

УДК 539.1.073 + 543.522

ВИЗНАЧЕННЯ ВМІСТУ Sb В ЗРАЗКАХ “ПРЕМІКСУ” ТА НАВКОЛИШНІХ ГРУНТАХ МЕТОДОМ НЕЙТРОННО-АКТИВАЦІЙНОГО АНАЛІЗУ

Парлаг О.О., Маслюк В.Т., *Бузаш В.М., *Чундак С.Ю., *Климотюк А.М.

*Інститут електронної фізики Національної академії наук України,
88016 м. Ужгород, вул. Університетська, 21.*

**Ужгородський національний університет, 88000 м. Ужгород, вул. Підгірна, 46.*

ВСТУП

Один із негативних чинників антропогенного впливу на довкілля, зокрема на стан ґрунтів Закарпатської області, є наявність великих об'ємів токсичних промислових відходів, які складаються і зберігаються в неналежних умовах[1].

Прикладом такого впливу стала екологічна проблема, пов'язана із завезенням на територію Закарпаття порошкоподібної речовини під маркою мінеральні добавки – „Премікс”. Результати експертизи, проведеної фахівцями Інституту еко-гігієни і токсикології ім. Л.Медведя [2], вказують, що так звані „Премікс” - це високотоксичні відходи, які відносяться до першого класу небезпеки і повинні зберігатися в спеціальних герметичних ємностях. Ця речовина є надзвичайно небезпечна, перевищення в ній норми вмісту важких металів становить для Ni - в 8 разів, Pb - в 3-8, Cr - в 40-50, Zn - в 220, Cu - в 1000 разів.

Мета представленої роботи – визначення вмісту Sb [3] в “преміксі” та в навколишніх ґрунтах методом нейтронно-активаційного аналізу, для дослідження ролі “преміксу” в забрудненні навколишньої території.

ЕКСПЕРИМЕНТАЛЬНА ЧАСТИНА

Для визначення вмісту Sb у пробах ґрунту та “преміксу” використовувався метод неdestructивного нейтронно-

активаційного аналізу [4]. Аналіз проводився відносним методом, тобто проводилася одночасна активація еталонних та досліджуваних (ґрунти і “премікс”) зразків[5].

Для аналізу відібрано 8 проб ґрунту вагою ~ 1 - 2 кг. Також для аналізу був відібраний сам премікс. Відбір проб ґрунту і “преміксу” був здійснений 23 лютого 2006 р. в місці розташування відходів біля с. Мужієво Берегівського району Закарпатської області.

Проби ґрунту відбирались безпосередньо біля мішків з преміксом – проба №1 – 0 м та в радіусі до 60 м від звалища преміксу: №2 – 1 м, №3 – 2,5 м, №4 – 5 м, №5 – 7,5 м, №6 – 10 м, №7 – 20 м, №8 – 50 м. Забір проб ґрунту здійснювався на глибину до 10 см від поверхні, формуючи середню пробу за “правилом конверту”, що полягає у відборі зразків у 4-х точках, рівновіддалених від центральної. Навколо кожного місця відбору робили не менше як 4-5 прокопів.

Після відбору, зразки ґрунту висушувались при кімнатній температурі. Висушений ґрунт був подрібнений у фарфоровій ступці з гумовим наконечником і просіяний через сито. Кожен зразок був зважений на повірених аналітичних вагах. Проби ґрунту і “преміксу” розміщалися у стандартних спеціальних контейнерах з пластмаси товщиною 0.2 мм та об'ємом 0.2 дм³, у яких і здійснювалася їх подальша активація і виміри гамма-активності.

У якості еталонів використовувався металічний Sb, змішаний з чистим кварцовим піском. Було приготовано 4 еталонні зразки з різними концентраціями досліджуваного елементу. Еталонні зразки, як і досліджувані,

розміщалися у стандартних спеціальних контейнерах з пластмаси.

Матеріал контейнерів, в яких проводилася активація та виміри досліджуваних зразків і еталонів, не впливав на величину значення похибки при визначенні вмісту Sb.

Для активації зразків використовувалося ізотопне Pu- α -Be джерело, нейтрони якого сповільнювалися до теплових енергій за допомогою стандартних блоків „neutron-stop” [6]. Час активації був однаковий для усіх досліджуваних зразків і становив 100 годин.

Вміст Sb у об'єктах досліджень визначався по інтенсивності аналітичної гамма-лінії з енергією 564.0 кеВ ізотопу ^{122}Sb – продукту реакції $^{121}\text{Sb}(n_{\text{th}},\gamma)^{122}\text{Sb}$. Період напіврозпаду вказаного ізотопу становить 2.681 днів.

Проведена оцінка оптимальних параметрів експериментальних досліджень (часових режимів активації, витримки і вимірів) зразків виходячи з ядерно-фізичних характеристик [7].

Для вимірів гамма-лінії активованих зразків використовувався сертифікований спектрометричний комплекс "SBS-40" з коаксіальним напівпровідниковим Ge(Li)-детектором, об'ємом 100 см³, який розміщувався у комбінованому захисті типу "будинка" з шарами міді 8 мм, алюмінію 3 мм, кадмію 1 мм та свинцю 95 мм. Роздільна здатність гама-спектрометру складала 2.0 кеВ для лінії ^{57}Co з енергією 122.06 кеВ та 3.3 для лінії ^{60}Co - 1332.50 кеВ. Ефективність спектрометра визначалася за допомогою стандартного об'ємного джерела ^{152}Eu та комбінованих зразків ^{40}K - ^{137}Cs , які розміщувалися у контейнерах, об'єм та конфігурація яких була аналогічна контейнерам для зразків проб (рис. 1.).

Була проведена серія досліджень фонових умов вимірів детектуючої системи, тобто власного фону установки. Значення абсолютних активностей при вимірі фону (детектор у захисті) були: для ізотопів ^{40}K ~ 77.6 Бк/кг, ^{214}Pb ~ 4.3 Бк/кг, ^{226}Ra ~ 2.4 Бк/кг, ^{235}U ~ 2.0 Бк/кг. Час вимірів змінювався у межах від 1-ї до 4-х годин.

Результати вимірів свідчать про сталість власного фону установки.

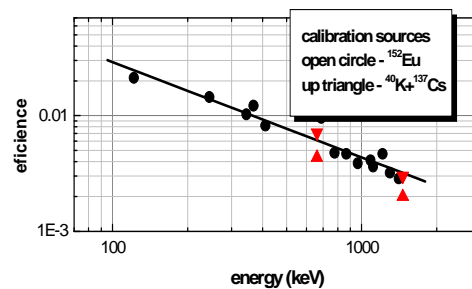


Рис. 1. Графік залежності абсолютної ефективності спектрометра від енергії гамма-квантів для об'ємних атестованих джерел ^{152}Eu (точки), $^{40}\text{K} + ^{137}\text{Cs}$ (трикутники). Пряма – результат апроксимації експериментальних даних. Час вимірювання – 5000 сек.

Перед вимірюванням активованих зразків, для контролю було проведено вимір гамма-активності неактивованих проб. Всі виміри проходили в однакових геометричних і часових умовах. Час виміру складав 5000 с.

Під час проведення вимірів постійно здійснювався контроль спектрометричного комплексу за наступними параметрами: дрейф каналів, роздільна здатність та ефективність реєстрації випромінювання гама-нуклідів. Виміри показали, що зміна вказаних параметрів протягом часу вимірювання не перевищувала 1 %.

На рисунках 2 - 4 представлені типові гамма-спектри, що були отримані в ході експерименту.

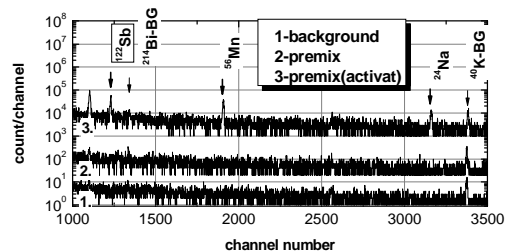


Рис. 2. Фрагменти гамма-спектрів: 1 – фон, 2 – «премікс» неактивований, 3 – «премікс» активований.

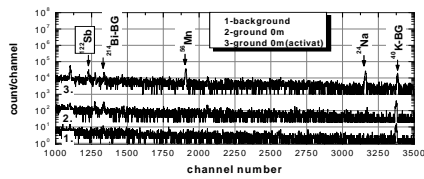


Рис. 3. Фрагменти гамма-спектрів: 1 – фон, 2 – «премікс» неактивований, 3 – «премікс» активований.

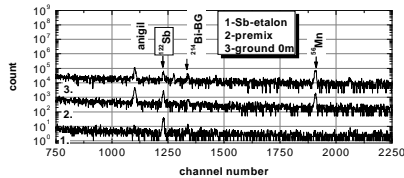


Рис. 4. Фрагменти гамма-спектрів: 1 – фон, 2 – «премікс» неактивований, 3 – «премікс» активований.

РЕЗУЛЬТАТИ ТА ЇХ ОБГОВОРЕННЯ

Активаци́йний коефіцієнт, який використовувався для знаходження вмісту Sb в зразках ґрунту та «преміксу», визначався з сукупності набутих експериментальних значень інтенсивності аналітичної гамма-лінії від маси еталонних зразків при заданих часових інтервалах методом найменших квадратів.

На Рис. 5 представлено залежність маси Sb від інтенсивності аналітичної гамма-лінії та їх експериментальні значення.

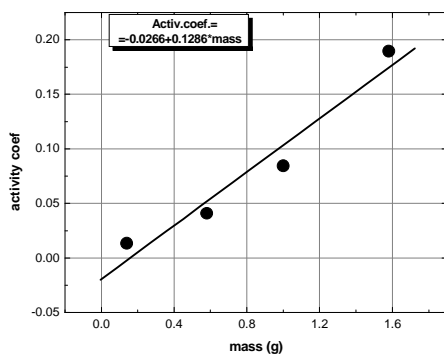


Рис. 5. Залежність маси Sb від інтенсивності аналітичної гамма-лінії та їх експериментальні значення.

Статистична похибка окремої серії вимірів обумовлена похибкою визначення

активаційного коефіцієнту, яка в свою чергу залежала від точності виміру інтенсивності піку повного поглинання аналітичної лінії, часових інтервалів та значень ядерно-фізичних констант, що використовували для розрахунку.

Умовами активації виключалася похибка, викликана впливом побічних ядерних реакцій утворення ізотопу, що ідентифікується [8].

Похибка, обумовлена неоднорідністю густини потоку теплових нейтронів внаслідок збурень, що вносяться сповільнювачем нейтронів і конструкційними матеріалами, а також самоекрануванням при проведенні аналізу – постійна [9].

Сумарна похибка кожного окремого визначення не перевищувала ~ 10 %.

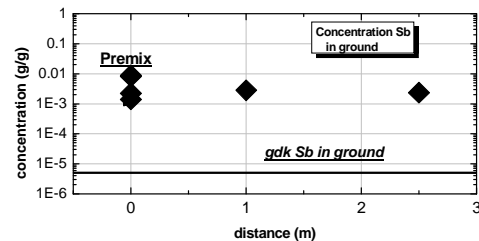


Рис. 6. Концентрація Sb у «преміксі» і пробах ґрунту в порівнянні з ГДК у ґрунті.

В результаті проведених досліджень, встановлено, що концентрація Sb у пробах ґрунтів, відібраних в радіусі 5 м від звалища, суттєво перевищує граничнодопустимі норми. Так, при ГДК стибію в ґрунті 4,5 мг/кг ($4,5 \cdot 10^{-3}$ г/кг), його вміст в ґрунті складав 1,8 г/кг (проба «0 м»), а в «преміксі» – 8,5 г/кг.

В пробах ґрунту, які відбиралися на віддалі більше 5 м від звалища відходів «преміксу», при використаних параметрах аналізу, Sb не виявлено. На Рис. 6 ромбами представлено значення концентрації Sb у «преміксі» і пробах ґрунту. Пряма – значення ГДК у ґрунті.

ВИСНОВКИ

Методом нейтронно-активаційного аналізу, з застосуванням точкового Pu- α -Be джерела нейтронів, визначено вміст Sb у «преміксі» і 8 пробах ґрунту, відібраних в радіусі 60 м від звалища. Додатково проведено аналіз на вміст Sb в пробах ґрунту, відібраних

на чистих територіях. Достовірно встановлено, що концентрація Sb у пробах ґрунтів, відібраних в радіусі 5 м від звалища, суттєво перевищує граничнодопустимі норми. В пробах ґрунту, які відбиралися на віддалі більше 5 м від звалища відходів, при використаних параметрах аналізу, Sb не виявлено.

З огляду на отримані нами результати видно, що дослідження впливу “преміксу” на довкілля є актуальними і його необхідно продовжувати.

ЛІТЕРАТУРА

1. Звіт про стан навколишнього природного середовища в Закарпатській області за 2004 рік. / Державне управління екології та природних ресурсів в Закарпатській області.
2. Звіт за результатом проведених токсиколого-гігієнічних досліджень зразків порошкоподібної речовини в Інституті екогігієни і токсикології ім. Л. І. Медведя від 25.04.2005 р.
3. Сурьма.
<http://kodomo.cmm.msu.ru/~cossack/term1.html>

4. Zeev B. Alfassi Instrumental Neutron Activation Analysis. // In Encyclopedia of Analytical Chemistry. R.A. Meyers (Ed.) © John Wiley & Sons Ltd, Chichester, 2000 - P. 12497 – 12526.
5. Парлаг О.О., Маслюк В.Т., Сантоній Д.О. та інш. Визначення вмісту золота в об'ємних зразках методом нейтронно-активаційного аналізу з використанням ізотопного джерела нейтронів. // Науковий вісник Ужгородського університету. Серія хімія. – 2005. – Вип. 13-14. – С. 167 – 170.
6. Источники нейтронов радионуклидные закрытые на основе плутония-238-бериллия. ГОСТ 26847-86. Стандарты НТЦ РАДЭК. 2005.
www.radek.ru/standart.html
7. Ekstrum L.P. and Firestone R.B., WWW Table of Radioactive Isotopes, database version 2/28/99 from URL <http://ie.lbl.gov/toi/index.htm>
8. Пономарчук В.А., Пархоменко В.С., Шипицин Ю.Г. и др. Погрешности на этапе измерения и обработки спектров в инструментальном нейтронно-активационном анализе. // В кн.: Спектрометрические методы анализа в геохимии. – Новосибирск. – 1980. – С. 5 –
9. Tustanovsky V.T. Estimation of of activation analysis accuracy and sensitivity // М.: Atomizdat, 1976, – P. 192.

DETERMINATION OF THE Sb CONTENT IN THE “PREMIX” AND ENVIRONMENTAL SOIL SAMPLES BY NEUTRON-ACTIVATION ANALYSIS

Parlag O.O., Maslyuk V.T., *Buzash V.M., *Chyndak S.Yu., *Klimpotyuk A.M.

Determination of Sb in soil and “premix” is certain by the method of neutron-activating analysis. There is the substantial exceeding maximum of possible norms on maintenance to the Sb.