D., Cunningham J.D. Plutonium and americium in fish, shellfish and seaweed in the Irish environment and their contribution to dose // Journal of Environmental Radioactivity. – 1999. – V. 44. – № 2–3. – P. 349–369.
22. Yamamoto M., Kuwabara J., Assinder D.J. Curium isotopes and Americium-242m in Irish sea sediment // Radiochimica Acta. – 1998. – V. 83. – № 3. – P. 121–126.
23. Ageev V.A., Vyrichek S.L., Lashko A.P., Lashko T.N., Odintsov A.A. Specific activity of ^{241}Am and ^{241}Cm in the fuel of the 4th power-generating unit of the Chernobyl nuclear power plant // Atomnaya energiya. – 1999. – V. 87. – № 5. – P. 327–329.
24. Malcolm S.J., Kershaw P.J., Lovett M.B., Harvey B.R. The interstitial water chemistry of Pu-239, 240 and Am-241 in the sediments of the North-East Irish Sea // Geochimica et Cosmochimica Acta. – 1990. – V. 54. – № 1. – P. 29–35.
25. Крышев И.И., Рязанцев Е.П. Экологическая безопасность ядерно-энергетического комплекса России. – М.: ИздАТ, 2000. – 384 с.

УДК 621.039.342+661.1+543.51

ОПРЕДЕЛЕНИЕ СОДЕРЖАНИЯ ГАЗОБРАЗНЫХ ПРИМЕСЕЙ В ВЫСОКОЧИСТОМ АРСИНЕ ПРИ ЕГО ОЧИСТКЕ НА ГАЗОВЫХ ЦЕНТРИФУГАХ

А.А. Зайков, С.М. Зырянов, И.И. Пульников, Г.М. Скорынин, В.А. Власов*

ФГУП ПО «Электрохимический завод», г. Зеленогорск Красноярского края

*Томский политехнический университет

В процессе изучения возможности применения газовых центрифуг для глубокой очистки арсина от примесей в очищаемом продукте были обнаружены толуол, ксилол, фреон. Установлено, что источниками появления толуола и фреона являются конструкционные материалы газовых центрифуг. Предел обнаружения примесей в веществе, при соответствующей подготовке магнитного масс-спектрометра, может достигать $1 \cdot 10^{-5}$ об. %. Погрешность анализа – до 30 отн. %.

Введение

В настоящее время существует множество методов глубокой очистки веществ, основанных на различии в химических или физико-химических свойствах разделяемых компонентов (криогенная очистка, ректификация, адсорбция и др.). Альтернативным методом получения высокочистых веществ является очистка на газовых центрифугах. Современный уровень развития этого метода и полученные практические результаты позволяют сделать вывод о его высокой эффективности.

В процессе изучения возможности применения газовых центрифуг для очистки веществ решается комплекс задач, связанных, прежде всего, с разработкой специализированного оборудования и его подготовкой к получению высокочистых газов. К одной из проблем получения высокочистых веществ на газовых центрифугах можно отнести загрязнение очищаемого газа летучими органическими соединениями, выделяющимися из конструкционных материалов газовых центрифуг. Газовые центрифуги, особенно в начальный период эксплуатации, выделяют целую гамму летучих веществ: ацетон, толуол, ксилол, этилцеллозольв, бутилацетат и другие, которые попадают в рабочее вещество, в основном, через систему уплотнений из зароторного пространства. Основными источниками вносимого загрязнения являются: эпоксидный компаунд статора, стеклопластик ротора, вакуумное масло, резиновые детали. Для получения ве-

ществ с достаточно высоким содержанием примесей, более чем $\sim 10^{-4}$ %, это загрязнение несущественно, однако, при более глубокой очистке – становится одним из решающих факторов применения метода для получения того или иного высокочистого вещества.

Целью данной работы являлось идентификация, определение содержания и источников выделения примесей, вносимых газовыми центрифугами в очищаемый арсин, а также определение предела обнаружения примесей в арсине при проведении анализов на магнитном масс-спектрометре МИ-1201В.

1. Идентификация примесей и определение источников их выделения

Исследование процесса очистки арсина проводилось на очистительной установке, состоящей из двух каскадов газовых центрифуг: «верхнего» и «нижнего». Каждый каскад состоял из нескольких последовательно соединенных между собой ступеней. Установка была укомплектована газовыми центрифугами, специально разработанными для получения высокочистых веществ и имеющими отдельную трассу для откачки летучих соединений, выделяемых конструкционными материалами, – систему откачки зароторного пространства. Принципиальная схема очистительной установки приведена на рис. 1.