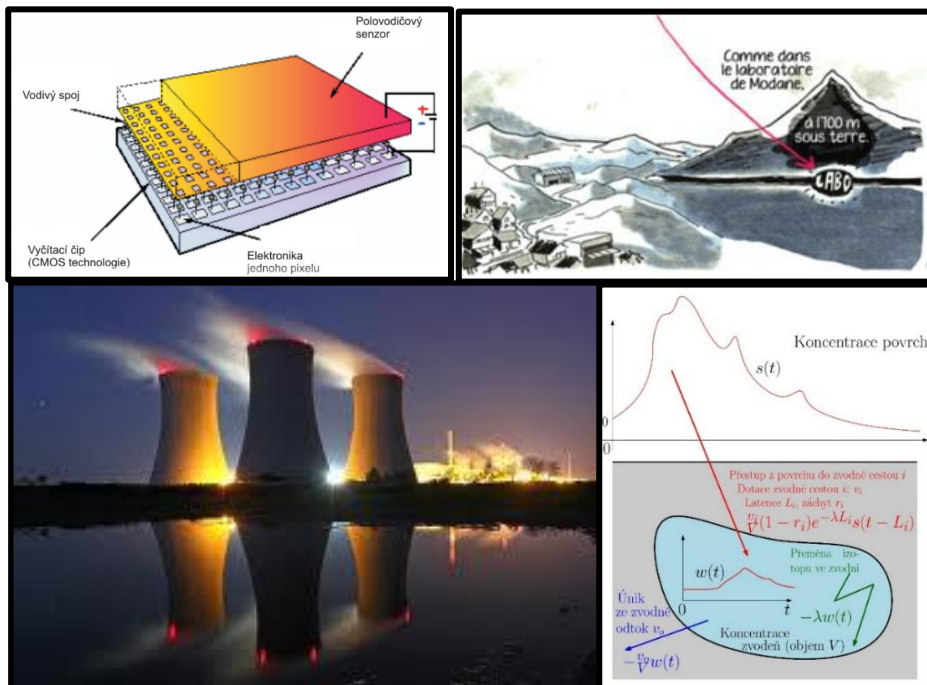


Inovativní metody detekce ultranízkých koncentrací radionuklidů k hodnocení zranitelnosti zdrojů pitné vody při jaderné havárii – IMDUKR



Michal Fejgl, Eva Juranová

Související projekt – SPOLMURA 2017-2020 VI20172020083

- Bylo vyvinuto monitorovací zařízení určené k havarijnímu monitorování aktivity gama v povrchových vodách
- Geometrie měření – ponorná sonda NaI(Tl)
- Zařízení je autonomní, „automatické“ a díky zapojení strojového učení do zpracování spekter vykazuje mimořádně vysokou citlivost
- Umožňuje také měření pro potřeby normálního monitorování
- Od roku 2019 je v ČR provozována provizorní monitorovací síť
- Vyvinuté zařízení zvýšilo dostupnost kontinuálního monitorování radioaktivity v povrchových vodách

| | Integration time | Monitoring site | | |
|---------------------------------|------------------|-----------------|----------|----------|
| | | Praha | Ivančice | Kořensko |
| Cs-137 MDA [Bq/L] "all spectra" | 10 minutes | 1.41 | 0.85 | 0.35 |
| | 24 hours | 0.12 | 0.07 | 0.03 |



• **Povrchové vody**

- Pokrývají 45 % spotřeby pitné vody v ČR
- V případě mimořádné události jsou mimořádně zranitelné radioaktivní kontaminací
- V takovém případě by veškerá spotřeba pitné vody byla nahrazena z **podzemních zdrojů**
- Nezodpovězená otázka: **Po jak dlouhou dobu po kontaminaci území ČR zůstanou podzemní zdroje pitné vody ochráněné před radioaktivní kontaminací?**

→ **výzkumné téma s cílem**

- Charakterizovat 152 hydrogeologických rajónů v ČR podle specifické zranitelnosti radioaktivní kontaminací. Připravit nástroje, které umožní orgánům státní správy uskutečnit rychlé rozhodování ohledně využívání podzemní vody za mimořádné radiální situace.
- Těmito nástroji budou mapy specifické zranitelnosti a software popisující specifickou zranitelnost zvodní v okolí JE ČR.

• **Realizace vyžaduje**

- ▶ Znalost hydrogeologických parametrů zvodní a jejich nadloží
- ▶ Uskutečnění měření reziduální kontaminace s využitím **H-3, Sr-90 a Cs-137 jako stopovačů**

Tritium vykazuje stejnou mobilitu jako voda, chování stroncia a cezia je specifické

Dovednosti dostupných analytických metod a aktivity v radionuklidů v ŽP

| Method | Radionuclide | MDA (mBq/L) | Residual AC in surface waters (mBq/L) |
|-------------------------------|--------------|-------------|---------------------------------------|
| Electrolytical enrichment+LSC | H-3 | 50 | 800 |
| "Oxalate" concentration+GPC | Sr-90 | 1 | 6 |
| Carbonate cop.+HPGe gamma | Cs-137 | 0.2 | 1 |

Tritium

- Citlivost dostupné metody je pro stopování postačující
- Při průsaku je jeho retence nevýznamná, přímé stopování vody
- Rychle přiteče, rychle odteče
- Vlastní radiační zátěž není rozhodující

Sr-90 a Cs-137

- Významná radiační zátěž, dlouhé poločasy
- Obtížná predikce průniku do zvodně
- Citlivost stanovení není postačující pro stopování reziduální kontaminace v podzemních vodách
- Pro smysluplné stanovení migrace reziduální kontaminace Sr a Cs je nutné zvýšit citlivost analytických postupů nejméně o 1 řád.

Mohou tyto zdroje být ovlivněny dlouhodobými radionuklidy Sr-90 a Cs-137?

Pravděpodobně ne, protože (Bugai et al. 1996, Heinz et al. 1990)

- Stroncium a Cezium jsou akumulovány v půdním překryvu v systému tektonických poruch.
- Následky Černobylské havárie ukazují pomalou migraci těchto prvků (X0 cm/rok), v Kyjevském regionu jsou aktivity ^{90}Sr a ^{137}Cs podzemních vod typicky o 1-2 řady nižší než v povrchových vodách
- Ochráněnost podzemních vod je zajištěna především sorpční kapacitou půdního překryvu. Cs^+ ion (1,69 Å) je silně vázán na mezivrstvy jílových minerálů, Sr^{2+} ion (1,13 Å) je díky menším rozměrům mobilnější a zůstává ve vyměnitelných formách.
- Pouze 0,02 % inventáře kontaminace je ročně uvolněno z půdního rezervoáru v Černobyli
- Je-li pitná voda zajištěna ze zdrojů pod glaciálními sedimenty jako v Dánsku, lze konstatovat, že voda je téměř úplně ochráněna před kontaminací z jaderného spadu. Za jaderné války není třeba se radioaktivní vody z těchto zdrojů zaobírat, veškerá kontaminace by byla zachycena v morénových píscích a jílech.

Existují také varovné precedens:

- Některé typy podzemních vod vykazují identické složení jako podzemní vody (např. infiltrační vody)
- Černobylský příklad ukazuje zvýšenou rychlost průsaku kontaminace do zvodní ve hlubokých sedimentárních vrstvách cestou antropogenních struktur a cestou fenoménu „crustal weakness“ (Bugai et al. 1997).
- Tyto jevy v člověkem využívané krajině vedou k nepřírozeně rychlým průnikům kontaminace do podzemních vod. Rychlost průniku je individuální pro izotopy různých prvků.

→ v případě méně ochráněných zdrojů podzemních vod je žádoucí ověřit jejich ochráněnost před stronciem a ceziem přímým měřením.

• Relace mezi časovým průběhem aktivity radionuklidů v podzemní vodě oproti povrchové vodě (průběh v povrchové vodě je známý)

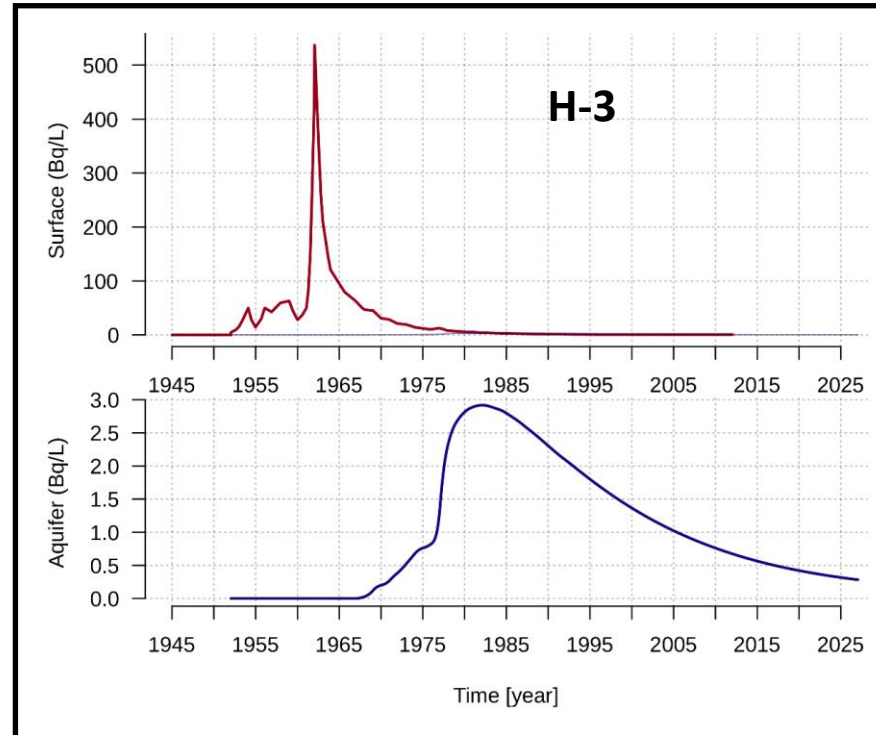
• SW nástroj Zvodeň.exe zohledňující následující procesy

• radioaktivní přeměna

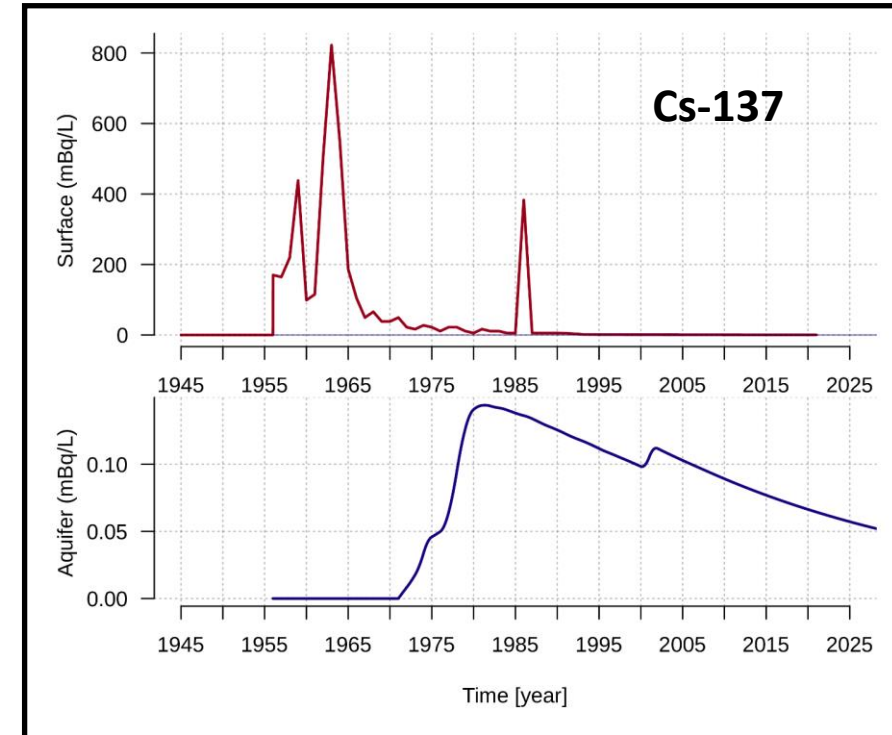
• ředění

• záchyt

• uvolnění

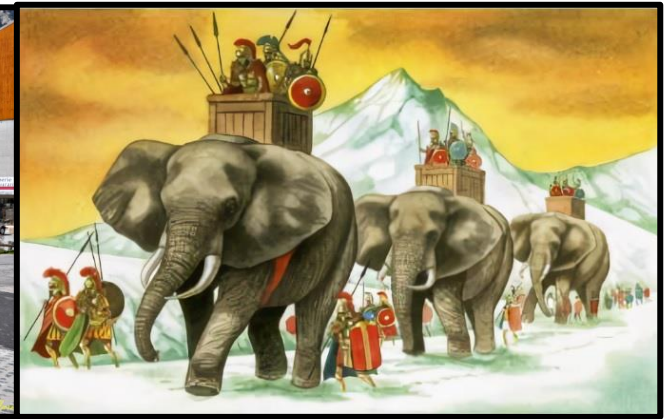
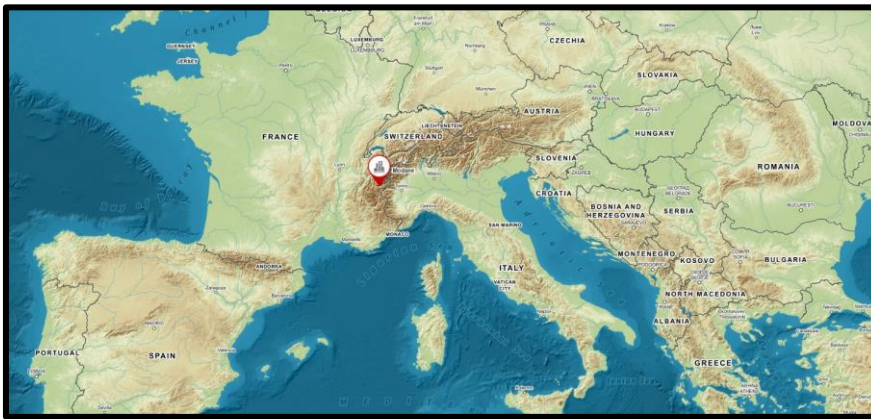


Ilustrativní výpočet

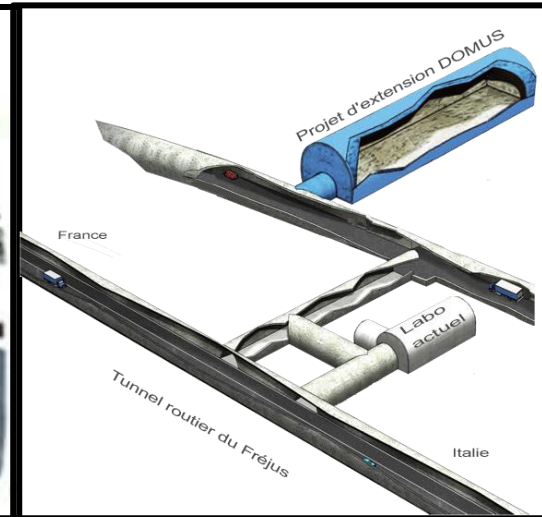
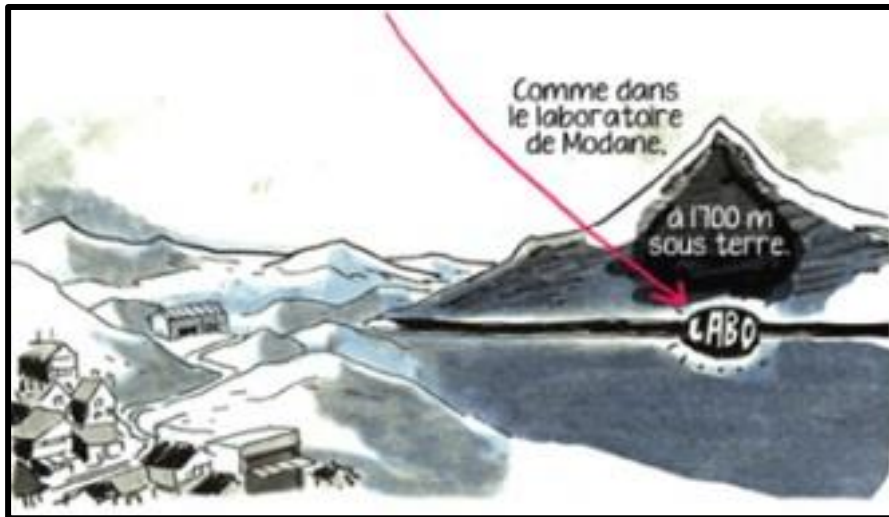


Ilustrativní výpočet

Mise: prostřednictvím citlivého měření aktivity Sr-90 a Cs-137 v podzemní vodě provést empirické stanovení HG parametrů zvodně a jejího nadloží



Laboratoire Souterrain de Modane v Arpitánii (LSM)

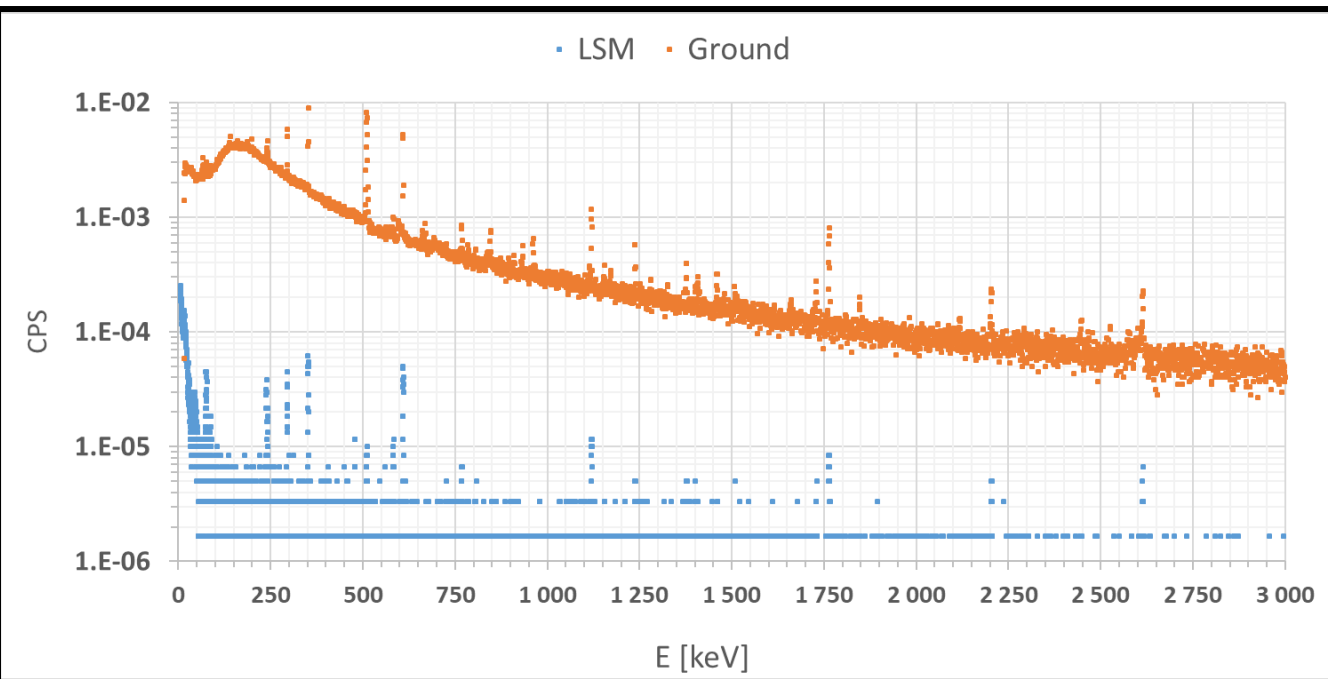


- Laboratoř je kryta 1700m horninovým překryvem
- Patří do skupiny „zero dose“ laboratoří. Příspěvek pozadí je snížen až 100 krát a to zejména k eliminaci příspěvku kosmických mionů a profukováním nízkoradonového vzduchu
- LSM byla určena k HS měřením. Kvůli pandemii byl přístup do laboratoře omezen, proto k vlastním měřením využita nebyla, metody ale v prostředí LSM byly optimalizovány

Cesium 137

Standardní citlivá metoda – zkoncentrování 20L vzorku vody pomocí spolusrážení s $\text{Cu}_2\text{Fe}(\text{CN})_6$ + HPGe spektrometrie gama v SÚRO → NDA ~0,2 mBq/L

Nově zavedený postup – koncentrace Cs ze 100 L vzorku vody pomocí kolony s 25 mL selektivního sorbentu KNiFC-PAN (Kameník et al. 2012, Hegedus et al. 2020), HPGe spektrometrie gama

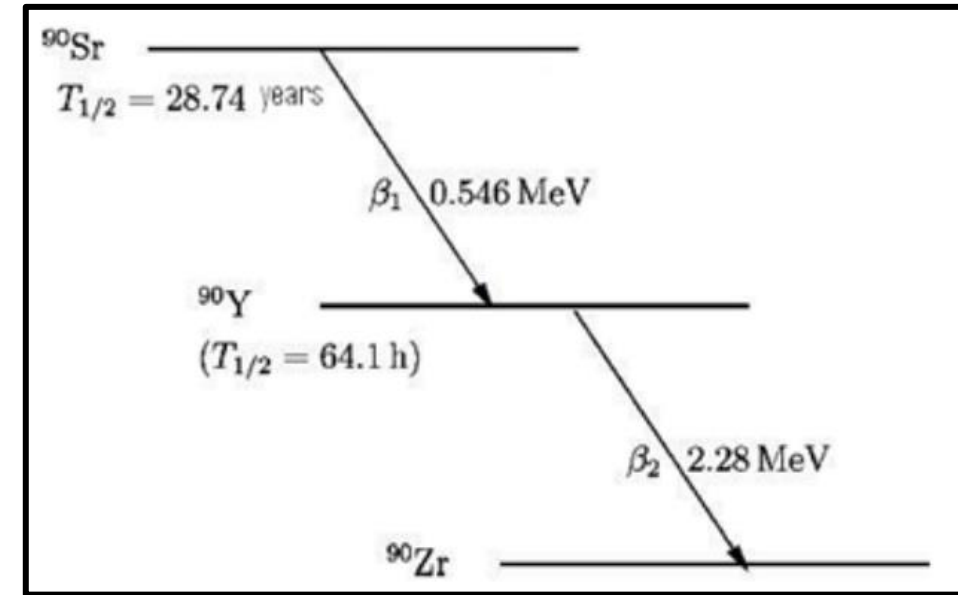


Při proměřování vzorků v LSM Modane

→ NVA ~0,01 mBq¹³⁷Cs/L

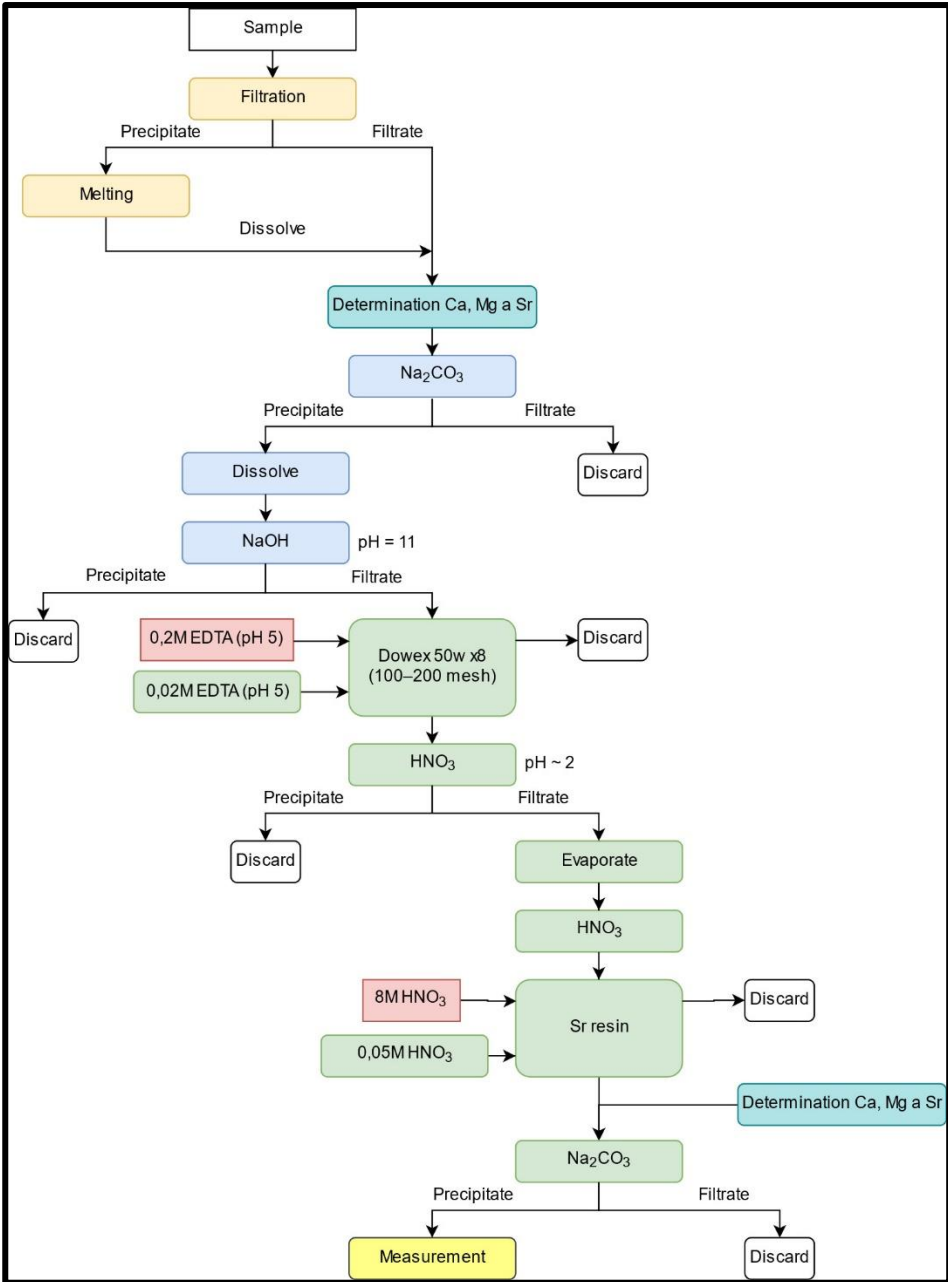
- **Stroncium 90**

- Existuje řada postupů ke stanovení aktivity tohoto nuklidu
- **6 variant samotné detekce + varianty chemické preparace**
- LSC – NVA je až 100 mBq/vzorek
- ICP-MS – 5 Bq/ vzorek
- AMS – 75 mBq/ vzorek
- RIMS – 8 mBq/ vzorek
- **GPC– 7 mBq/vzorek – oxalátová metoda, po mnohakrokové separaci 12L vzorku je měřena aktivita Y-90**



- **Byla vyvinuta zcela nová metoda ke stanovení aktivity Sr-90**
- Vlastní stanovení aktivity Sr-90 je prováděno prostřednictvím $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$ v radioaktivní rovnováze. Postup neumožňuje rozlišit aktivitu izotopů Sr 89 a 90. To v případě reziduální aktivity není předmětem analýzy.
- (-) vysoké požadavky na separační kapacitu postupu
- (+) detekční účinnost je prakticky zdvojnásobena
- (+) doba proměřování vzorku není omezena přeměnou Y-90 a může být arbitrárně prodlužována
- (+) vyvinutý separační postup je určen na zpracování vysokého objemu podzemní vody (obvykle 30 L). Maximální kapacita je dána koncentrací Ca, Mg, K a stanovuje se před zahájením separace pomocí OES.
- (+) byla zavedena nová metoda vlastního měření aktivity beta za využití detektoru Timepix

Chemická separace



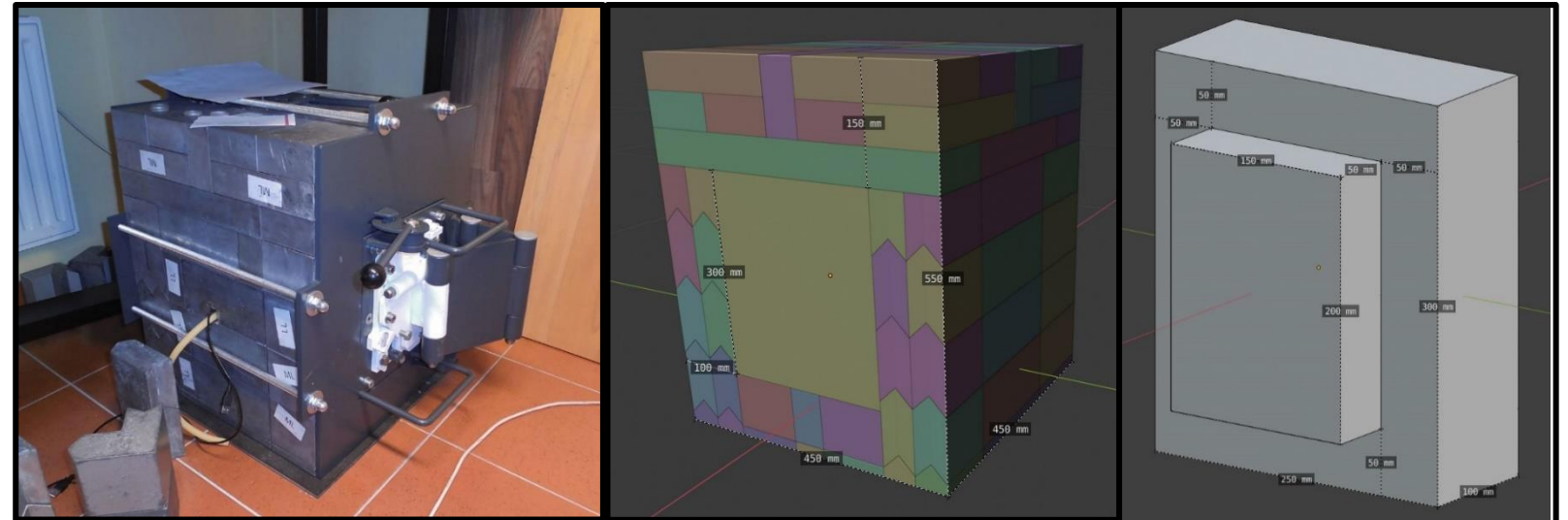
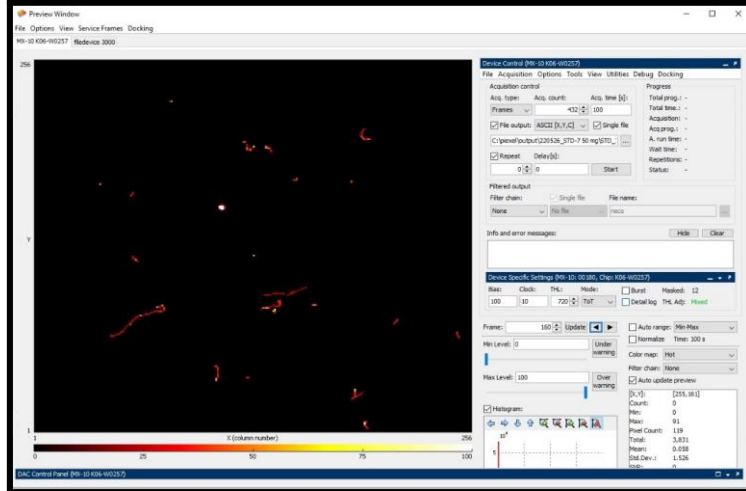
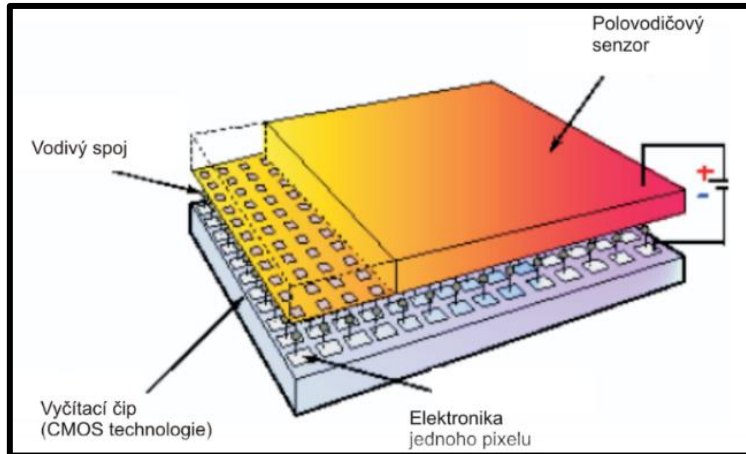
Eliminace interferujících iontů

- Na, K – spolusrážení s karbonáty
- Mg – spolusrážení s hydroxidy
- Ca, Pb – separace na Katexu (kapacita 10 g)
- Ca – Sr Resin (kapacita 2 g)



• Měření aktivity beta pomocí detektoru Timepix

- hybridní detektor sestávající ze senzoru a ze čipu čtecí elektroniky
- senzor je rozdělen na 256x256 pixelů
- Energie předávaná zářením je zaznamenána v podobě „frames“ – analog digitální fotografie, částice se projeví v podobě „clusters“
- Během uzávěr COVID-19 byla měření prováděna v kobce postavené pro tento účel v SÚRO, od konce roku 2022 je měření opět dostupné také v LSM



- Elektronická filtrace clusterů - eliminace odezvy alfa částic, mionů a nízkoenergetické gamy

- Stínící kobka byla sestavena ze 153 olověných segmentů ve třech vrstvách + vnitřní opláštění z mědi
- 5násobné snížení příspěvků terestriálního a kosmického záření

Vliv rozdílných přístupů ke snížení příspěvku pozadí

| Background contribution (Timepix with data filtration) | $N\beta$ (mcps) | $\sigma N\beta$ (mcps) |
|--|-----------------|------------------------|
| location-shieldig | | |
| NRPI office-without shielding | 247 | 2 |
| NRPI lab-regular tomb | 47.5 | 0.2 |
| LSM - without shielding | 58.2 | 0.8 |
| LSM - tentative tomb | 11.9 | 0.3 |

Celkové porovnání citlivých metod stanovení aktivity Sr-90

| method | water volume (L) | principle of separation | detection technique | radionuclide measuered | MSA (mBq/L) |
|---|------------------|--------------------------------|---------------------|---|-------------|
| Tazoe et al., 2016 | 3 | DGA | GPC | ^{90}Y | 4 |
| Tomita et al., 2015 | 170 | Powdex, Katex | GPC | ^{90}Y | 0.1 |
| Chen et al., 2002 | 200 | clasic (precipitation) | GPC | ^{90}Y | 0.25 |
| NRPI "oxalate" method (SZP 14) | 12 | clasic (precipitation) | GPC | ^{90}Y | 0.6 |
| a novel method, measuren in NRPI tomb | 30 | precipitation, Katex, Sr Resin | Timepix | $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$ in equilibrium | 0.09 |
| a novel method, measured in LSM Modane tentative tomb | 30 | precipitation, Katex, Sr Resin | Timepix | $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$ in equilibrium | 0.043 |

Souhrn vlastností nové metody

(+) je oproti ostatním postupům citlivější

(+) je robustní vzhledem k vysoké solnosti vzorků vody

(-) neumožňuje rozlišení Sr-89

(-) je nákladná, časově náročná a pracná

(?) detektor Timepix – pro popsany účel je použitelný, ještě vhodnější by byl v případě pokročilého využití

Cíle projektu

- V souladu s identifikací hrozeb v Auditu národní bezpečnosti, kapitola IV) Narušení dodávek pitné vody velkého rozsahu a kapitola III) Radiační havárie: **za pomoci inovativních ultrasenzitivních analytických metod zlepšit krizové řízení při zajištění zdrojů pitné vody před radioaktivní kontaminací** v případě havárie jaderného zařízení stanovením hodnoty indexu specifické zranitelnosti útvarů podzemních vod (pravděpodobnost rizika kontaminace podzemních vod radionuklidy ze spadu po jaderné havárii).

Naplnění cílů projektu:

- Byly vyvinuty Ultrasenzitivní analytické postupy na stanovení aktivity Cs-137 a Sr-90
- Stanovením reziduální aktivity tritia, Cs-137 a Sr-90 v kombinaci s hydrogeologickými parametry byla stanovena specifická zranitelnost zvodní radioaktivní kontaminací
- Byly vytvořeny nástroje umožňující rychlý výběr náhradních zdrojů pitné vody podle charakteru události
- Pro libovolnou lokalitu v ČR umožňují stanovit po jak dlouhou dobu po havárii je možné bezpečně využívat podzemní zdroje pitné vody

Nástroje k charakterizaci podzemních zdrojů pitné vody:

- SW

<https://www.vuv.cz/innovativni-metody-detekce-ultranizkych-koncentraci-radionuklidu/aplikovane-vysledky-x-inovativni-metody-detekce-ultranizkych-koncentraci-radionuklidu/hodnoceni-zranitelnosti-vodarenskeho-objektu-k-pruniku-radioaktivnich-latek/>

- Mapa EDU

<https://www.vuv.cz/innovativni-metody-detekce-ultranizkych-koncentraci-radionuklidu/aplikovane-vysledky-x-inovativni-metody-detekce-ultranizkych-koncentraci-radionuklidu/mapa-specificke-zranitelnosti-podzemnich-vod-k-pruniku-radioaktivnich-latek-pri-radiacni-udalosti-v-okoli-jaderne-elektrarny-dukovany/>

- Mapa ETE

<https://www.vuv.cz/innovativni-metody-detekce-ultranizkych-koncentraci-radionuklidu/aplikovane-vysledky-x-inovativni-metody-detekce-ultranizkych-koncentraci-radionuklidu/mapa-specificke-zranitelnosti-podzemnich-vod-k-pruniku-radioaktivnich-latek-pri-radiacni-udalosti-v-okoli-je-temelin/>

Mapa specifické zranitelnosti podzemních vod

VÝZKUMNÝ ÚSTAV
VODOHOSPODÁŘSKÝ
T.G. MASARYKA
ústředí v Brně - město

Autorzy sestavy:

Josef V. Dostál
David Rozman
Pavel Eichardt
Anna Hrabáková

Anna Tučková
Eva Juranová
Barbora Dešátová
Diana Marešová

Mapa specifické zranitelnosti podzemní vody k průniku
radioaktivních látek 1 : 50 000 v okolí 30 km od JE Temelin

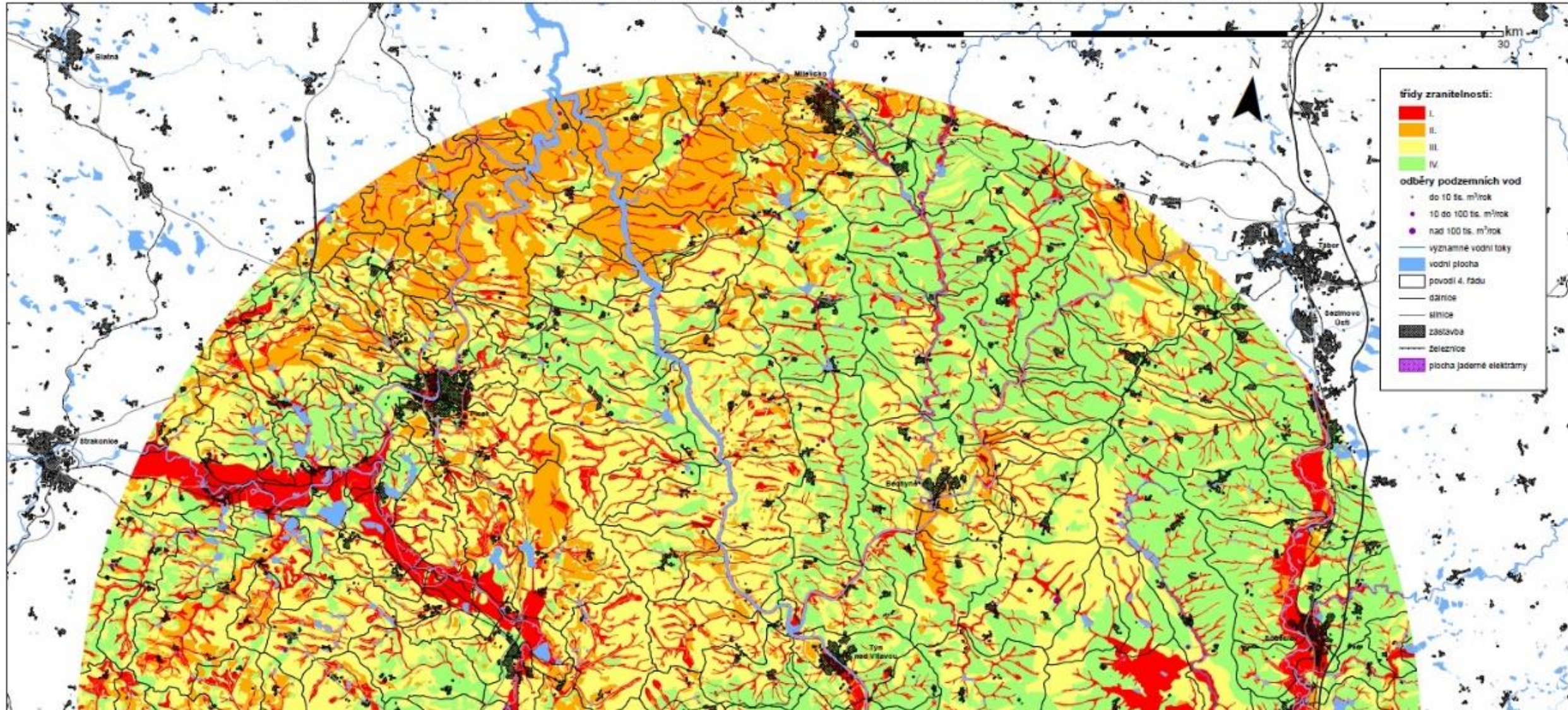


Státní ústav radiace ochrany, v. v. i.
National Radiation Protection Institute



MINISTERSTVO VNITRA
ČESKÉ REPUBLIKY

Výstup projektu Inovační metody detekce ultrazvukových koncentrací radionuklidů k hodnocení zranitelnosti zdrojů pitné vody při jaderné havárii (IMDUKR), číslo V12D192022142, financovaného Ministerstvem vnitra v rámci Bezpečnostního výzkumu České republiky 2019-2022.



řídí zranitelnosti:

- I. (red)
- II. (orange)
- III. (yellow)
- IV. (green)

odběry podzemních vod

- do 10 tis. m³/rok (black dot)
- 10 do 100 tis. m³/rok (purple dot)
- nad 100 tis. m³/rok (red dot)

— významné vodní toky (blue line)
— vodní plocha (blue area)
□ povodí 4. řádu (black outline)
— dálnice (black line)
— silnice (grey line)
■ zástavba (black area)
— železnice (black line with cross-ticks)
■ plocha jaderné elektrárny (purple area)

Závěr

SW a mapy budou využívány VÚV TGM v souladu s jeho kompetencemi definovanými Národním radičním havarijním plánem

| A.5.7. Ministerstvo životního prostředí | |
|---|---|
| a) podílí se na monitorování radiční situace a provádí monitorování na monitorovacích místech včetně sledování meteorologické situace, prognózy jejího vývoje a způsobu | šíření uniklých radionuklidů při havarijním monitorování a zajišťuje činnost měřicí laboratoře (CHMÚ, VÚV), b) plní úkoly příslušných orgánů krizového řízení, |
| 24 | |
| c) zabezpečuje provádění nepřetržité kontroly kvality vody ve spolupráci s hygienickou stanicí, | d) zabezpečuje náhradní zásobování pitnou vodou (v součinnosti s orgány majícími působnost v oblasti zemědělství). |

| A.5.8. Ministerstvo zemědělství | |
|---|--|
| a) podílí se na monitorování radiční situace a zajišťuje činnost měřicí laboratoře, b) plní úkoly příslušných orgánů krizového řízení, c) zabezpečuje regulaci výroby krmiv a potravin prostřednictvím Státní veterinární správy ČR, Státní zemědělské a potravinářské inspekce a Ústředního kontrolního a zkušebního ústavu zemědělského, d) ve spolupráci s MŽP zabezpečuje zásobování pitnou vodou, | |

Projekt byl vyřešen ve spolupráci SÚRO a VÚV TGM za podpory projektu č. VI2VI20192022 programu bezpečnostního výzkumu ministerstva vnitra

