

УДК 546.659:539.16: 504.06:504.53

ОПРЕДЕЛЕНИЕ ^{151}Sm В ПРОБАХ ПОЧВЫ С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ МЕТОДА ЖИДКОСТНОЙ СЦИНТИЛЛЯЦИОННОЙ СПЕКТРОМЕТРИИ

Сальменбаев Саян Елеусизович^{1,2},
salmenbayev@nnc.kz

Берикхан Кайыржан Асетулы¹,
berikhan_kaiyrzhan@nnc.kz

Мухамедияров Нурлан Жумагазыевич¹,
mukhamediyarov@nnc.kz

Жамалдинов Фаиль Фиргатович¹,
zhamaldinov@nnc.kz

Харченко Артем Алексеевич¹,
kharchenko@nnc.kz

Мустафина Куралай Тасбулатовна¹,
kuralay@nnc.kz

¹ Филиал Института радиационной безопасности и экологии Национального ядерного центра Республики Казахстан, Казахстан, 071100, г. Курчатов, ул. Бейбит Атом, 2.

² Алтайский государственный аграрный университет, Россия, 656049, г. Барнаул, пр. Красноармейский, 98.

Актуальность исследования обусловлена отсутствием информации об уровнях содержания в почвах Семипалатинского испытательного полигона техногенного радионуклида ^{151}Sm . Расчетное количество ^{151}Sm , которое могло быть рассеяно во время наземных и атмосферных испытаний ядерных зарядов, проведенных на Семипалатинском испытательном полигоне, составляет $6,1 \cdot 10^5$ Ки. Как известно, почва является депонирующей системой, накапливающей различные токсичные, вредные вещества и радионуклиды. В результате ветровой и водной эрозии почв, поглощения радионуклидов растениями, может происходить их дальнейшее перераспределение и миграция, в результате чего радионуклиды могут поступать в организм человека, приводя к его облучению.

Цель: разработка способа радиохимического определения ^{151}Sm в почвах Семипалатинского испытательного полигона с использованием метода жидкостной сцинтилляционной спектрометрии.

Объекты: поверхностные пробы почвы, отобранные на территории Семипалатинского испытательного полигона. Основными критериями при выборе образцов было наличие в них ^{137}Cs как возможного индикатора присутствия ^{151}Sm , и отсутствие радиоактивных изотопов Eu как основного мешающего радионуклида. Значения удельной активности ^{137}Cs в исследуемых образцах варьировали от 3,6 до 780 Бк/кг.

Метод. Способ определения ^{151}Sm включает полное кислотное разложение исследуемых образцов почвы концентрированными растворами кислот (HF , HNO_3), выделение и радиохимическую очистку с использованием ионообменных смол, а также осаждение малорастворимых соединений. Удельная активность ^{151}Sm определялась с помощью ультра-низкофонового жидко-сцинтилляционного спектрометра Quantulus 1220. Кривая эффективности регистрации ^{151}Sm от гашения в образце была построена с использованием метода СИМАТ/NIST. Для измерения концентрации изотопов самария использовался масс-спектрометр Agilent 7700х, содержание гамма-излучателей оценивалось с помощью гамма-спектрометров BE-5030 и GEM 5825.

Результаты. Разработан способ определения ^{151}Sm в пробах почвы с использованием метода жидкостной сцинтилляционной спектрометрии. Средний химический выход составил 83 %, предел обнаружения – 0,01 Бк/г для времени измерения 60 мин. Зафиксированные значения удельной активности ^{151}Sm составили диапазон от 158 до 290 Бк/кг.

Ключевые слова:

Изотопы, радиоактивные элементы, почва, радиоактивное загрязнение, Семипалатинский испытательный полигон, ^{151}Sm , радиохимическое определение, жидкостная сцинтилляционная спектрометрия.

Введение

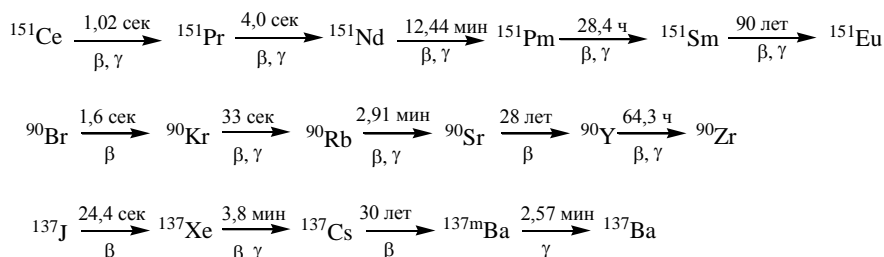
Почва является сложной и многокомпонентной системой, депонирующей различные токсиканты, в частности радиоактивные изотопы [1–9], которые могут по пищевым цепочкам попадать в организм человека [7]. Результатом ядерных испытаний, проведенных на территории Семипалатинского испытательного полигона (СИП), стало загрязнение почвенного покрова различными техногенными радионуклидами.

Одним из таких радионуклидов является ^{151}Sm с периодом полураспада порядка 90 лет [10–13]. Полный кумулятивный выход ^{151}Sm при делении изотопов ^{235}U , ^{239}Pu и ^{238}U равен 0,46, 1,29 и 0,83 % соответственно [14]. Оценочное количество ^{151}Sm , которое могло быть диспергировано в результате наземных и атмосферных испытаний на СИП, составляет $6,1 \cdot 10^5$ Ки [15].

Как известно, характер радиоактивного загрязнения почвенного покрова и его изотопный состав в значительной мере определяются параметрами ядерного испытания, а также теми физико-химическими процессами, которые протекают при взаимодействии почвенных частиц с высокотемпературной областью взрыва. В результате данного взаимодействия происходит фракционирование радионуклидов и нарушение соотношений между продуктами деления. Наиболее тугоплавкие элементы конденсируются на жидких частицах грунта и распределяются внутри частицы, а летучие элементы, или элементы, имеющие газообразных предшественников, конденсируются позже, иногда уже после затвердевания таких частиц. В результате этого крупные частицы, выпадающие из радиоактивного облака раньше, чем мелкие, оказываются обогащенными тугоплавкими изотопами, а мелкие – летучими [14].

Таким образом, следует полагать, что конденсация относительно тугоплавкого ^{151}Sm происходила рань-

ше, чем, например, ^{137}Cs или ^{90}Sr , которые имеют в своих цепочках распада инертные газы – ^{137}Xe и ^{90}Kr :



Тем не менее можно сделать предположение, что следы радиоактивных выпадений от атмосферных испытаний, обнаруженные по результатам гамма-спектрометрической съемки, могут косвенно указывать и на возможное присутствие ^{151}Sm , так как выпадение частиц должно было происходить главным образом вдоль траектории движения радиоактивного облака.

Для определения содержания ^{151}Sm могут использоваться методы жидкостной сцинтилляционной спектрометрии (ЖСС) и масс-спектрометрии с индуктивно связанной плазмой (ИСП-МС). К недостаткам масс-спектрометрических измерений относится главным образом изобарное наложение изотопа ^{151}Eu [16], который присутствует в природной смеси изотопов, а также образуется в результате распада ^{151}Sm .

К недостаткам использования жидкостной сцинтилляционной спектрометрии для измерения активности ^{151}Sm относится то, что максимальная энергия бета-излучения ^{151}Sm не превышает 77 кэВ [17, 18], в то время как для большинства других бета-излучателей энергии бета-частиц могут достигать нескольких сотен и тысяч кэВ. А так как распределение бета-спектра носит непрерывный характер, то требуется проведение тщательной радиохимической очистки от всех долгоживущих бета-излучателей.

Целью исследования является разработка способа определения ^{151}Sm в пробах почвы с использованием метода ЖСС.

Объекты и методы исследования

Для отработки методики использовались поверхностные пробы почвы, отобранные на территории СИП. При выборе исследуемых образцов ориентировались на наличие в них ^{137}Cs как возможного индикатора присутствия продуктов деления, в частности ^{151}Sm , и отсутствие радиоактивных изотопов $^{152,154,155}\text{Eu}$, которые ввиду близости химических свойств и более высоких энергий β -излучения будут являться основной помехой при бета-спектрометрических измерениях. Но так как изотопы $^{152,154,155}\text{Eu}$ являются продуктами нейтронной активации грунта, их активности в основном приурочены к эпицентральной зоне ядерных взрывов и не выходят за пределы испытательных площадок. Значения удельной активности ^{137}Cs в исследуемых образцах варьировали от 3,6 до 780 Бк/кг.

Пробы почвы отбирались точечно, площадь отбора составляла 100 см², глубина отбора – 5 см. Расположение точек отбора показано на рис. 1.

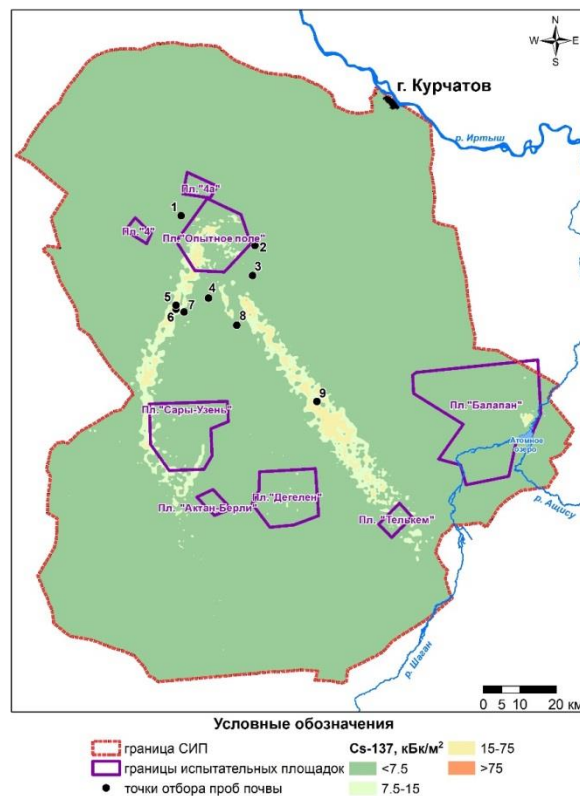


Рис. 1. Точки отбора проб
Fig. 1. Sampling points

Пробоподготовка

Из воздушно-сухих проб почвы квартованием отбирались навески массой 150–200 г, которые истирались на лабораторной мельнице до порошкообразного состояния. Из подготовленных таким образом гомогенных образцов отбирались усредненные навески массой 5 г, которые прокаливались в муфельной печи при температуре 550 °С в течение 6 часов.

Метод кислотного разложения проб почвы

Для учета потерь целевого радионуклида в анализируемые образцы предварительно вносилась добавка носителя Sm в количестве 0,5 мг. Минерализованные пробы почвы обрабатывались концентрированными растворами кислот (HF, HNO₃) и их смесями для разложения силикатной матрицы и перевода радионуклидов в растворенное состояние. Образующиеся фторидные соединения растворялись при последовательной обработке, при нагревании, растворами HNO₃ и HCl с добавлением борной кислоты (H₃BO₃).

Кислотность растворов после кислотного разложения должна соответствовать 7–8 М HNO_3 либо 8–9 М HCl для удержания изотопов Pu на анионите АВ 17·8. Однако наиболее предпочтительным выглядит проведение сорбции из среды 9 М HCl , так как в этом случае, помимо изотопов Pu, на анионите будут задерживаться ионы Fe^{3+} (что снизит степень гашения в спектрометрическом образце) и Co^{2+} (что будет иметь значение при наличии в пробах ^{60}Co).

Выделение и радиохимическая очистка

Выделение и радиохимическая очистка изотопов самария проводились с использованием методов ионного обмена и соосаждения. В общем виде схема анализа ^{151}Sm представлена на рис. 2.

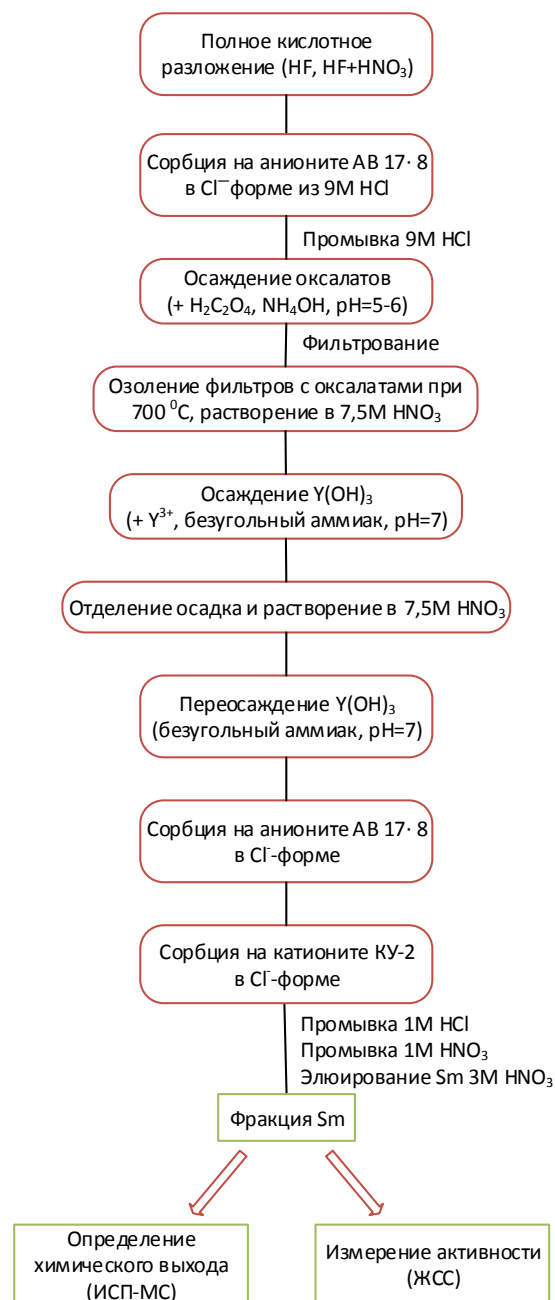


Рис. 2. Схема анализа ^{151}Sm

Fig. 2. Radiochemical procedure for determination of ^{151}Sm

Подготовка спектрометрического источника и измерение удельной активности

Перед подготовкой спектрометрического источника растворы с выделенной фракцией самария выдерживались не менее 14 дней для распада короткоживущего ^{90}Y ($T_{1/2}$ –64 ч.). Дальнейшая подготовка спектрометрического источника включала в себя: упаривание выделенной фракции Sm, растворение солевого остатка в небольшом количестве 4М HCl , количественный перенос в стеклянную сцинтилляционную вилу и смешивание с сцинтиллятором Ultima-Gold. Полученная смесь тщательно встряхивалась до полного растворения анализируемого образца и выдерживалась в темноте не менее 12 часов для устранения процессов хемилюминисценции. В качестве фонового образца использовался раствор соляной кислоты и сцинтиллятора, приготовленный аналогично анализируемым образцам. Время измерения каждого из образцов составило 60 мин.

Расчет удельной активности ^{151}Sm в исследуемых образцах производился согласно выражению:

$$A_{\text{уд.}} = \frac{(N - N_{\text{ф}}) \cdot 1000 \cdot 100\%}{m \cdot \omega\% \cdot 60 \cdot \varepsilon},$$

где N – скорость счета ^{151}Sm , имп/мин; $N_{\text{ф}}$ – скорость счета фона, имп/мин; ε – эффективность регистрации бета-частиц ^{151}Sm ; m – масса пробы, г; $\omega\%$ – химический выход носителя Sm, %.

Результаты и их обсуждение

Оценка влияния природного самария на величину химического выхода носителя

Согласно литературным данным, среднее содержание самария в почвах составляет порядка $5,7\text{--}8 \cdot 10^{-4}\%$ [19, 20], что при навеске пробы в 5 г может составить до 8 % от количества введенного носителя. В исследуемых образцах измеренное содержание природного самария варьирует от 0,3 до 0,5 мг/кг, что не превышает и 0,5 % от количества введенного носителя. Тем не менее наиболее целесообразным выглядит увеличение количества вводимого носителя до 1 мг/образец. Тогда вклад природного самария, рассчитанный относительно кларка, не будет превышать 4 %, а относительно экспериментально определенного количества – 0,25 %.

Средний химический выход Sm, согласно использованной схеме выделения (рис. 2), составил 83 %.

Оценка радиохимической очистки

Так как характер бета-спектров не позволяет идентифицировать имеющиеся в спектрометрическом образце радионуклиды, необходимо было провести оценку степени радиохимической очистки ^{151}Sm от естественных и искусственных бета-излучающих радионуклидов, период полураспада которых превышает 2 суток (^{40}K , ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{60}Co , ^{210}Pb , ^{210}Bi). Присутствие ^{40}K , ^{137}Cs , ^{60}Co и ^{210}Pb определялось по их собственным гамма-линиям, содержание ^{90}Sr оценивалось по гамма-излучателю ^{85}Sr (предварительно добавленному в образцы), наличие ^{210}Bi оценивалось по ^{214}Bi (табл. 1). Все остальные короткоживущие радионуклиды во внимание не принимались.

Таблица 1. Удельная активность гамма-излучателей во фракции самария, Бк/кг

Table 1. Specific activity of gamma-emitters in Sm-fraction, Bq/kg

^{40}K	^{214}Bi	^{137}Cs	^{60}Co	^{210}Pb	$^{85}\text{Sr}^*$
<40	<2,4	<0,8	<0,6	<7,7	5,2±0,9
<25	<1,4	<0,5	<0,4	<3,5	<1,0
<24	<1,3	<0,5	<0,4	<3,4	<0,8
<39	<2,3	<0,8	<0,5	<10	0,9±0,5
<45	<2,7	<0,9	<0,6	<9,3	<0,9

*Результаты пересчитаны с учетом распада.

*Results are given taking into account radioactive decay.

Как показывают результаты гамма-спектрометрического анализа (табл. 1), во фракции самария возможно присутствие некоторого остаточного количества изотопов стронция (так, в одном случае было обнаружено до 3,6 % от введенного количества ^{85}Sr). При этом удельные активности всех остальных рассматриваемых радионуклидов находятся ниже пределов обнаружения.

Очевидно, что той температуры, которая выделяется во время реакции нейтрализации (рис. 2), оказывается недостаточно для коагуляции и формирования крупнодисперсного осадка, что в свою очередь повлияло на степень адсорбции и захват примесных элементов, поэтому в дальнейшем следует вести осаждение $\text{Y}(\text{OH})_3$ из горячих растворов (70–80 °С). Однако, в виду того, что данная реакция протекает достаточно бурно и с разбрызгиванием раствора, необходимо использовать химические стаканы достаточной емкости. Также при переосаждении $\text{Y}(\text{OH})_3$ следует вносить в растворы добавку носителя стабильного стронция (10–20 мг), чтобы предотвратить соосаждение следовых количеств ^{90}Sr .

Построение кривой эффективности регистрации ^{151}Sm (кривой гашения)

Построение кривой зависимости эффективности регистрации ^{151}Sm от гашения в образце выполнялось с использованием метода СИМАТ/НИСТ [21–23]. Данный метод основан на сочетании теоретических расчетов, касающихся определяемого радионуклида и стандартного индикаторного радионуклида (в качестве которого выступает ^3H как наиболее подходящий), а также экспериментальных данных, которые характеризуют прибор, сцинтилляционный коктейль и определяемый радионуклид.

Последовательность получения кривой эффективности счета ^{151}Sm можно представить в виде следующих этапов:

- 1) измерение набора стандартов ^3H с различной степенью гашения (Ultima Gold Quenched Standards, с активностью 264 800 DPM) с построением зависимости эффективности счета ^3H от гашения в образце (рис. 3);
- 2) построение расчетной зависимости эффективности счета ^3H от добротности прибора (рис. 4);
- 3) построение из двух предыдущих соотношений так называемой «универсальной» кривой – зависимости добротности от гашения в образце (рис. 5);

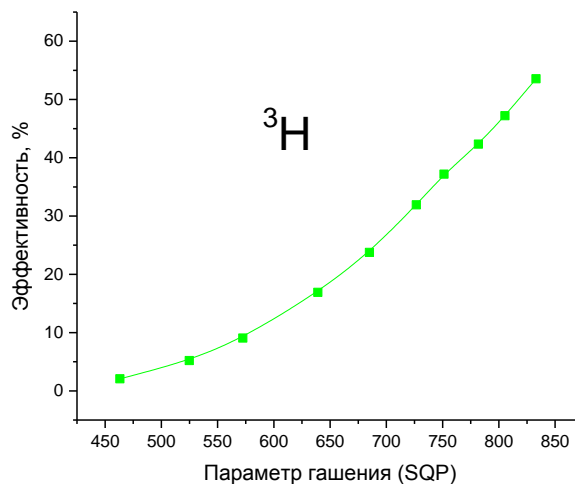


Рис. 3. Зависимость эффективности счета ^3H от гашения в образце

Fig. 3. Dependence of the ^3H counting efficiency on quenching in the sample

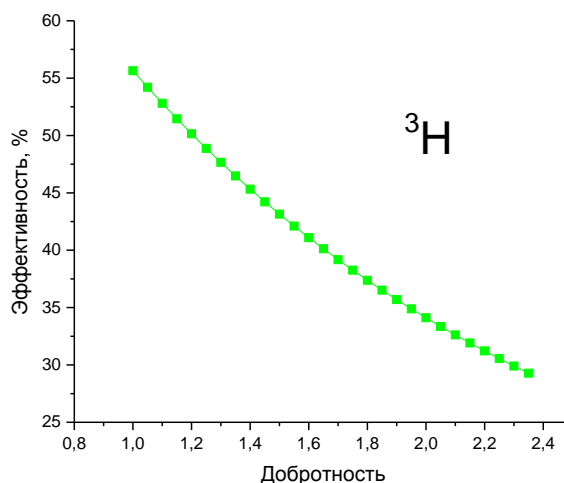


Рис. 4. Зависимость эффективности счета ^3H от добротности

Fig. 4. Dependence of the ^3H counting efficiency on free parameters

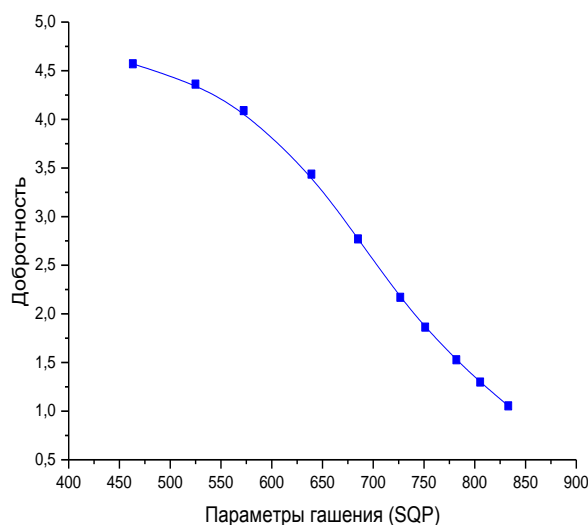


Рис. 5. Универсальная кривая

Fig. 5. Universal curve

Данная «универсальная» кривая не привязана ни к какому определенному радионуклиду и зависит только от конкретного используемого прибора и сцинтиллятора.

4) построение расчетной зависимости эффективности счета ^{151}Sm от добротности прибора (рис. 6);

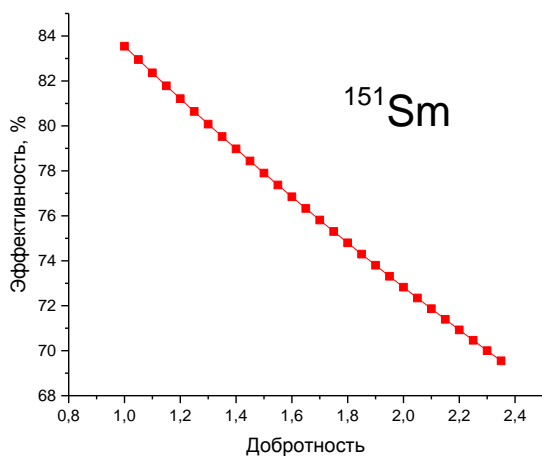


Рис. 6. Зависимость эффективности счета ^{151}Sm от добротности

Fig. 6. Dependence of the ^{151}Sm counting efficiency on free parameters

5) построение кривой гашения ^{151}Sm исходя из двух предыдущих соотношений (рис. 7).

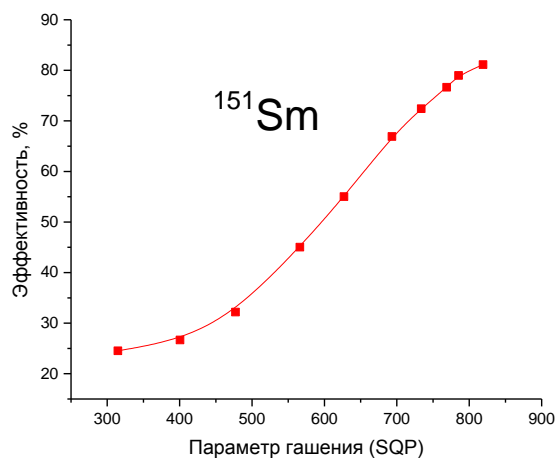


Рис. 7. Зависимость эффективности счета ^{151}Sm от гашения в образце (кривая гашения)

Fig. 7. Quench curve of ^{151}Sm

Минимально детектируемая активность (МДА)

Расчет МДА производился согласно выражению:

$$\text{МДА} = \frac{k^2 + 2k \cdot \sqrt{2N_{\phi} \cdot t}}{60 \cdot t \cdot \epsilon \cdot m}, \quad (1)$$

где k – коэффициент, определяющий уровень доверительной вероятности для измеряемой скорости счета;

m – масса пробы, г; ϵ – эффективность регистрации; N_{ϕ} – скорость счета фона, имп/мин; t – время измерения, мин.

МДА, рассчитанная согласно выражению (1), составила порядка 0,01 Бк/г для времени измерения 60 мин.

Оценка уровней содержания ^{151}Sm в поверхностных слоях почвы

Результаты радионуклидного анализа поверхностных проб почвы представлены в табл. 2.

Полученные численные значения активности ^{151}Sm находятся в диапазоне от 158 до 290 Бк/кг, что значительно ниже нормируемого уровня, составляющего для данного радионуклида $1 \cdot 10^4$ Бк/кг.

Корреляционный анализ полученных данных не позволил установить какую-либо зависимость между содержанием в почве ^{137}Cs и ^{151}Sm ($r=0,01$). Так, например, есть образцы, которые характеризуются относительно высоким содержанием ^{137}Cs и незначительным ^{151}Sm , и наоборот. Вполне вероятно, что на различие в характере поверхностного распределения ^{137}Cs и ^{151}Sm могло в значительной мере повлиять наличие у ^{137}Cs газообразных предшественников в цепочке распада.

Заключение

Разработан способ определения ^{151}Sm в пробах почвы с использованием метода жидкостной сцинтилляционной спектрометрии. Схема радиохимического выделения и очистки основана на последовательном ионном обмене и осаждении малорастворимых соединений. В ходе проведенных работ проанализировано влияние природного самария на химический выход носителя, проведена оценка радиохимической очистки ^{151}Sm от мешающих бета-излучателей, построена кривая эффективности регистрации ^{151}Sm от гашения в образце, проведен анализ проб почвы, отобранных на территории Семипалатинского испытательного полигона.

Средний химический выход изотопов самария, согласно использованной схеме выделения, составил 83 %, предел обнаружения – 0,01 Бк/г.

Численные значения удельной активности ^{151}Sm , зафиксированные для ряда исследованных образцов, находятся ниже нормативного значения. При этом какой-либо корреляционной зависимости между содержанием в почве ^{137}Cs и ^{151}Sm установлено не было. Полагаем, что различный характер поверхностного распределения ^{137}Cs и ^{151}Sm может быть обусловлен различиями в процессах формирования радиоактивного загрязнения при ядерных испытаниях, а именно наличием у ^{137}Cs газообразных предшественников, повлиявших на его распространение при выпадении радиоактивных частиц.

Таблица 2. Удельная активность радионуклида ^{151}Sm в пробах почвы

Table 2. ^{151}Sm specific activity in soil samples

Точка отбора Sampling point	1	2	3	4	5	6	7	8	9	холостая проба blank sample
^{151}Sm , Бк/кг/ Вq/g	<п.о./ L_d	181±27	168±25	<п.о./ L_d	<п.о./ L_d	176±26	158±24	290±40	186±28	<п.о./ L_d

п.о. – предел обнаружения (<0,01 Бк/г)/ L_d – limit detection (<0,01 Вq/g).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Почвоведение. В 2 ч. / под ред. В.А. Ковды, Б.Г. Розанова. – М.: Высшая школа, 1988. – Ч. 1. – 402 с.
2. Паницкий А.В., Лукашенко С.Н., Магашева Р.Ю. Особенности вертикального распределения радионуклидов в почвах бывшего семипалатинского испытательного полигона // Фундаментальные исследования. – 2013. – № 10. – С. 2231–2236.
3. Analysis on the influence of forest soil characteristics on radioactive Cs infiltration and evaluation of residual radioactive Cs on surfaces / Y. Mori, M. Yoneda, Y. Shimada, S. Fukutani, M. Ikegami, R. Shimomura // Journal of Environmental Monitoring and Assessment. – 2018. – V. 190 – № 256. – P. 1–23. DOI: 10.1007/s10661-018-6571-0
4. Yoschenko V., Kashparov V., Ohkubo T. Radioactive contamination in forest by the accident of Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant: comparison with Chernobyl // Radiocesium Dynamics in a Japanese Forest Ecosystem / Eds. C. Takenaka, N. Hiji, N. Kaneko, T. Ohkubo. – Singapore: Springer, 2019. – P. 3–22. DOI: 10.1007/978-981-13-8606-0_1
5. Global ^{137}Cs fallout inventories of forest soil across Japan and their consequences half a century later / E. Ito, S. Miura, M. Aoyama, K. Shichi // Journal of Environmental Radioactivity. – 2020. – V. 225 – P. 106421–106421. DOI: 10.1016/J.JENVRAD.2020.106421
6. Vertical distribution of ^{137}Cs in forest soil after the ground fires / I. Davydova, M. Korbut, H. Kreitseva, A. Panasiuk, V. Melnyk // Ukrainian Journal of Ecology. – 2019. – V. 9. – № 3. – P. 231–240. DOI: 10.15421/2019_84
7. Василенко И.Я. Радиоактивный цезий // Природа. – 1999. – № 3. – С. 70–76
8. Plutonium, ^{137}Cs and uranium isotopes in Mongolian surface soils / K. Hirose, K. Kikawada, Y. Igarashi, H. Fujiwara, D. Jugder, Y. Matsumoto, T. Oi, M. Nomura // Journal of Environmental Radioactivity. – 2017. – V. 166. – P. 97–103.
9. Формы нахождения ^{137}Cs и ^{90}Sr в почвах Брянской области / С.К. Лисин, Г.П. Симирская, Ю.Н. Симирский, Ю.Ф. Родионов, В.М. Шубко // Радиация и риск. – 1993. – Вып. 3 – С. 129–133.
10. Determination of the ^{151}Sm half-life / M.-M. Bè, H. Isnard, P. Cassette, X. Mougeot, V. Lourenço, T. Altitzoglou, S. Pommé et al. // Radiochimica Acta. – 2015. – V. 103. – № 9. – P. 619–626. DOI: 10.1515/ract-2015-2393
11. Miranda M.G., Russell B., Ivanov P. Measurement of ^{151}Sm in nuclear decommissioning samples by ICP-MS/MS // Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry. – 2018. – V. 316. – P. 831–838. DOI: 10.1007/s10967-018-5764-x
12. Analysis of environmental radionuclides. Handbook of radioactivity analysis / M. Jeřkovský, J. Kaizer, I. Kontůl, G. Lujanienė, M. Müllerová, P.P. Povinec. – Elsevier Ltd., 2019. – V. 2. – 1074 p. DOI: 10.1016/B978-0-12-814395-7.00003-9
13. Ojovan M.I., Lee W.E., Kalmykov S.N. An introduction to nuclear waste immobilisation (3rd ed.). – Elsevier Ltd, 2019. – 512 p. DOI: 10.1016/B978-0-08-102702-8.00011-X
14. Израэль Ю.А. Радиактивные выпадения после ядерных взрывов и аварий. – СПб: Прогресс-Погода, 1996. – 355 с.
15. Ядерные испытания СССР / В.Н. Михайлов, В.В. Адушкин, И.А. Андрушин, Н.П. Волошин, Ю.В. Дубасов, Р.И. Ильяев, В.Н. Михайлов, А.А. Спивак, А.К. Чернышев. – Саров, Изд-во РФЯЦ-ВНИИЭФ, 1997. – Т. 2. – 303 с.
16. Separation and purification and beta liquid scintillation analysis of ^{151}Sm in Savannah River Site and Hanford Site DOE high level waste / R.A. Dewberry, W.T. Boyce, N.E. Bibler, A.E. Ekechukwu, D.M. Ferrara // Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry. – 2002. – V. 252. – № 3. – P. 503–513.
17. Validation of radiochemical methods for the determination of difficult-to-measure nuclides using LSC / N. Vajda, Z. Molnar, E. Bokori, S. Osváth, D. Párkányi, M. Braun // Abstract from International Conference on Advances in Liquid Scintillation Spectrometry. – Copenhagen, Denmark, 2017. – P. 50–51.
18. Мартыненко В.П., Никифоров М.В., Павлов А.А. Гамма-излучение продуктов мгновенного деления U^{235} , U^{238} , Pu^{239} . – Л.: Гидрометеиздат, 1971. – 247 с.
19. Справочник по геохимии / Г.В. Войткевич, А.В. Кокин, А.Е. Мирошников, В.Г. Прохоров. – М.: Недра, 1990. – 480 с.
20. Григорьев Н.А. О кларковом содержании химических элементов в верхней части континентальной коры // Литосфера. – 2002. – № 1. – С. 61–71.
21. Gunther E. What can we expect from the CIEMAT/NIST method? // Journal of Applied Radiation and Isotopes. – 2002. – V. 56. – P. 357–360.
22. Dobrin R.I., Pavelescu M., Dulama C.N. Measurements of beta ray emitters in LSC using efficiency tracing CIEMAT/NIST method // Romanian Journal of Physics. – 2011. – V. 56. – P. 1148–1155.
23. Altitzoglou T., Rožkov A. Standardisation of the ^{129}I , ^{151}Sm and $^{166\text{m}}\text{Ho}$ activity concentration using the CIEMAT/NIST efficiency tracing method // Journal of Applied Radiation and Isotopes. – 2016. – V. 109. – P. 281–285. DOI: 10.1016/j.apradiso.2015.12.048

Поступила 15.04.2022 г.

Информация об авторах

Сальменбаев С.Е., начальник группы лаборатории радиохимических исследований Института радиационной безопасности и экологии Национального ядерного центра Республики Казахстан; аспирант Алтайского государственного аграрного университета.

Берикхан К.А., техник лаборатории ядерно-физических методов анализа Института радиационной безопасности и экологии Национального ядерного центра Республики Казахстан.

Мухамедияров Н.Ж., ведущий инженер лаборатории элементного анализа Института радиационной безопасности и экологии Национального ядерного центра Республики Казахстан.

Жамалдинов Ф.Ф., начальник лаборатории ядерно-физических методов анализа Института радиационной безопасности и экологии Национального ядерного центра Республики Казахстан.

Харченко А.А., инженер лаборатории ядерно-физических методов анализа Института радиационной безопасности и экологии Национального ядерного центра Республики Казахстан

Мустафина К.Т., техник лаборатории ядерно-физических методов анализа Института радиационной безопасности и экологии Национального ядерного центра Республики Казахстан.

UDC 546.659:539.16: 504.06:504.53

DETERMINATION OF ^{151}Sm IN SOIL SAMPLES BY USING LIQUID SCINTILLATION COUNTING METHOD

Sayan E. Salmenbaev^{1,2},
salmenbayev@nnc.kz

Kaiyrzhan A. Berikhan¹,
berikhan_kaiyrzhan@nnc.kz

Nurlan Zh. Mukhamediyarov¹,
mukhamediyarov@nnc.kz

Fail F. Zhamaldinov¹,
zhamaldinov@nnc.kz

Artem A. Kharchenko¹,
kharchenko@nnc.kz

Kuralay T. Mustafina¹,
Kuralay@nnc.kz

¹ National Nuclear Center of the Republic of Kazakhstan,
2, Beibit Atom street, Kurchatov, 071100, Kazakhstan.

² Altai State Agrarian University,
98, Krasnoarmeyskiy avenue, Barnaul, 656049, Russia.

The relevance. One of the relatively long-lived nuclear fission products is ^{151}Sm ($T_{1/2} \sim 90$ years). The total cumulative yield of ^{151}Sm upon fission of the isotopes ^{235}U , ^{239}Pu and ^{238}U is 0,46, 1,29 and 0,83 %, respectively. The estimated amount of ^{151}Sm that could have been dispersed during ground and atmospheric tests at Semipalatinsk test site is $6,1 \cdot 10^5$ Ci. The current situation with the levels of radioactive contamination of the soil cover with this radionuclide is still unknown.

The aim of the research is to develop the method for radiochemical determination of ^{151}Sm in Semipalatinsk test site soils using liquid scintillation spectrometry.

Objects. Surface soil samples were taken from the territory of the former Semipalatinsk test site. The main sampling criteria were the presence of ^{137}Cs as a possible indicator of the presence of ^{151}Sm and the absence of radioactive isotopes of Eu as the main interfering radionuclide. The specific activity of ^{137}Cs in the samples under study varied from 3,6 to 780 Bq/kg.

Methods. The proposed method for ^{151}Sm determination includes complete dissolution of the samples with concentrated acids (HF and HNO_3 and their mixtures), isolation and radiochemical purification with ion exchange resins, as well as precipitation of poorly soluble substances. In order to determine the chemical yield, 0,5 mg of Sm-carrier was added to each sample as an indicator. The quenching curve for ^{151}Sm was prepared using the CIEMAT/NIST approach. The ^{151}Sm specific activity was measured using Quantulus 1220 LSC.

Results. The radiochemical purification of the ^{151}Sm fraction from interfering beta emitters was analyzed and evaluated, as well as the effect of natural samarium on the chemical yield. The contribution of natural samarium regarding to the clarke does not exceed 8 % (for 5 g soil sample), and in relation to the experimentally measured amount – 0,5 %. However, it seems more expedient to double the amount of the added carrier (up to 1 mg per sample), which will reduce the contribution of natural samarium to 4 % (relative to the clarke). Gamma-spectrometric measurements of the isolated samarium fraction indicate the possibility of its contamination with some residual amount of strontium isotopes (^{85}Sr was used as an indicator), the maximum amount of which, obviously, does not exceed 5 %. The specific activity of all other considered radionuclides is below the detection limits. MDA value obtained for ^{151}Sm in this work was in the region of 0,01 Bq/g. The mean chemical recovery of ^{151}Sm was 83 %. The specific activity of ^{151}Sm in surface soil ranged from 158 to 290 Bq/kg.

Key words:

Isotopes, radioactive elements, soil, radioactive contamination, Semipalatinsk test site, ^{151}Sm , radiochemical determination, liquid scintillation counting.

REFERENCES

- Kovda V.A., Rozanova B.G. *Pochvovedenie* [Soil science]. Moscow, Vysshaya shkola Publ., 1988. Vol. 1, 402 p.
- Panitskiy A.V., Lukashenko S.N., Magasheva R.Yu. *Osobennosti vertikalnogo raspredeleniya radionuklidov v pochvakh byvshego semipalatinskogo ispytatelnogo poligona* [The features of the vertical distribution of radionuclides in the soils of the former Semipalatinsk test site]. *Fundamental research*, 2013, no. 10, pp. 2231–2236.
- Mori Y., Yoneda M., Shimada Y., Fukutani S., Ikegami M., Shimomura R. Analysis on the influence of forest soil characteristics on radioactive Cs infiltration and evaluation of residual radioactive Cs on surfaces. *Journal of Environmental Monitoring and Assessment*, 2018, vol. 190, no. 256, pp. 1–23. DOI: 10.1007/s10661-018-6571-0
- Yoschenko V., Kashparov V., Ohkubo T. Radioactive contamination in forest by the accident of Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant: comparison with Chernobyl. *Radiocesium Dynamics in a Japanese Forest Ecosystem*. Eds. C. Takenaka, N. Hiji, N. Kaneko, T. Ohkubo. Singapore, Springer, 2019. pp. 3–22. DOI: 10.1007/978-981-13-8606-0_1
- Ito E., Miura S., Aoyama M., Shichi K. Global ^{137}Cs fallout inventories of forest soil across Japan and their consequences half a century later. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2020, vol. 225, pp. 106421–106421. DOI: 10.1016/j.jenvrad.2020.106421
- Davydova I., Korbut M., Kreitseva H., Panasiuk A., Melnyk V. Vertical distribution of ^{137}Cs in forest soil after the ground fires. *Ukrainian Journal of Ecology*, 2019, vol. 9, no. 3, pp. 231–240. DOI: 10.15421/2019_84
- Vasilenko I.Ya. Radioaktivny tseziy [Radioactive cesium]. *Priroda*, 1999, no. 3, pp. 70–76.
- Hirose K., Kikawada K., Igarashi Y., Fujiwara H., Jugder D., Matsumoto Y., Oi T., Nomura M. Plutonium, ^{137}Cs and uranium isotopes in Mongolian surface soils. *Journal of Environmental Radioactivity*, 2017, vol. 166, pp. 97–103.
- Lisin S.K., Simirskaya G.P., Simirskiy Yu.N., Rodionov Yu.F., Shubko V.M. *Formy nakhozhdeniya ^{137}Cs i ^{90}Sr v pochvakh Bryanskoy oblasti* [Forms of occurrence of ^{137}Cs in soils of the Bryansk region]. *Radiatsiya i risk*, 1993, vol. 3, pp. 129–133.
- Bé M.-M., Isnard H., Cassette P., Mougeot X., Lourenço V., Altitzoglou T., Pommé S. Determination of the ^{151}Sm half-life. *Radiochimica Acta*, 2015, vol. 103, no. 9, pp. 619–626. DOI: 10.1515/ract-2015-2393

11. Miranda M.G., Russell B., Ivanov P. Measurement of ^{151}Sm in nuclear decommissioning samples by ICP-MS/MS. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 2018, vol. 316, pp. 831–838. DOI: 10.1007/s10967-018-5764-x
12. Jeřkovský M., Kaizer J., Kontuľ I., Lujanienė G., Müllerová M., Povinec P.P. *Analysis of environmental radionuclides. Handbook of Radioactivity Analysis*. Elsevier Ltd., 2019. Vol. 2, 1074 p. DOI: 10.1016/B978-0-12-814395-7.00003-9
13. Ojovan M.I., Lee W.E., Kalmykov S.N. *An introduction to nuclear waste immobilisation* (3rd ed.). Elsevier Ltd, 2019. 512 p. DOI: 10.1016/B978-0-08-102702-8.00011-X
14. Izrael Yu.A. *Radiaktivnye vypadeniya posle yadernykh vzryvov i avarií* [Radioactive fallout after nuclear explosions and accidents]. St. Peterburg, Progress-Pogoda Publ., 1996. 355 p.
15. Mikhaylov V.N., Adushkin V.V., Andryushin I.A., Voloshin N.P., Dubasov Yu.V., Ilkaev R.I., Mikhaylov V.N., Spivak A.A., Chernyshev A.K. *Yadernye ispytaniya SSSR* [Nuclear tests conducted in the USSR]. Sarov, RFYAC-VNIIEF Publ., 1997. No. 2, 303 p.
16. Dewberry R.A., Boyce W.T., Bibler N.E., Ekechukwu A.E., Ferrara D.M. Separation and purification and beta liquid scintillation analysis of ^{151}Sm in Savannah River Site and Hanford Site DOE high level waste. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 2002, vol. 252, no. 3, pp. 503–513.
17. Vajda N., Molnar Z., Bokori E., Osváth S., Párkányi D., Braun M. Validation of radiochemical methods for the determination of difficult-to-measure nuclides using LSC. *Abstract from International Conference on Advances in Liquid scintillation Spectrometry*. Copenhagen, Denmark, 2017. pp. 50–51.
18. Martynenko V.P., Nikiforov M.V., Pavlov A.A. *Gamma-izluchenie produktov mgnovennogo deleniya U^{235} , U^{238} , Pu^{239}* [Gamma radiation from instant fission products of U^{235} , U^{238} , Pu^{239}]. Leningrad, Gidrometeoizdat Publ., 1971. 247 p.
19. Voytkovich G.V., Kokin A.V., Miroshnikov A.E., Prokhorov V.G. *Spravochnik po geokhīmii* [Handbook of Geochemistry]. Moscow, Nedra Publ., 1990. 480 p.
20. Grigorev N.A. O klarkovom sodержanii khimicheskikh elementov v verkhney chasti kontinentalnoy kory [Clarke content of chemical elements in the upper part of the continental crust]. *Litosfera*, 2002, no. 1, pp. 61–71.
21. Gunther E. What can we expect from the CIEMAT/NIST method? *Journal of Applied Radiation and Isotopes*, 2002, vol. 56, pp. 357–360.
22. Dobrin R.I., Pavelescu M., Dulama C.N. Measurements of beta ray emitters in LSC using efficiency tracing CIEMAT/NIST method. *Romanian Journal of Physics*, 2011, vol. 56, pp. 1148–1155.
23. Altizoglou T., Rožkov A. Standardisation of the ^{129}I , ^{151}Sm and ^{166m}Ho activity concentration using the CIEMAT/NIST efficiency tracing method. *Journal of Applied Radiation and Isotopes*, 2016, vol. 109, pp. 281–285. DOI: 10.1016/j.apradiso.2015.12.048

Received: 15 April 2022.

Information about the authors

Sayan E. Salmenbaev, team leader, National Nuclear Center of Kazakhstan; the postgraduate, Altai State Agrarian University.

Kayirjan A. Berikkhan, technician, National Nuclear Center of Kazakhstan.

Nurlan Zh. Mukhamediyarov, lead engineer, National Nuclear Center of Kazakhstan.

Fail. F. Zhamaldinov, head of the laboratory, National Nuclear Center of Kazakhstan.

Artem A. Kharchenko, engineer, National Nuclear Center of Kazakhstan.

Kuralay T. Mustafina, technician, National Nuclear Center of Kazakhstan.