

РАДИОЛОГИЧЕСКИЕ ИССЛЕДОВАНИЯ В КРУПНЕЙШИХ ГОРНОДОБЫВАЮЩИХ ЦЕНТРАХ АРМЕНИИ

© 2022 г. Г. А. Демирчян^а, Н. Э. Мовсисян^а, К. И. Пюскюлян^{а, б}, О. А. Беляева^{а, *}

^аЦентр эколого-ноосферных исследований (ЦЭНИ) НАН РА, ул. Абовяна, 68, Ереван, 0025 Республика Армения

^бАрмянская АЭС, Армавирский маар, Мецамор, 0910 Республика Армения

*e-mail: olga.belyaeva@cens.am

Поступила в редакцию 07.06.2020 г.

После доработки 17.11.2020 г.

Принята к публикации 04.12.2020 г.

Горнорудная промышленность негативно влияет на окружающую среду, поскольку своей деятельностью загрязняет природу акцессорными элементами к числу которых можно отнести также так называемые первичные радионуклиды: изотопы урана ^{238}U , тория ^{232}Th и калия: ^{40}K . Города Капан и Каджаран являются крупнейшими горнорудными центрами Армении, где, начиная с 50-х гг. 20-го века добывались и обогащались медь, молибден и другие металлы. Целью данной работы являлось исследование технологически измененной естественной радиоактивности городской почвы и отходов горнорудной промышленности, а также оценка мощности дозы и канцерогенного риска, обусловленного естественными радионуклидами. Исследования выявили, что в городе Капан производственные объекты являются основными факторами перераспределения радионуклидов в городской почве, но, из-за низкого уровня удельной активности в руде, риск для здоровья населения в основном не превышал среднемирового значения. В Каджаране естественная радиоактивность почвы обусловлена материнскими породами (обогащенные монцититами интрузивные породы), объекты горнодобывающего комплекса незначительно влияют на перераспределение радиоактивности. Высокая естественная радиоактивность городских почв Каджарана обуславливает потенциальный риск для здоровья населения.

Ключевые слова: горнодобывающая промышленность, радиогеохимическая съемка, городские почвы, естественные радионуклиды, канцерогенный риск

DOI: 10.31857/S0016752522010046

ВВЕДЕНИЕ

Горнодобывающая промышленность обуславливает разнородные негативные последствия в окружающей среде: истощение невозобновляемых ресурсов, деформация земной поверхности и отчуждение земель, нарушение гидрогеологического режима подземных и поверхностных вод, загрязнение окружающей среды и пр. (Комашенко и др., 2010; Carvalho, 2017; Jain et al., 2016). Среди перечисленного остра проблема нарушения естественного баланса химических элементов практически всех биогенных сред: воды, воздуха, почвы (Сае и др., 1990; Перельман, Касимов, 2000).

Практически в каждом горнодобывающем регионе могут быть выявлены потенциально опасные в радиологическом отношении породы и руды. Естественная радиоактивность местности обусловлена в основном содержанием естественных природных радионуклидов в горных породах. В формировании природного радиационного фо-

на местности наиболее значимыми являются первичные долгоживущие радионуклиды, образовавшиеся вместе с другими нерадиоактивными нуклидами земного вещества в процессе общего нуклеосинтеза (Титаева, 2000; Valković, 2019). Они могут быть классифицированы как радионуклиды, образующие радиоактивные семейства (ряды) и радионуклиды, не образующие семейств. ^{238}U , ^{232}Th и ^{235}U являются исходными радионуклидами для трех семейств, называемых также рядами урана-радия, тория и актиния соответственно, из коих последний, как правило, незначителен, поскольку он чрезвычайно редок в природе. Из радионуклидов второй группы наиболее важны ^{40}K и ^{87}Rb . ^{40}K составляет 0.012% от природного калия и является источником бета- и гамма-излучения. Это один из основных дозообразующих нуклидов как для внутреннего, так и внешнего облучения живых организмов. ^{87}Rb является чистым бета-излучателем, однако его вклад во внешнее облучение незначителен (Landa, 2007; Ojovan, Lee; 2014; Paschoa, Steinhäusler,

Таблица 1. Среднее содержание урана и тория в основных типах магматических горных пород (Арбузов, Рихванов, 2010)

Горные породы	Содержание элементов, г/т		Th/U
	U	Th	
Интрузивные:	3.2	14	4.4
ультрабазиты	0.01	0.04	4
сиениты	3	13	4.3
базиты	0.8	3.2	4
гранодиориты	2.7	9.9	3.7
граниты	3.9	18	4.6
Эффузивные:	1.4	4.4	3.1
основные вулканы	0.86	2.7	3.1
средние вулканы	1.1	4.1	3.7
кислые вулканы	4.5	13	2.9

2010; Valković, 2019). Таким образом, при изучении радиационного фона часто рассматриваются дочерние радионуклиды ^{238}U , ^{232}Th и ^{40}K .

Из сводки, приведенной в табл. 1 следует, что интрузивные магматические породы более радиоактивны чем эффузивные (Арбузов, Рихванов, 2010). В процессе перемещения огромных масс горных пород, подземных вод, руд, продуктов их обогащения и переработки, естественные радиоактивные элементы и продукты их распада распространяются в окружающей среде (Рихванов, 2009; Сагатеян и др., 2010; Carvalho, 2017; Teranosyan et al., 2018), а в определенных условиях мобилизуются, проникая в пищевые цепи (Vosniakos, 2012). Перераспределение отмеченных радионуклидов и нарушение в почве природного соотношения изотопов (напр. $^{232}\text{Th}/^{238}\text{U}$) вследствие деятельности человека, принято называть не “загрязнением”, а “технологически повышенной (измененной) естественной радиоактивностью” (Al Nabhani et al., 2016; Landa, 2007; Paschoa, Steinhäusler, 2010). Горнодобывающая промышленность является одной из приоритетных отраслей экономики Армении. Согласно официальной статистике, доля горнодобывающей промышленности в структуре ВВП за 2018 г. составила 2.8%, в том же году добыча металлических руд составляла 14.8% от объема промышленной продукции в текущих ценах (Статистический..., 2019a). Крупнейшие горнодобывающие центры Армении находятся в Сюникской области, в городах Капан (медное и полиметаллическое месторождение) и Каджаран (сульфидное медно-молибденовое месторождение); промышленные комплексы являются градообразующими предприятиями (Геология Армянской ССР, 1967). По состоянию на 2017 г. в указанных городах проживает около 50 тыс. жителей (Статистический..., 2019a), что составляет 1.7% от всего населения страны.

В 2005–2008 гг. в городах Капан и Каджаран Центром эколого-ноосферных исследований (ЦЭНИ)

НАН РА были проведены комплексные эколого-геохимические исследования, включающие многофункциональную педогеохимическую съемку на территории городов (Сагатеян и др., 2008; Сагатеян и др., 2010; Saghatelyan et al., 2010; Teranosyan et al., 2018; Sahakyan et al., 2015). В результате этих исследований доказано, что, как загрязнение городской среды, так и влияние на здоровье населения обусловлено не промышленными металлами, которыми являются молибден (Mo), медь (Cu), цинк (Zn), серебро (Ag), золото (Au) и пр., а акцессорными элементами руд (Сагатеян и др., 2008; Сагатеян и др., 2010; Saghatelyan et al., 2010; Saghatelyan et al., 2012; Sahakyan et al., 2015), к числу которых относятся и естественные радионуклиды ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K .

В период проведения эколого-геохимических исследований 2005–2008 гг. в городах Капан и Каджаран оценка радиоактивности городских почв ограничилась измерением и картированием суммарной бета активности (Сагатеян и др., 2008). Данные были получены ныне устаревшими методами. Исследования распределения и перераспределения естественных радионуклидов в указанных городах не проводилось. Недостаток информации об уровнях удельной активности радионуклидов в городских почвах и связанных с ними рисков для здоровья населения, а также роль горнорудной промышленности в технологически увеличенной естественной радиоактивности почв обуславливают необходимость исследования с использованием современных и соответствующих международным стандартам методов для оценки радиозоологической обстановки.

МЕТОДИКА

Объект исследований

На территории Армении по материалам ранее проведенных геологоразведочных работ (с 1948 г. Громовская, а в 1965–1975гг. — Кольцовская экс-

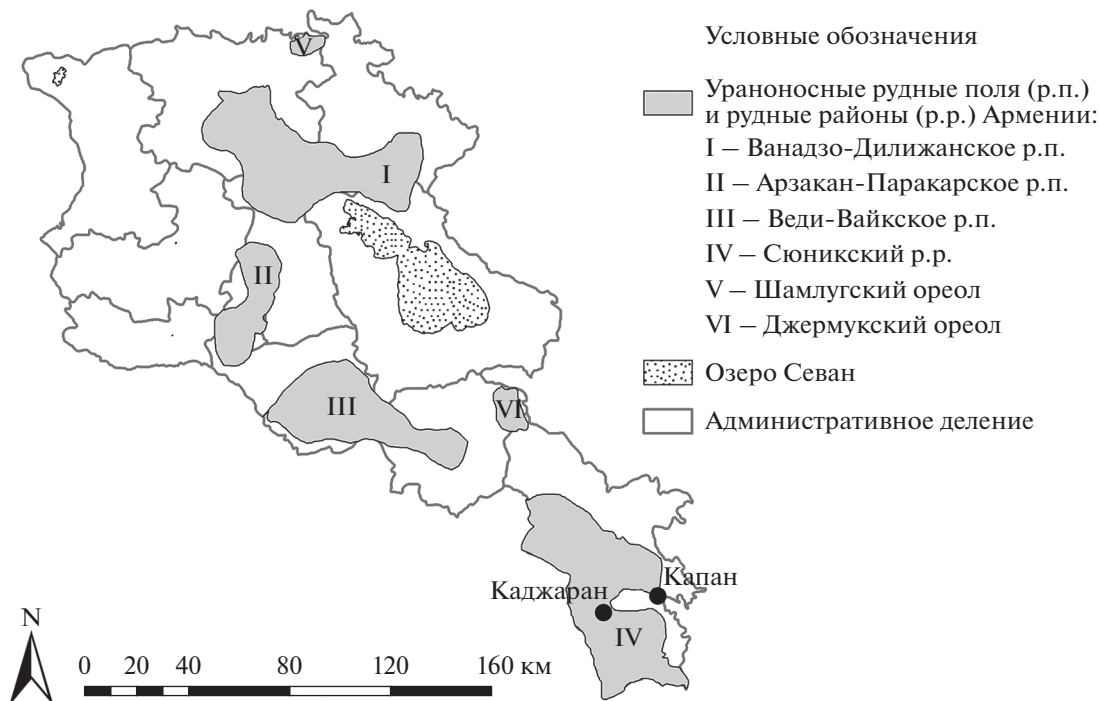


Рис. 1. Ураноносные рудные поля и рудные районы Армении (Алоян., 2010).

педиции), условно были выделены 4 крупных района, перспективных на радиоактивные элементы (Алоян, 2010): Сюникский район – между речье Воротан-Охчи-Аракс в зоне Зангезурского глубинного разлома, выраженной парой региональных нарушений северо-западного простирания – Дебакли-Айригетским и Хуступ-Гиратагским; Ванадзор-Дилижанский район междуречье Дебед и Агстев в пределах Севано-Ширакского синклиория; Арзакан-Паракарский район – бассейн реки Раздан субмеридионального простирания; Веди-Вайкский район – левобережье реки Аракс и бассейн ниже-среднего течения реки Арпа (рис. 1).

Объектами данного исследования являются горнодобывающие центры Сюникского района – гг. Капан и Каджаран, а так же отходы производства: грунт из действующих и рекультивированных хвостохранилищ, отвалы пустых пород.

Город Капан является областным центром Сюникского района с 45135 постоянными жителями. Расположен в среднем течении реки Вохчи, на юго-восточных склонах Зангезурского хребта, между его отрогами: Баргушатским и Мегринским хребтами. Средняя высота – 910 м над уровнем моря (н.у.м.). Климат умеренно теплый, с холодными зимами (средняя температура в январе колеблется от $-3...-4^{\circ}\text{C}$, с абсолютным минимумом -30°C) и снежным покровом каждый год и теплым летом ($+19...+21^{\circ}\text{C}$ с абсолютным максимумом 35°C). Годовое количество осадков составляет около 500–600 мм. Геологическое строение этого района

характеризуется сильно расчлененными юрскими вулканическими (базальт, андезит) и осадочными (брекчия, известняк, доломит и глинистый сланец) образованиями с подчиненными субвулканическими породами (рис. 2) (Асланян, 1958).

Капанское медное месторождение, ранее именуемое Катар-Кавартским (до 1917 г.) и Зангезурским (до 1942 г.), расположено в среднем течении реки Вохчи, левого притока реки Аракс. Официальная история Капанского месторождения исчисляется со времени получения первооткрывателем Яковом Розовым в 1846 г. “дозволения” на открытие им рудников и завода. Медно-полиметаллические рудные тела представлены жилами (более 450) и 14 штоковками (Ванюшин и др., 1957). Помимо меди, практический интерес представляют также Au и Ag, а также Zn и Pb. (Ванюшин и др., 1957; Геология Армянской ССР, 1967). В настоящее время в черте города эксплуатируются два месторождения: Капанское медно-пиритовое и Шаумянское золото-полиметаллическое. Капанский горно-обогатительный комбинат (КГОК) по переработке медной руды, выполняющий операции по дроблению, измельчению и флотации руды, расположен в пределах города. Помимо этого, на севере города находится заброшенный карьер Каварт. Хвосты от завода по переработке медной руды сбрасываются в хвостохранилище Гегануш, расположенное в южной части города. Другое действующее хвостохранилище, Арцваник, географически отделен от городской территории небольшим отрогом хребта Зангезур (Мкртчян, 1958).

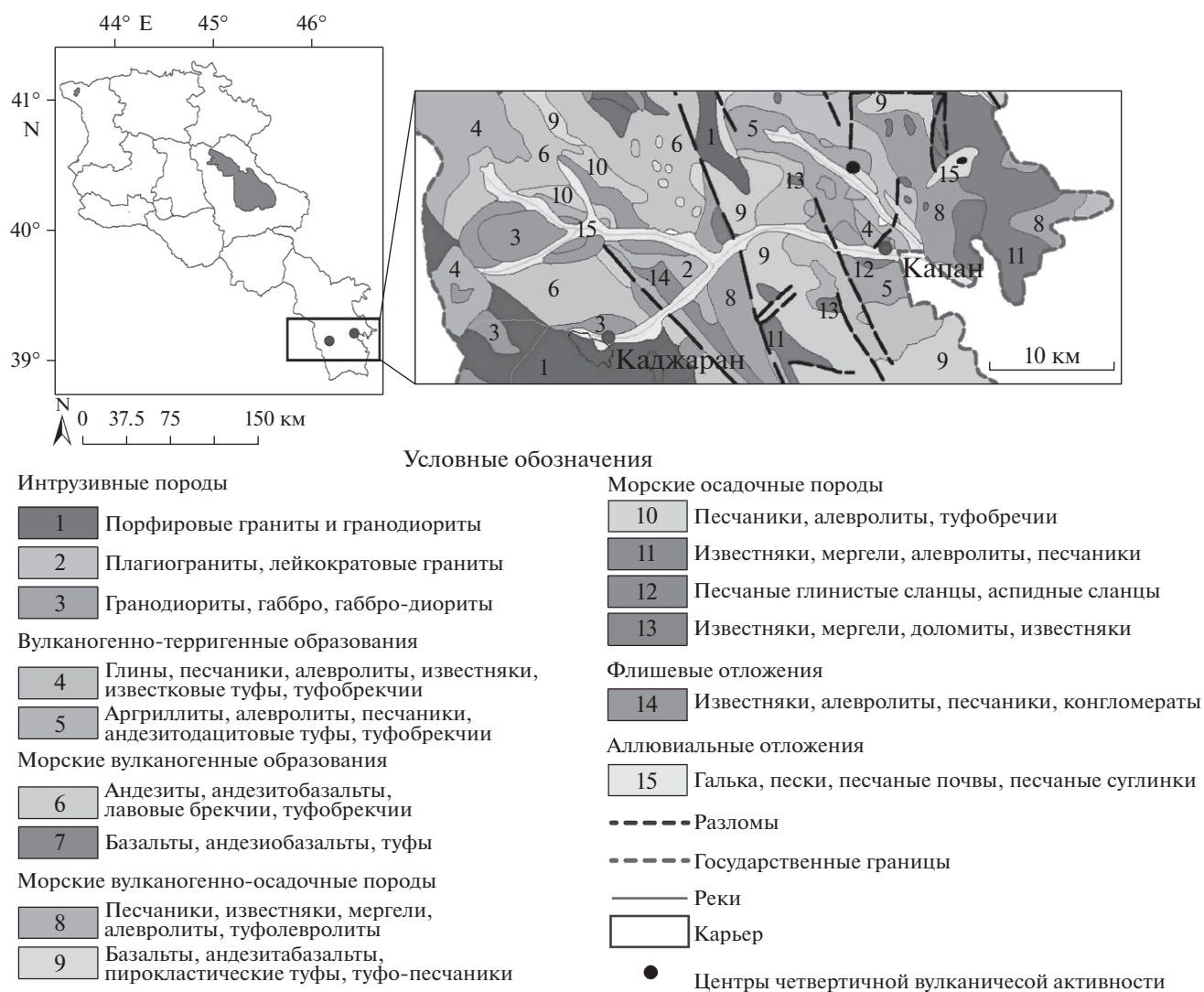


Рис. 2. Геологическая карта территории городов Капан и Каджаран, преобразовано из (Национальный..., 2007).

Город Каджаран — типичный индустриальный город с постоянным населением 8233 чел. по состоянию на 2019 год (Статистический..., 2019). Город расположен на восточном склоне Зангезурского хребта, в верхнем водосборном бассейне реки Вохчи, на средней высоте 1750–1850 м н. у. м. (рис. 1 и 2). Климат умеренный, горный, с коротким прохладным летом и холодной зимой. Абсолютный минимум температуры -30°C , а абсолютный максимум температуры в июле-августе $+35^{\circ}\text{C}$. Среднегодовое количество осадков составляет 650 мм (Багдасарян, 1971).

Геологическое строение этого района характеризуется преимущественным распространением третичных вулканогенных и интрузивных пород: монцонитами и порфирировыми гранитами-гранодиоритами (рис. 2). Каджаранское сульфидное медно-молибденовое месторождение приурочено к монцонитам, которые сильно изменены

гидротермальными процессами. Основными минералами Каджаранского месторождения являются молибденит и халькопирит. Подчиненными минералами являются пирит, магнетит, гематит, сфалерит, а также самородные Te и Au . Кроме того, руда содержит Re , Se и Ag (Геология Армянской ССР, 1967; Сагателян и др., 2008). Необходимо отметить также, что г. Каджаран находится в пределах Сюникского рудного района (рис. 1, Алоян, 2010), здесь описаны Пахрутское и Андское проявления гидротермального уран-молибденового типа с запасами 20 и 5–10 тыс. т и средним содержанием урана 0.2% и 0.34% соответственно (Алоян, 2010; Кочарян А.Е., 1969).

Разработка Каджаранского месторождения началась в 1950-х годах, и в настоящее время Каджаран является современным горнодобывающим центром. Медно-молибденовое месторождение эксплуатируется Зангезурским медно-мо-

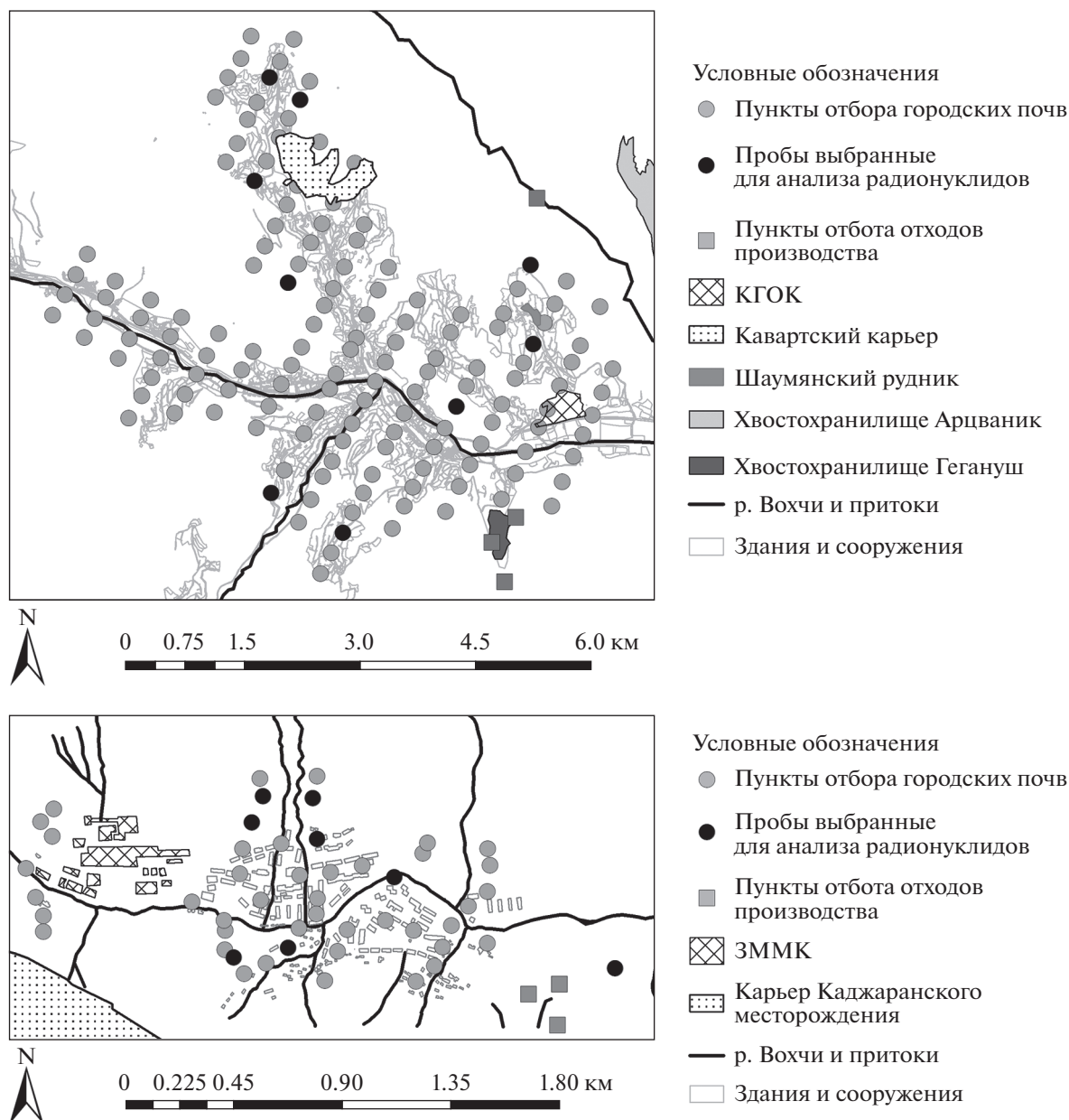


Рис. 3. Пункты отбора проб городских почв и отходов производства на территории и в окрестности городов Капана (верхний рисунок) и Каджарана (нижний рисунок).

либденовым комбинатом (ЗММК), на котором выполняются операции дробления руды, измельчения и пенной флотации. Карьер месторождения и ЗММК расположены на западной границе города. Хвосты ЗММК накапливались в трех, ныне законсервированных хвостохранилищах близ города, в настоящее время транспортируются в хвостохранилище Арцваник, расположенное недалеко от города Капан.

Для данного исследования использовались архивные пробы педогеохимической съемки городских почв Капана (масштабом 1 : 25000) и Каджа-

рана (масштабом 1 : 10 000), реализованной в 2007 и 2005 гг. соответственно (рис. 3). В исследования были включены также пробы из прилегающего к городам хвостохранилища. В общей сложности с территории Капана и Каджарана отобрано 145 и 49 проб соответственно.

Геохимическая съемка была проведена согласно стандартным методам, описанным в литературе (Ревич и др., 1982; Cochran, 1977; US EPA, 2002). Пробы отбирались методом конверта. В каждом пункте выбиралась площадка с ненарушенным почвенным покровом. Для получения представи-

тельной пробы городской почвы из углов и точки пересечения диагоналей каждой площадки лопатой из нержавеющей стали были отобраны 5 точечных проб поверхностного слоя почвы глубиной 0–10 см. Пробы помещались в пластиковые пакеты, перемешивались, маркировались и транспортировались в лабораторию ЦЭНИ НАН РА. Для выявления фоновой концентрации химических элементов для каждого города были выбраны фоновые участки, подверженные минимальному человеческому воздействию и имеющие схожие педологические характеристики, что и территория исследованных городов. Фоновый участок Капана находился на расстоянии 3 км к северу от города, а Каджарана — к 5 км к востоку.

Пробы городских почв были высушены при комнатной температуре, просеяны через сито с диаметром отверстий менее 2 мм. После предварительной обработки почвенные пробы геохимических съемок были помещены в пластиковые контейнеры и складированы для длительного хранения в соответствии с ISO 18512 (2007). Эти складированные пробы использовались для радиологического исследования. Во всех архивных пробах были измерены суммарная альфа и бета активность. С целью изучения радионуклидного состава было отобрано по 10 проб (9 городских и 1 объединенная фоновая) для каждого города. Во избежание влияния человеческого фактора для выборки проб использовался инструмент программы ArcMap 10.3 генератор случайных чисел. Пробы почв были отобраны из разных функциональных зон города: рекреационных (парки, скверы), жилых, производственных, сельскохозяйственных.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Отбор проб и анализы

Для измерения суммарной альфа/бета активности из предварительно высушенной, смешанной и просеянной массы было отделено 1 г почвы и дополнительно гомогенизировано в агатовой ступке. Из получившегося материала аликвота 0.5–0.7 г перенесена на стандартную пластиковую подложку диаметром 6 см и глубиной 1 мм. Толщина почвы в держателе не превышала 0.1–0.2 мм с целью минимизации самопоглощения альфа и бета частиц в пробе.

Альфа/бета активность определялась на автоматической, низкофоновой, безгазовой альфа/бета установке iMatic, с программным обеспечением iLink™ iSeries™ (CANBERRA). До проведения измерений установка была откалибрована стандартными источниками альфа (^{241}Am) и бета ($^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$) излучений с геометрией идентичной измеряемым пробам. Время измерения каждой пробы составило 12000 с, а минимальная обнаруживаемая

активность (MDA) составляла 14.0 и 7.0 Бк/кг для альфа и бета активностей соответственно (ISO 18589-6:2009).

Для идентификации и определения удельной гамма-активности радионуклидов были отобраны 10 представительных проб из трех функциональных районов каждого города: жилого, рекреационного и промышленного. Из каждой архивной пробы было взято 700 г почвы, которые помещались в стандартные пластиковые контейнеры Маринелли (объем 1100 мл), герметично закрывались и оставлялись минимум на 3 нед. для достижения векового равновесия между радием, радоном и их короткоживущими дочерними радионуклидами. Для обнаружения радионуклидов был использован германиевый детектор высокой чистоты (HPGe) к которому подключен многоканальный анализатор DSA-1000 (CANBERRA). Детектор защищен 15 см медно-свинцовым слоем. Калибровка по энергии проводилась используя точечные источники ^{22}Na и ^{155}Eu (CANBERRA), по эффективности калибровка была проведена с использованием программы LabSOCS, которая позволяет калибровать детектор без использования референтного источника определенной геометрии.

Получение спектра и его анализ проводились с помощью программного обеспечения Genie 2000. На получение гамма спектра для каждой пробы было потрачено 15000 сек. После учета фонового гамма излучения и эффекта Комптона, энергии радионуклидов регистрировались в следующих фотопиках: ^{214}Pb (351.9 кэВ), ^{214}Bi (609.2 кэВ), ^{212}Pb (239.0 кэВ), ^{212}Bi (727.0 кэВ), ^{228}Ac (911.21 кэВ) и ^{40}K (1460.0 кэВ). Активности ^{238}U и ^{232}Th пересчитывались из активностей дочерних нуклидов для ^{238}U по ^{214}Pb и ^{214}Bi , а для ^{232}Th — по ^{212}Pb , ^{212}Bi и ^{228}Ac . Для определения активности радионуклидов в фоновых участках городов, использовались смешанные фоновые пробы, каждая из которых получилась путем смешивания образцов равными количествами.

В рамках программы по обеспечению и контролю качества лабораторных работ были проведены измерения стандартного образца почвы IAEA-447, результаты не превышали допустимый предел ошибки ($\pm 2\sigma$). Помимо этого, была внедрена программа межлабораторных сличительных испытаний между лабораториями ЦЭНИ и ААЭС с использованием идентичных гамма-спектрометров. После дисперсного статистического анализа результатов измерений (ранговым не параметрическим тестом Крускал-Уоллеса) было выявлено, что полученные результаты коррелируют и статистически значимые различия не обнаружены.

Таблица 2. Описательные статистические показатели для суммарных альфа и бета активностей

Показатель	Капан		Каджаран		Единица измерения
	альфа	бета	альфа	бета	
N	49	145	49	49	Наблюдение
N < MDA	96	0	0	0	Наблюдение
Среднее	21.06	228.12	21.46	367.00	Бк/кг
Медиана	20.00	231.00	20.00	376.00	Бк/кг
Стандартное отклонение	7.41	69.01	13.64	105.65	Бк/кг
Минимум	15.00	73.00	3.50	18.20	Бк/кг
Максимум	45.50	581.00	60.30	607.00	Бк/кг
CV%	35	30	64	29	%
Асимметрия	1.73	0.82	0.89	–0.70	Безразмерный
Ошибка асимметрии	0.34	0.20	0.34	0.34	Безразмерный
Экссесс	2.90	4.10	0.79	1.77	Безразмерный
Ошибка эксцесса	0.67	0.40	0.67	0.67	Безразмерный

Статистический анализ данных, картирование, вычисление радиологических показателей

Для статистического анализа данных использована программа SPSS. Были рассчитаны описательные статистические показатели для суммарной альфа/бета активности и активностей радионуклидов.

Карты пространственного распределения суммарной альфа/бета активности, удельной активности радионуклидов в почве и рассчитанных показателей были составлены в программной среде ArcGIS 10.3. Для построения карт суммарной альфа/бета активности в Капане и Каджаране использован метод интерполяции обратных взвешенных расстояний (Inverse Distance Weighted – IDW), принимая значения ниже MDA для альфа активности в Капане как MDA/2. Для построения карт показателя потенциального канцерогенного риска использован метод пропорциональных градуированных символов (Graduated Symbols).

Для количественной оценки радиологической опасности для населения были рассчитаны следующие показатели: Эквивалентная активность радия (RaEq) (1), мощность поглощенной дозы внешнего гамма излучения (ODRA) (2), годовая эффективная эквивалентная доза (AEDE) (3), фактор канцерогенного риска в течении жизни (ELCR) (4). Радиологические показатели рассчитаны согласно методике Научного комитета ООН по действию атомной радиации (НКДАР) и Международной комиссии по радиологической защите (UNSCEAR, 2000; ICRP, 1991):

- (1) $RaEq = C_U + 1.43C_{Th} + 0.077C_K$,
- (2) $ODRA = 0.462C_U + 0.604C_{Th} + 0.0417C_K$,
- (3) $AEDE = ODRA \times DCF \times OF \times T$,
- (4) $ELCR = AEDE \times DL \times RF$,

где: C_U , C_{Th} , C_K удельная активность ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K соответственно, DCF – коэффициент преобразования дозы (0.7 Зв/Гр); OF – коэффициент пребывания снаружи помещений (0.2 или 20% от времени); T – время (8760 ч/г); DL – продолжительность жизни; RF – фактор риска возникновения рака от поглощенного зиверта 1/Зв (для оценки стохастического воздействия используют 0.05/Зв).

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Статистический анализ

Описательные статистические показатели суммарных альфа- и бета активностей для почв городов Капана и Каджарана представлены в табл. 2. В 66% проб из Капана суммарная альфа-активность была ниже минимальной детектируемой активности (<MDA) (<14 Бк/кг). Коэффициент вариации (CV%) суммарной бета активности равен 0.3 и 0.29 для Капана и Каджарана соответственно. В городских пробах медиана близка со средним арифметическим из чего следует, что в выборке имеется симметрия. Однако высокие показатели асимметрии и эксцесса, а также визуальная инспекция диаграмм размаха (рис. 4) свидетельствуют, что распределение для всех показателей выборках в целом не подчиняется нормальному закону и средние оценки подвержены влиянию выбросов и экстремумов.

Удельная активность естественных радионуклидов в почвах городов представлена в табл. 3. Аномально низкая активность, зафиксированная для всех радионуклидов в пробе К-30 г. Каджаран не учитывалась в расчете статистических показателей. В целом, размах значений удельной активности радионуклидов в почвах Капана уже, чем таковой, зафиксированный и Каджаране. Сред-

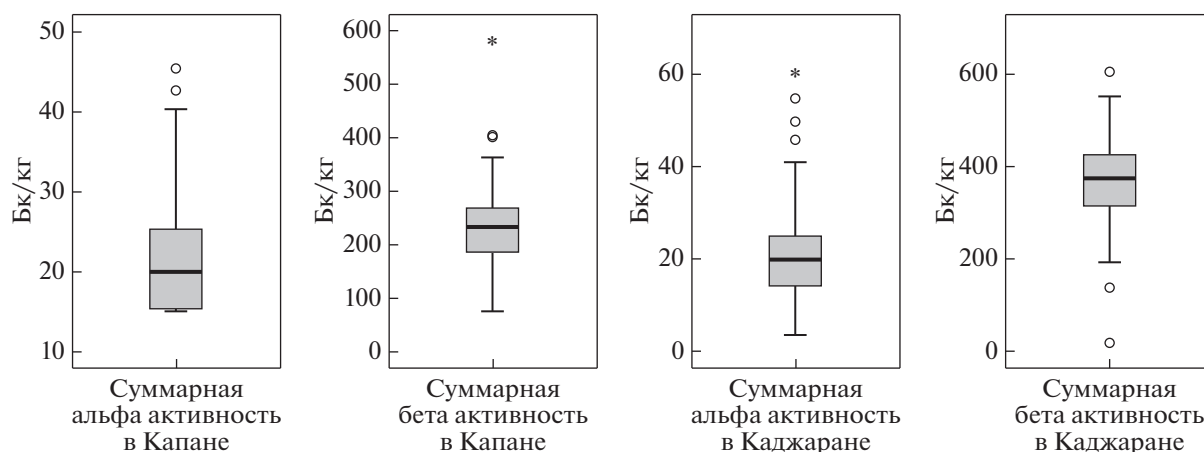


Рис. 4. Диаграммы размаха (“ящик с усами”) значений суммарной альфа/бета активности в почвах городов Капана и Каджаран.

ная удельная активность радионуклидов в почвах Каджарана в 3.6, 2.5 и 1.9 раза превышает показатели, зафиксированные в Капана для ^{238}U , ^{232}Th и ^{40}K соответственно. Подобная закономерность прослеживается также для фоновой удельной активности ^{238}U и ^{232}Th исследованных городов (табл. 3).

Корреляционный анализ выявил положительную значительную ранговую корреляцию между бета активностью и удельной активностью естественных радионуклидов (табл. 4). Помимо этого, положительно коррелируют суммарные альфа и бета активности, тогда как корреляции между альфа активностью и радионуклидами не зафиксировано.

Распределение суммарной альфа/бета активности в почвах городов Капан и Каджаран

Как было отмечено ранее, в городской почве Капана суммарная альфа активность была меньше MDA в 66% проб, в том числе и в комплексной пробе фоновой участка. Значения выше фона суммарной альфа активности зафиксированы в каньоне р. Вохчи у восточной границы города, и прилегают к Шаумянскому руднику, КГОК и хвостохранилищу Гегануш (рис. 5). Помимо этого, поля точечной конфигурации с значениями альфа активности до 40.5 Бк/кг зафиксированы вблизи Кавартского заброшенного карьера, а так-

Таблица 3. Удельная активность (Бк/кг) естественных радионуклидов и эквивалентная активность радия (Бк/кг) в городских почвах Капана и Каджарана

Капан					Каджаран				
Номер	^{238}U	^{232}Th	^{40}K	RaEq	Номер	^{238}U	^{232}Th	^{40}K	RaEq
KF-20-s	61.0	22.5	598.0	139.2	К-30	0.0018	0.0045	0.017	0.01
KF-29-s	37.7	18.2	263.9	84.1	К-26	24.9	24.5	535.7	101.2
KF-35-s	16.4	18.4	308.1	66.5	К-33	70.0	26.0	396.0	137.7
KF-53-s	42.0	24.0	113.0	85.0	К-42	120.0	73.1	813.5	287.2
KF-79-s	29.0	16.0	267.0	72.4	К-43	203.9	80.4	933.9	390.8
KF-97-s	23.5	29.3	518.5	105.4	К-47	120.5	74.6	643.0	276.7
KF-115-s	13.8	7.0	170.6	36.9	К-48	230.0	78.0	472.0	377.9
KF-119-s	60.0	43.0	439.0	155.3	К-9	150.0	52.0	434.0	257.8
KF-128-s	44.0	28.0	130.0	94.1					
Минимум	13.8	7.0	113.0	36.9	Минимум	0.0018	0.0045	0.017	0.01
Максимум	61.0	43.0	598.0	155.3	Максимум	230.0	80.4	933.9	390.8
Среднее	36.4	22.9	312.0	93.2	Среднее*	131.3	58.4	604.0	261.3
Стандартное отклонение	17.8	11.6	180.5	40.0	Стандартное отклонение*	71.5	24.5	203.5	109.7
Фон	33.8	11.4	380.4	79.3	Фон	93.0	45.5	215.0	174.6

* Показатели рассчитаны с исключением пробы К-30.

Таблица 4. Непараметрическая ранговая корреляция Спирмена между суммарной альфа/бета активностью и удельной активностью естественных радионуклидов в почвах городов Капана и Каджарана

Параметр	Альфа активность	Бета активность	^{238}U	^{232}Th	^{40}K	RaEq
Альфа активность	1					
Бета активность	0.606*	1				
^{238}U	0.210	0.582**	1			
^{232}Th	0.196	0.554*	0.854**	1		
^{40}K	0.119	0.575*	0.539*	0.647**	1	
RaEq	0.126	0.649**	0.921**	0.951**	0.739**	1

* Корреляция значительна при $p < 0.05$.** Корреляция значительна при $p < 0.01$.

же в центральной части города, расположенного в пониженной части каньона р. Вохчи.

Суммарная бета активность на территории Капана (рис. 5) варьировала от 73 до 581 Бк/кг, со средним значением 228.1 Бк/кг, в то время как фоновая активность составляла 180 Бк/кг. В пределах основной жилой зоны Капана, расположенной в долине, простирающейся с востока на запад, суммарная бета-активность почв колеблется в диапазоне 200–300 Бк/кг, что превышает фоновое значение. Наиболее высокие уровни бета активности были зафиксированы в северной части Капана, возле заброшенного Кавартского карьера, а также на востоке города, на территории прилегающей к отвалам пустых пород Шаумянского рудника.

Таким образом, промышленные объекты Капанского горнодобывающего комплекса, являются источниками альфа-, бета-излучателей, которые, мигрируя в составе потоков ветрового и водного массопереноса (горно-долинные ветры, ливневые потоки и речной сток), аккумулировались в почвах пониженных частей рельефа: каньона р. Вохчи, где располагаются жилые части города.

Альфа активность в почве жилых районов Каджарана, как правило, не превышала фонового уровня 23.85 Бк/кг (рис. 6). Относительно высокая альфа-активность зафиксирована за пределами города на севере и юго-западе, на удалении от промышленных объектов, где в геологическом строении преобладают интрузивные породы.

Суммарная бета активности в Каджаране варьировала в пределах от 18.2–607.0 Бк/кг и составляла в среднем 363.7, что очень близко к значению, зафиксированному в почве фонового участка: 350 Бк/кг. Средний уровень бета-активности в городских почвах Каджарана превысил показатель Капана примерно в 1.6 раза, составив около 300–400 Бк/кг, но только в некоторых частях города был превышен при фоновом значении 350 Бк/кг. Наиболее высокие уровни бета-активности были зафиксированы в районе, при-

легающем к Зангезурскому медно-молибденовому комбинату (ЗММК).

Пространственное распределение суммарной альфа/бета активности (рис. 6) практически отражает геологическое строение местности (рис. 2). В почвах, развитых на богатых монцититами интрузивных породах были зарегистрированы высокие значения альфа- и бета-активности, тогда как, а в почвах, образованных на эффузивных породах зафиксированы более низкие значения.

Удельная активность естественных радионуклидов в почвах городов Капан и Каджаран и оценка обусловленного ими риска для здоровья населения

В Капане удельные активности ^{238}U , ^{232}Th и ^{40}K колебались в пределах 13.83–61.0 Бк/кг, 6.976–43.0 Бк/кг, 113.0–598.0 Бк/кг, соответственно (табл. 3). Максимальные значения удельной активности радионуклидов были зарегистрированы в почвах районов, прилегающих к производственным объектам, где также были зарегистрированы максимальные значения суммарной бета-активности.

В Каджаране активность ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K в почве варьирует в пределах 24.89–230 Бк/кг, 24.49–80.4 Бк/кг, 215–933.9 Бк/кг соответственно. Следует отметить, что в одном образце (К-30), который был взят с сельскохозяйственных угодий, прилегающих к городу, была обнаружена аномально низкая активность всех исследованных радионуклидов (табл. 3).

На основе удельной активности радионуклидов был рассчитан ряд радиологических параметров для оценки добавочно канцерогенного риска в течении жизни (табл. 5).

Исходя из содержания радионуклидов в капанских почвах, расчетные значения Odra в жилой зоне города варьируют от 17.7 до 42.7 нГр/ч, незначительно превышая показатель фонового участка (38.3 нГр/ч). Значения Odra жилой и рекреационной зон Капана ниже среднего мирового

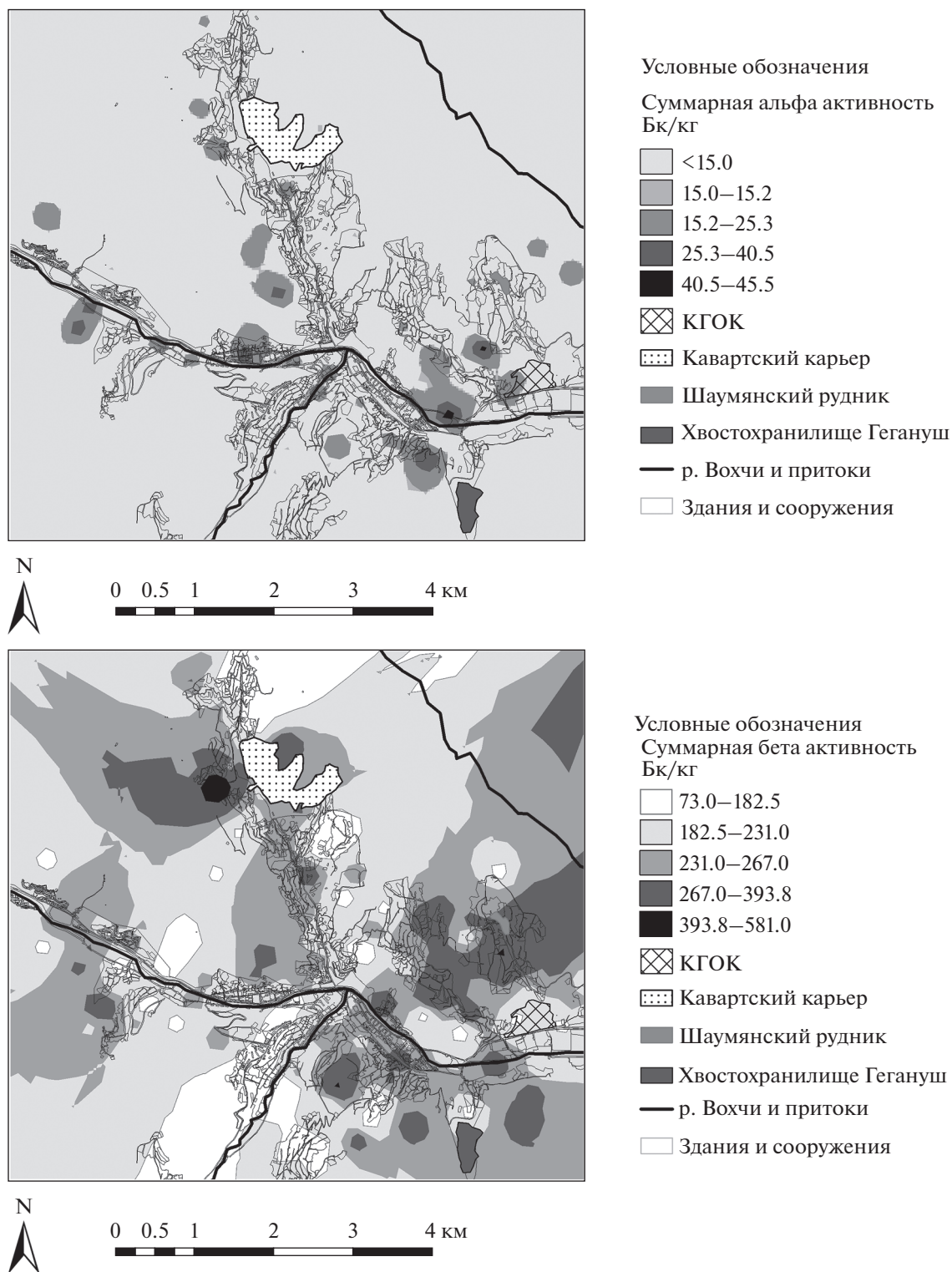


Рис. 5. Суммарная альфа и бета активности почв в г. Капан (количество образцов: 145, причем, для значений <MDA альфа активности (96 образцов) принято значение MDA/2. Метод интерполяции – IDW).

значения 59 нГр/ч (UNSCEAR, 2000; табл. 5). Наиболее высокие значения ODRa получены для почв, отобранных вблизи Кавартского карьера (KF-20-s) и отвалов пустой породы в промыш-

ленной зоне Шаумянского рудника на северо-востоке города (KF-119-s). Значения AEDE вари- ровали в диапазоне 0.02–0.09 мЗв/год, превышая среднемировое значение (табл. 5) только в почвах

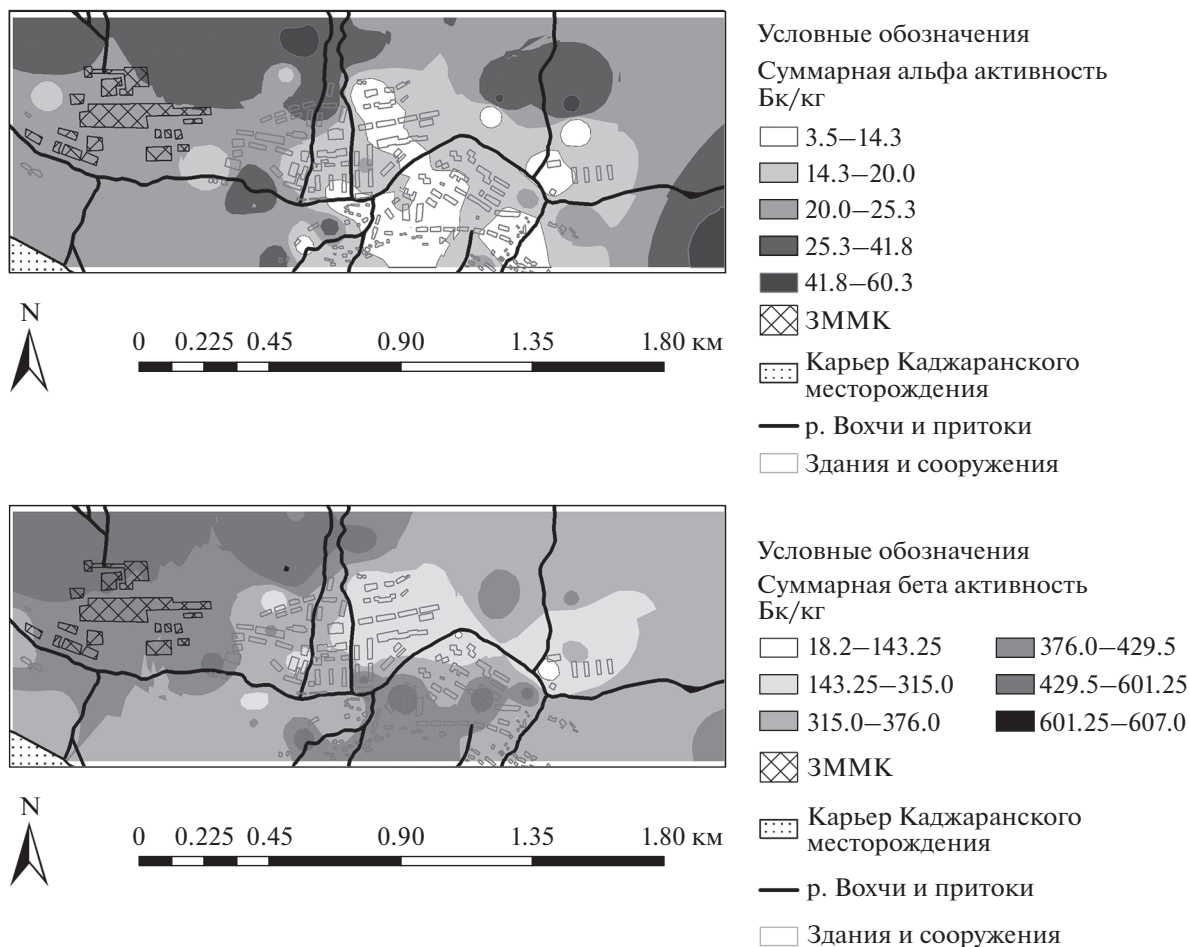


Рис. 6. Суммарная альфа и бета активности почв в г. Каджаран.

промышленной зоны Капана. Подобная закономерность была зафиксирована и для ELCR. Наибольшее значение показателя добавочного канцерогенного риска равно среднемировому значению: 2.9×10^{-4} и получено для почв промышленной зоны на северной окраине города близ заброшенного Кавартского карьера (табл. 5, рис. 7).

В Каджаране значения ODR варьируют от 48.6 до 180.3 нГр/ч со средним значением 114.4 нГр/ч, что почти вдвое превышает среднемировое значение, оцененное НКДАР (табл. 5). Значение AEDE, рассчитанное для фонового участка, некоторых городских жилых и промышленных районов, превысили среднемировое значение в 1.1–3 раза, варьируя от 0.06 до 0.22 мЗв/год. В трех пунктах отбора проб жилой и рекреационной зон г. Каджарана значения ELCR не превышали среднемировое значение, однако на севере и юго-востоке города, для почв, не затронутых горнорудной промышленностью и развитых на обогащенных естественными радионуклидами интрузивах, ELCR выше 2.9×10^{-4} (табл. 5, рис. 7). Таким образом, в г. Каджаране превышение среднемирового

уровня канцерогенного риска обусловлено локальным природным, повышенным содержанием естественных радионуклидов в почве.

Суммарная альфа/бета активность и удельная активность радионуклидов в отходах горнорудного производства

Помимо городских почв данная работа охватывала также исследование отходов производства различного генезиса: пробы почв рекультивационного слоя и хвостов трех законсервированных хвостохранилищ ЗММК (Даразами, Пхрут и Вохчи), хвосты действующего хвостохранилища КГОК Гегануш, техногенный или пульпопровода, а также пробы грунта с отвалов пустой породы Шаумянского рудника (рис. 3). В пробах отходов были измерены суммарные альфа и бета активности, определена удельная активность естественных радионуклидов: ^{238}U , ^{232}Th и ^{40}K .

В рекультивационном слое законсервированных хвостохранилищ ЗММК альфа активность варьирует в пределах 15–55 Бк/кг (табл. 6) и сопо-

Таблица 5. Радиологические параметры, рассчитанные на основе удельной активности естественных радионуклидов в почвах городов Капана и Каджаране

Проба	Функциональная зона	ODRA, нГр/ч	AEDE, мЗв/год	ELCR, безразмерный
Капан				
KF-20-s	Шаумянский рудник, прилегающий грунт	66.7	0.08	2.9E-04
KF-29-s	Окраина города, городская почва	39.4	0.05	1.7E-04
KF-35-s	Жилой район, городская почва	31.6	0.04	1.4E-04
KF-53-s	Жилой район, городская почва	38.6	0.05	1.7E-04
KF-79-s	Рекреационная зона, почва городского парка	34.2	0.04	1.5E-04
KF-97-s	Рекреационная зона, городская почва	50.2	0.06	2.2E-04
KF-115-s	Жилой район, городская почва	17.7	0.02	7.6E-05
KF-119-s	Кавартский карьер, прилегающий грунт	72.0	0.09	3.1E-04
KF-128-s	Жилой район, городская почва	42.7	0.05	1.8E-04
Фоновый участок	—	38.3	0.05	1.6E-04
Каджаран				
K-26	Рекреационная зона, ненарушенная почва	48.6	0.06	2.1E-04
K-30	Городские сельскохозяйственные участки,	0.004	0.00001	1.8E-08
K-33	Старый карьер, прилегающий грунт	64.6	0.08	2.8E-04
K-42	Жилой район, городская почва	133.5	0.16	5.7E-04
K-43	Жилой район, городская почва	181.7	0.22	7.8E-04
K-47	Производственный район ЗММК, городская почва	127.6	0.16	5.5E-04
K-48	Жилой район, городская почва	173.1	0.21	7.4E-04
K-9	Городские сельскохозяйственные участки	118.8	0.15	5.1E-04
Фоновый участок	—	79.4	0.10	3.4E-04
Среднемировое значение (UNSCEAR, 2000)		59.0	0.07	2.9E-04

Таблица 6. Суммарные альфа и бета активности в почве хвостохранилищ и рекультивационном слое почвы

Номер образца	Описание	Альфа активность, Бк/кг	Бета активность, Бк/кг
K-65	Рекультивационная почва	25.3	368
K-10	хв. Даразами	35.2	451
K-64		20.2	394
K-65A	Хвосты Даразами	<MDA	482
K-4	Рекультивационная почва	<MDA	569
K-5	хв. Пхрут	<MDA	529
K-6		15	594
K-3		55	623
K-72	Рекультивационная почва	<MDA	446
K-70	хв. Вохчи	15.2	400
K-7	Хвосты Вохчи	<MDA	535
K-69		<MDA	376
K-68		<MDA	190

ставима со средним показателем, зафиксированным для городских почв Каджарана (табл. 6). В отличие от этого, альфа-активность хвостов оказалась ниже предела обнаружения (7.0 Бк/кг).

Суммарная бета активность как в хвостах (395.75 Бк/кг), так и в рекультивационном слое законсервированных хвостохранилищ ЗММК (486 Бк/кг) несколько выше чем средняя арифме-

тическая рассчитанная для городских почв Каджарана. Максимальное значение суммарной бета активности зарегистрировано для почвы хвостохранилища Пхрут.

Исходя из результатов гамма-спектрометрии отходов горнорудного производства (рис. 8) очевидно, что удельная активность ^{238}U и ^{232}Th зависит от “происхождения” отходов. Так, отходы обо-

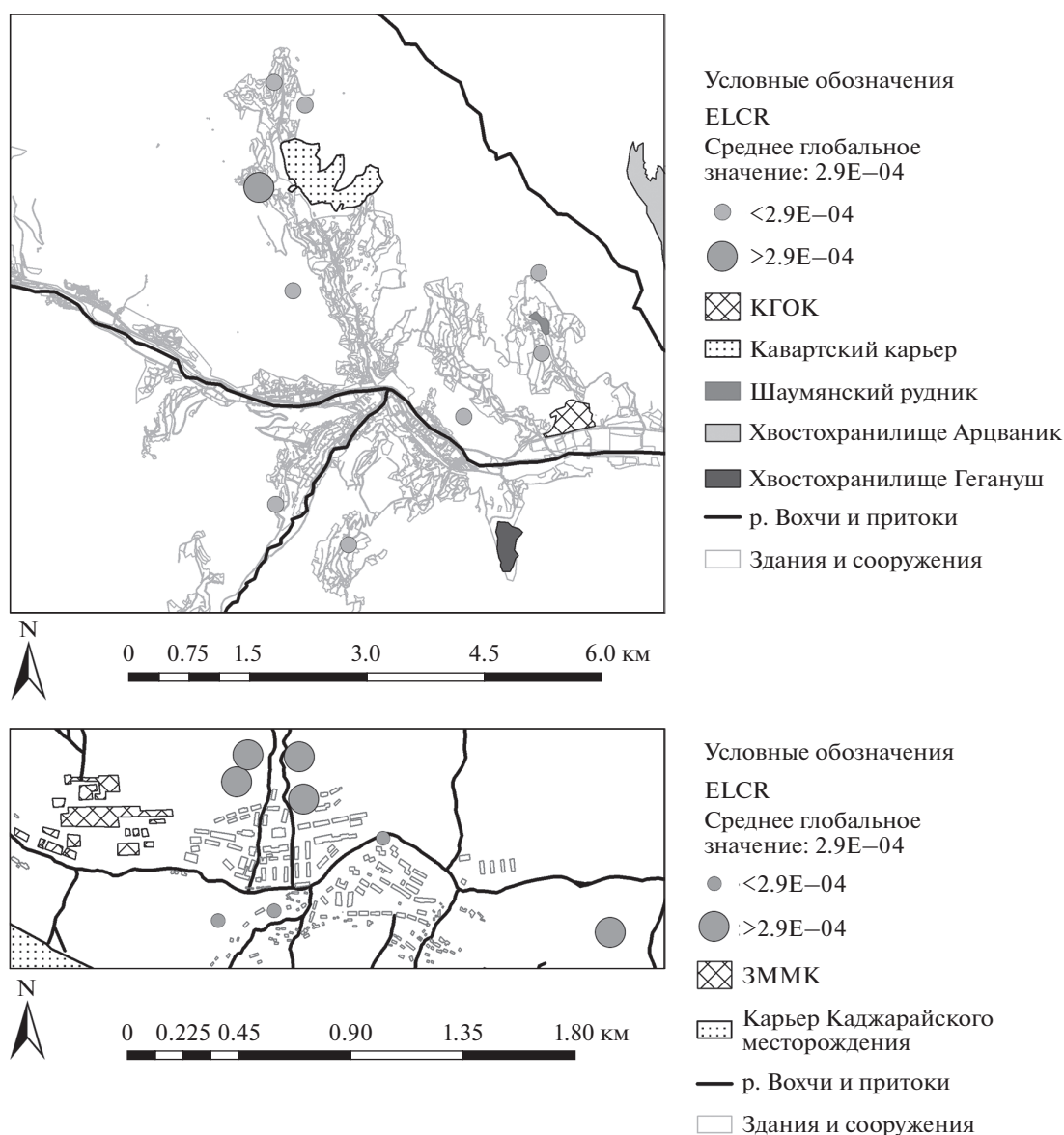


Рис. 7. Показатель потенциального канцерогенного риска, обусловленного активностью естественных радионуклидов в почвах Капана и Каджарана.

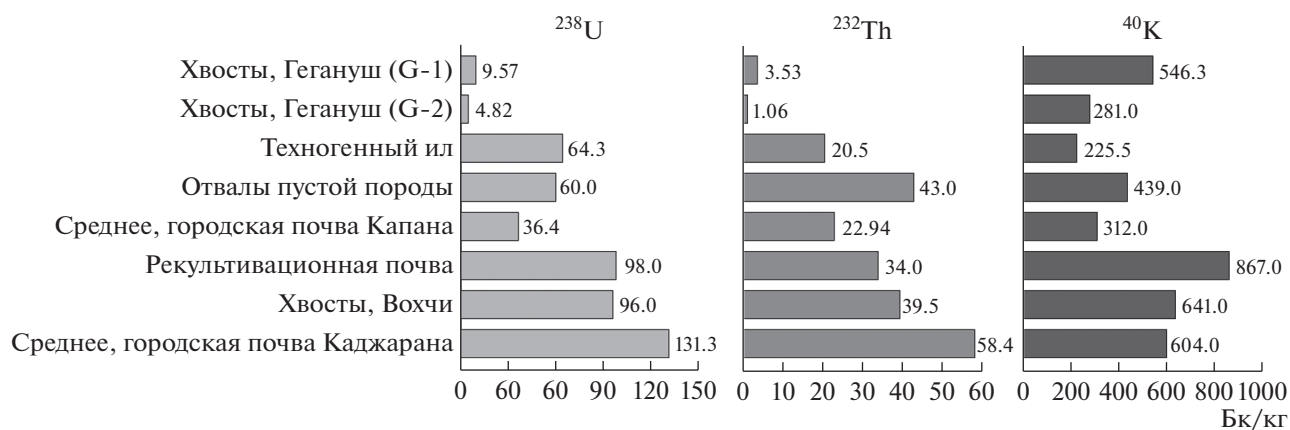


Рис. 8. Удельная активность (Бк/кг) естественных радионуклидов в отходах производства.

гащения, т.е. хвосты как ЗММК, так и КГОК характеризуются пониженной активностью ^{238}U и ^{232}Th по сравнению с грунтом, отобранном с отвалов пустых пород, и техногенным илом (рис. 8), в которых активность радионуклидов рядов урана и тория выше, чем средняя активность в городской почве. Для ^{40}K подобной закономерности не зафиксировано.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Материал многофункциональной педогеохимической съемки крупнейших горнодобывающих промышленных городов Армении Капана и Каджарана был использован для исследования технологически измененной естественной радиоактивности городских почв и отходов производства.

Исследования суммарной альфа/бета активности и естественных радионуклидов в городских почвах свидетельствуют о том, что промышленные объекты Капанского горнодобывающего комплекса, являющиеся источниками альфа- и бета-излучателей, которые, мигрируя, локально накапливаются в почвах пониженных частей рельефа, где располагаются основные жилые районы г. Капана. В Каджаране пространственное распределение суммарной альфа/бета активности и естественных радионуклидов отражает геологическое строение местности: в почвах, развитых на богатых монцититами интрузивных породах были зарегистрированы высокие значения суммарной альфа и бета активности и удельной активности радионуклидов, тогда как, а в почвах, образованных на эффузивных породах, зафиксированы более низкие значения. Объекты горнопромышленного комплекса г. Каджарана не играют значимой роли в перераспределении естественной радиоактивности почв. Для обоих городов суммарная бета активность почв положительно коррелирует с суммарной альфа активностью и удельной активностью естественных радионуклидов, тогда как корреляции между альфа активностью и радионуклидами не зафиксировано. В целом радиоактивность почв г. Капана значительно ниже, чем в Каджаране, что отмечено и на собственно городской территории и в пределах фоновых участков.

В промышленных отходах удельная активность ^{238}U и ^{232}Th зависит от степени переработки пород: в отходах обогащения, т.е. в хвостовом материале, удельная активность ^{238}U и ^{232}Th ниже соответствующих среднегородских показателей. В прочих отходах: материале отвалов пустых пород, в рекультивационной почве законсервированных хвостохранилищ, в техногенном иле удельная активность ^{238}U и ^{232}Th выше или на уровне среднегородских показателей. Для ^{40}K подобной зависимости не выявлено. В Капане отходы производ-

ства второго типа действуют как фактор технологического изменения естественной радиоактивности городских почв.

Наибольшее значение показателя потенциального канцерогенного риска равно среднемировому значению и получено для почв промышленной зоны на северной окраине города близ заброшенного Кавартского карьера, где отсутствует постоянное население.

Дозовая нагрузка и связанный с ней канцерогенный риск для здоровья населения в г. Капане в основном не превышают среднемировых значений, тогда как в г. Каджаране эти показатели выше среднемировых, используемых НКДАР ООН как пороговые.

Суммируя выводы, изложенные выше, приходим к заключению, что, хотя в Капане промышленные объекты являются источником технологически измененной естественной радиоактивности, потенциальный риск здоровью населения низкий. В Каджаране, потенциальный риск здоровью населения, обусловлен повышенным радиационным фоном, который является производным от геологического строения территории города.

Авторы выражают благодарность отделу геохимии окружающей среды ЦЭНИ НАН РА за предоставление фактического материала для данного исследования и персоналу лаборатории защиты окружающей среды ААЭС.

Эколого-геохимические исследования в г. Каджаране осуществлены при финансовой поддержке офиса ОБСЕ в Ереване и муниципалитета г. Каджарана (2005 г.). Педогеохимическая съемка почв в г. Капане проведена при финансовой поддержке офиса ОБСЕ в Ереване (2007 г.). Радиологические исследования проведены в рамках программы базового финансирования ЦЭНИ НАН РА в 2016 г.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Алоян П.Г. (2010) *Ураноносность геологических формаций Армении*. Ереван: ГЕОИД, 184 с.
- Арбузов С.И., Риханов Л.П. (2010) *Геохимия радиоактивных элементов: учебное пособие*. Томск: Изд-во Томского политехнического университета, 300 с.
- Асланян А.Т. (1958) *Региональная геология Армении*. Ереван: Айпетрат, 430 с.
- Багдасарян А.Б. (1971) *Физическая география Армянской ССР*. Ереван: Изд-во АН АрмССР, 548 с.
- Ванюшин С.С., Лейе Ю.А., Малхасян Э.Г. (1957) *Кафанское медное месторождение (геологическое строение и перспективы)* Ереван: Кавказское Научно-Техническое Общество Цветной Металлургии, 72 с.
- Геология Армянской ССР (1967) Том VI. *Металлические полезные ископаемые*. Ереван: Изд-во АН АрмССР, 540 с.
- Комашенко В.И., Голик В.И., Дребенштетт К.К. (2010) *Влияние деятельности геологоразведочной и горнодо-*

- бывающей промышленностина окружающую среду. М.: КДУ, 356 с.
- Кочарян А.Е. (1969) Условия образования и закономерности размещения уранового оруденения на территории Армянской ССР. Дис. на соискание уч. ст. докт. геол.-мин. наук. Ереван: Институт геологических наук АН АрмССР, 488 с.
- Мкртчян С.С. (1958) Зангезурская рудоносная область Армянской ССР. Ереван: Изд-во АН АрмССР, 290 с.
- Национальный атлас Армении (2007) Том А. Ереван: Тигран Метц, с. 74-75
- Перельман А.И., Касимов Н.С. (1999) Геохимия ландшафта. М.: Изд-во Московского государственного университета, 610 с.
- Ревич Б.А., Сагт Ю.Е., Смирнова Р.С. (1982) Методические рекомендации по геохимической оценке загрязнения территорий городов химическими элементами. М.: ИМГРЭ, 112 с.
- Рихванов Л.П. (2009) Радиоактивные элементы в окружающей среде и проблемы радиоэкологии: Учебное пособие. Томск: Изд-во ТПУ 430 с.
- Сагателян А.К., Геворкян В.Ш., Аревшатын С.Г., Саакян Л.В. (2008) Эколого-геохимическая оценка состояния окружающей среды города Каджарана. Ереван: Изд-во Центр эколого-ноосферных исследований НАН РА, 200 с.
- Сагателян А.К., Саакян Л.В., Микаелян М.Г., Беляева О.А. (2010) Эколого-геохимический анализ рисков влияния горно-рудной промышленности на устойчивое развитие в Армении. *Известия РАН, Серия Географическая*. (5), 87-93
- Сагт Ю.Е., Ревич Б.А., Янин Е.П. (1990) *Геохимия окружающей среды*. М.: Недра, 335 с.
- Статистический ежегодник Армении (2019). Общий обзор. Статистический комитет Республики Армения, <https://armstat.am/file/doc/99516733.pdf>
- Статистический ежегодник Армении (2019а). Промышленность. Статистический комитет Республики Армения, <https://armstat.am/file/doc/99516788.pdf>
- Титаева Н.А. (2000) *Ядерная геохимия*. М.: Изд-во Московского Университета, 336 с.
- Al Nabhani K., Khan F., Yang M. (2016) Technologically enhanced naturally occurring radioactive materials in oil and gas production: a silent killer. *Process Saf. Environ. Protect.* (99), 237-247
- Carvalho F.P. (2017). Mining industry and sustainable development: time for change. *Food Energy Secur.* 6(2), 61-77.
- Cochran W.G. (1977) *Sampling Techniques*. John Wiley & Sons inc, 428 p.
- IAEA-TECDOC-1271 (2002) Technologically enhanced natural radiation (TENR II). Proceedings of International Symposium. Rio de Janeiro, 12–17 September, 1999. Vienna: IAEA 371 p.
- ICRP (1991) *Recommendations of the International Commission on Radiological Protection. Publication 60*. Oxford, New York, Frankfurt, Seoul, Sydney, Tokyo: Pergamon Press, 442 p.
- ISO 18512:2007. Soil quality – Guidance on long and short term storage of soil samples
- ISO 18589-6:2009. Measurement of radioactivity in the environment – Soil – Part 6: Measurement of gross alpha and gross beta activities.
- Jain R.K., Cui Z. “Cindy,” Domen J.K. (2016) Chapter 4. Environmental Impacts of Mining. *Environmental Impact of Mining and Mineral Processing. Management, Monitoring, and Auditing Strategies*. Boston: Butterworth-Heinemann, 53-157.
- Landa E.R. (2007) Naturally occurring radionuclides from industrial sources: characteristics and fate in the environment. *Radioactivity in the Environment* (Ed. Shaw G.) 10, 211-237.
- Ojovan M.I., Lee W.E. (2014) Naturally Occurring Radionuclides. In *An Introduction to Nuclear Waste Immobilisation* (Second Edition). Elsevier, 31-39.
- Paschoa A.S., Steinhäusler F. (2010) Chapter 3 – Terrestrial, Atmospheric, and Aquatic Natural Radioactivity. In *Radioactivity in the Environment, Volume 17* (Eds. Paschoa A.S. and Steinhäusler F.). Elsevier, 29-85.
- Saghatelyan A., Sahakyan L. Belyaeva O. (2012) Polluted Irrigation Waters as a Risk Factor to Public Health. *Chemistry Journal of Moldova. General, Industrial and Ecological Chemistry*. 7(2), 84-88.
- Saghatelyan A., Sahakyan L., Belyaeva O., Mikayelyan M. (2010) Heavy Metals Accumulation in System Soil-Farm Crops under the Impact of Mining Industry. In *Articles of the First Symposium on Medical Geology*. Tehran: Geological Survey of Iran, 38-46.
- Sahakyan L., Belyaeva O., Saghatelyan A. (2015) Mercury pollution issues in Armenia’s mining regions. In *Processings The 15th International Multidisciplinary Scientific Conference SGEM 2015. Vol. I. Ecology & Environmental Protection*. Alben, 513-520.
- Tepanosyan G., Sahakyan L., Belyaeva O., Asmaryan Sh., Saghatelyan A. (2018) Continuous impact of mining activities on soil heavy metals levels and human health. *Science of the Total Environment*. 639, 900-909.
- UNSCEAR (2000). Sources and effects of ionizing radiation. Vol. I, № Annex B. 156 p.
- US EPA (2002) *EPA QA/G-5S: Guidance on Choosing a Sampling Design for Environmental Data Collection*. Washington DC: Office of Environmental Information US EPA, 178 p.
- Valković V. (2019) Radioactive nuclides in nature. In: *Radioactivity in the Environment (Second Edition)*. Elsevier, 1-29.
- Vosniakos F.K. (2012) Status of the Problem. In *Radioactivity Transfer in Environment and Food. Environmental Science and Engineering*. Berlin, Heidelberg: Springer, 1-22.