



НАЦИОНАЛЕН ЦЕНТЪР ПО РАДИОБИОЛОГИЯ
И РАДИАЦИОННА ЗАЩИТА КЪМ МЗ
Секция „Радиационен контрол“

ГЛ. АС. КРЕМЕНА ГЕОРГИЕВА ИВАНОВА

**УРАНОДОБИВНА ПРОМИШЛЕНОСТ В БЪЛГАРИЯ
– СЪЩЕСТВУВАЩО ОБЛЪЧВАНЕ И РИСК ЗА
НАСЕЛЕНИЕТО**

АВТОРЕФЕРАТ
на дисертационен труд
за присъждане на научната и образователна степен
„Доктор“

Научна специалност:
03.01.32. Хигиена (вкл. Радиационна)

Научен консултант:
гл. ас. инж. физик Виктор Бадулин

София, 2015

Дисертационният труд съдържа 112 страници. Включва 20 фигури, 5 таблици и 1 приложение с 14 таблици. Дисертационният труд съдържа 5 раздела, изводи, научни и научно–приложни приноси. Използвани са 105 литературни източника, от които 27 на кирилица и 78 на латиница.

Дисертационният труд е обсъден и насочена за защита от Научния колегиум при НЦРРЗ на 27.11.2015 г.

Дисертантът е главен асистент и завеждащ инспекция ”Контрол в ядрената енергетика” при НЦРРЗ, София.

Научно жури:

1. проф. Райна Ботева
2. доц. Нина Чобанова
3. проф. Георги Василев
4. доц. Лидия Мишева
5. доц. Атанаска Ягова

Защитата на дисертационния труд ще се състои на, в залата на НЦРРЗ, бул. ”Свети Георги Софийски” №3, сграда 7, София

Материалите по защитата са на разположение на интересуващите се на интернет страницата и в учебен отдел на НЦРРЗ.

СЪДЪРЖАНИЕ

1. УВОД	5
2. ЦЕЛ И ЗАДАЧИ	6
2. МАТЕРИАЛИ И МЕТОДИ.....	7
2.1. Критерии за систематизиране на обектите	7
2.2. Пробовземане и анализ на проби от жизнената среда	7
2.2.1. Концентрация на естествен уран във води	7
2.2.2. Определяне на рН на води.....	8
2.2.3. Съдържание на радионуклиди в дънни утайки	8
2.3. Статистически методи за обработка на резултатите.....	8
2.4. Индикатори на риска	9
2.4.1. Оценка на миграцията на естествен уран.....	9
2.4.2. Ефективна доза от изхвърляния на руднична вода	9
2.4.3. Ефективна доза от инхалация на разпрасени дънни утайки	9
3. РЕЗУЛТАТИ И ОБСЪЖДАНЕ.....	10
3.1. Проучване на състоянието на обектите и систематизиране. 10	
3.2. Вода и дънни утайки.....	11
3.3. Индикатори на риска	18
3.4. Анализ на вариациите по видове обекти.	21
3.5. Корелационен анализ на резултатите от анализа на води и дънни утайки.	24
3.6. Клъстерен анализ на резултатите от анализа на води и дънни утайки	26
3.7. Класифициране на обектите	27
4. ИЗВОДИ.....	31
5. ПРИНОСИ	33
Summary.....	Error! Bookmark not defined.

СПИСЪК СЪС СЪКРАЩЕНИЯ И АБРЕВИАТУРИ

АЯР – Агенция за ядрено регулиране

ЕК – Европейска комисия

КИАЕМЦ - Комитет за използване на атомната енергия за мирни цели

ЛРОЙС - Линия за регенерационноочистка на йоннообменни смоли

МААЕ – Международна агенция за атомна енергия (IAEA)

МКРЕ - Международната комисия по радиационни единици

МКРЗ – Международна комисия по радиологична защита (ICRP)

МЗ – Министерство на здравеопазването

МИ – Министерство на икономиката

МИЕТ – Министерство на икономиката, енергетика и туризма

МОСВ - Министерство на околната среда и водите

МС – Министерски съвет

МДГЛ – Мощност на дозата гама лъчение

НКДАР - Научния комитет на Организацията на обединените нации за действието на атомната радиация (UNSCER)

НЦРПЗ – Национален център по радиобиология и радиационна защита

ПМС – Постановление на Министерски съвет

СЗО – Световна здравна организация

ISL – Геотехнологичен метод за добив на уран – in situ leaching

КА - Клъстерния анализ

KS - Тест на Kolmogorov–Smirnov

KW - Тест на Kruskal-Wallis

MW - Тест на Mann-Whitney

U_{nat} – естествен уран

$^{238,235,234}\text{U}$ – уран, съответните изотопи 238, 235, 234

^{232}Th – торий - 232

^{226}Ra – радий - 226

^{210}Pb – олово – 210

C - специфичната активност на радионуклид в Bq.g^{-1} или Bq.kg^{-1}

H_{T} – еквивалентна доза в Sv

E_{ex} – ефективна доза от външно облъчване в Sv

E_{in} – ефективна доза от вътрешно облъчване в Sv

GM – средна геометрична стойност

P_{ij} – трансферен параметър

$\dot{H}^*(10)$ - мощност на амбиентната доза гама лъчение в Sv.h^{-1}

s – стандартно отклонение (неопределеност)

u – комбинирана стандартна неопределеност (1σ)

1. УВОД

Човешкият живот и здравето на човека зависят от състоянието на околната среда. Качеството на живот е свързано директно с качеството на водата, която създава физико-химичната среда за обмяна на веществата и други жизнено важни процеси, без които не може да има живот. Известно е, че уранодобивната и уранопреработващата промишленост в България са оказали неблагоприятно въздействие върху жизнената среда. Независимо от това, че концентрациите на естествените радионуклиди са малко над фоновете стойности, извадените на повърхността радиоактивни отпадъци се разпространяват в жизнената среда и един от основните фактори допринасящи за разпространението им е водата. Радиоактивните замърсявания могат да бъдат пренесени на сравнително големи разстояния и по различни пътища системно да облъчват населението от тези райони, което налага някои от обектите да бъдат определени като ситуации на съществуващо облъчване.

Рискът за населението в класическата радиационна защита се оценява чрез ефективната доза. Комплексът от фактори, които оказват влияние при оценката на радиационния риск налага използването на степенуван подход. Степенуваният подход е структуриран метод, чрез който строгостта на прилагане на изискванията се променя в съответствие с условията и използваните системи за управление на риска. За прилагането му са предложени индикатори на риска на замърсяването на водите, на базата на които обектите да бъдат класифицирани за детайлна оценка, контрол и управление на риска.

Урановите залежи в България започват да се разработват след Втората световна война. Находищата са разпределени в няколко зони: Балканска, Средногорска, Родопска и Тракийска. Разработени са 48 уранови обекта и 30 са проучени за възможен добив. След колапса на икономическия пазар през 90^{-те} години на миналия век, правителството решава да прекрати дейностите по добив и преработка на уранова суровина през 1992 г. и с три постановления на Министерски съвет (МС) регламентира реда и начина на ликвидация, техническа и биологична рекултивация на урановите обекти.

Настоящият дисертационен труд е посветен на анализът на състоянието на обектите и повърхностните води в районите от урановата промишленост, двадесет години след затварянето им и на оценка на риска, актуални проблеми, свързани с оптимизация на съществуващата стратегия за контрол и управление на радиоактивните замърсявания и разпространението им в повърхностните води.

2. ЦЕЛ И ЗАДАЧИ

Цел:

Оптимизация на радиационната защита, контрола и управление на замърсяването на повърхностните води, свързани с бившата уранодобивна промишленост в България чрез прилагане на степенуван подход, отчеташ индикатори на риска за населението въз основа на анализ на обектите 20 години след затварянето им.

За постигането на тази цел са поставени следните задачи:

Задачи:

1. Проучване на състоянието на обектите и систематизирането им в съответствие с определени критерии.
2. Анализ на съдържание на естествен уран в руднични и повърхностни води.
3. Анализ на съдържание на радионуклиди в дънни утайки от руднични води и водосборни реки.
4. Определяне на индикатори на риска за прилагане на степенуван подход при класифициране на обектите за оптимизация на радиационната защита и контрол.

2. МАТЕРИАЛИ И МЕТОДИ

2.1. Критерии за систематизиране на обектите

Бившите обекти на уранодобивната и уранопеработващата промишленост са общо 78 по постановленията на МС. На място са проучени 74 обекта за периода 2012 – 2015 година. За всеки обект е изработен документ (анкетна карта), с информация за извършена рекултивация; състояние на рекултивационните мероприятия; разстояние до населено място; ниво на подземни води в района; начин на използване на терена; собственост на терена; видове растителност на терена; дебит на изтичащите руднични води; дебит и разположение на водоприемниците в хидрографската мрежа; хранителни навици на местното население и други, която може да послужи при оценката на риска за съответния обект. С цел оптимизиране на провеждания здравно-радиационен контрол, обектите са групирани в 50 броя на базата на следните критерии: общо населено място; обща водосборна река; начин на използване на земята; брой минни изработки, оказващи неблагоприятно въздействие на факторите на жизнената среда; резултати от измерванията на радиационните показатели; висока вероятност за инциденти; проведени рекултивационни мероприятия; сложност и вид на обектите и други.

2.2. Пробовземане и анализ на проби от жизнената среда

2.2.1. Концентрация на естествен уран във води

Представени са резултати от анализа на 44 броя систематизирани обекти. За оценка на миграцията на радионуклидите са обследвани най-близките водосборни реки, потоци или дерета. Водни проби са вземани преди вливането на изливите, които са приети за фонове, както и след вливането. От обектите където се извършва пречистване на рудничните води са взети допълнително 8 проби на вход и изход от пречиствателните съоръжения с цел определяне на ефективността на пречистване на водата от уран. Тези четири обекта са включени в анализа, но с данни от други пунктове (изработки), водите от които не се пречистват чрез съоръженията, за да се оцени необходимостта от допълнителни мерки. За определяне на концентрация на уран в настоящата разработка са анализирани общо 140 броя проби вода.

За консервативна оценка на риска обектът е разгледан с един пункт (минна изработка) - като източник на замърсяване на жизнената среда с максимално измерени стойности на радиационните параметри.

Естественият уран в пробите е определен със спектрофотометричен метод, който се основава на свойството на

индикатора Арсеназо III да образува селективно с четиривалентния уранилен йон стабилен цветен комплекс, чиято абсорбция се измерва със спектрофотометър при дължина на вълната 670 nm и е пропорционална на концентрацията на естествен уран в разтвора. За определяне концентрацията на уран се използва калибровъчна крива, построена с помощта на еталони с известна концентрация на уран.

2.2.2. Определяне на рН на води

Определянето на рН на водата се извършва на терена по време на пробовземането, преди пробата да бъде консервирана със солна киселина с преносим рН - метър „Star A121” на Thermo Orion Scientific, САЩ. Киселинността на водата е представена за всичките 140 броя проби.

2.2.3. Съдържание на радионуклиди в дънни утайки

Проби дънни утайки са взети от мястото на изхвърляне от подземните минни изработки и от близката река, преди и след обекта. При пробовземане на подземни води от сондажите, които не са на самоизлив, не е взета дънна утайка. В някои случаи, където коритото на реката е каменисто и/или е трудно достигането до брега, също не е взета дънна утайка. Съдържанието на радионуклиди в проби дънна утайка е изследвано в 108 проби.

Пробите дънна утайка са изследвани с гама-спектрометричен анализ. Гама-спектрометричната система се състои от компютърен многоканален анализатор с HPGe-детектор - тип GMX45P4-83-CW-SMN (с HPGe кристал с обем 226 cm³ и 0.9 mm тънък фиберкарбонов прозорец) с гарантирани от производителя относителна ефективност 45% и разделителна способност 2.1 keV (при енергия 1.33 keV) - монтиран в комбинирана защита тип HPLBS1 (10 mm желязо + 101 mm олово + 0.5 mm калай + 1.6 mm мед) и охладен с течен азот.

2.3. Статистически методи за обработка на резултатите

За обработка на данните са използвани дескриптивен анализ, проверка на хипотезите, корелационен и клъстерен анализ. Нормалността на разпределението е проверена с параметричен тест на Kolmogorov-Smirnov (KS), непараметрични тестове на Mann-Whitney (MW) или U-тест и на Kruskal-Wallis (KW). За проверка на нулевата хипотеза за равенство на дисперсии на две извадки са приложени теста на Fisher и параметричен тест ANOVA (еднофакторен анализ). За определяне на корелационната връзка на параметрите е използван коефициента на Пирсън. За класификацията на обекти е използван йерархичен клъстерен анализ (KA). Статистическата обработка на

резултатите е направена със статистически софтуери: XLSTAT Pro 7.5, Minitab 16 и SPSS. Разпределението на всички измерени резултати е трансформирано към log–нормално. Всички тестове са направени само за log–трансформирани стойности, тъй като това намалява влиянието на екстремните стойности. Приложен е тест на Бартли за проверка на хомогенността на отклонението, анализ на вариациите с t-теста и ANOVA тест.

2.4. Индикатори на риска

2.4.1. Оценка на миграцията на естествен уран

В настоящата разработка е оценено разпространението на радиоактивния елемент уран в 34 обекта, като е използван прост K_d -базиран модел, който се основава на предположението, че радионуклидът в твърдата фаза е в равновесие с радионуклида в разтвора или съществува обмен. За критерий е използвана определената от МААЕ типична средна стойност на коефициента на разпределение 2.0×10^2 [l.kg^{-1}].

2.4.2. Ефективна доза от изхвърляния на руднична вода

Скрининговите ефективни дози от изхвърлянията на ^{238}U в повърхностни води от минните изработки са изчислени, като е използван подхода "без разреждане", препоръчан в доклада на МААЕ (2001). Подходът „без разреждане“ разглежда три възможни сценария на облъчване на населението: водата се използва като питейна, чрез консумация на риба и при плуване във водата, като приносят на всеки от тези сценарии в общата ефективна доза е 61%, 35% и 4%, съответно. За класификация на обектите е използван дозовият критерий за ефективна доза от 0.3 mSv годишно за населението, препоръчан от МКРЗ (2013) при прилагането на принципа на оптимизация за съоръжение за депониране на отпадъци.

2.4.3. Ефективна доза от инхалация на разпрашени дънни утайки

Разгледан е пътят на облъчване на населението от инхалиране на прах от дънните утайки от обектите и е оценена очакваната ефективна доза от инхалиране. За оценката на вътрешното облъчване на представително лице след инхалиране на разпрашени дънни утайки е използван модела на МААЕ (2005) за определяне на концентрации за освобождаване от контрол. Очакваната ефективна доза от инхалиране е изчислена за ^{226}Ra , ^{234}U и ^{238}U .

3. РЕЗУЛТАТИ И ОБСЪЖДАНЕ

3.1. Проучване на състоянието на обектите и систематизиране.

Състоянието на територията на обектите на бившата уранодобивна и уранопереработваща промишленост и районите около тях, е проучено с поледи инспекции на място и обектите от ПМС № 74 (78 обекта) са обединени в 50 броя. Систематизираните обекти се състоят от един или няколко подобекта. Разположението на обектите е показано на фигура 1.



Фигура 1. Разположение на уранодобивните обекти

Обектите носят името на близкото населено място и уникален код, който се състои от комбинация на пощенския код на близкото населено място и латинска буква, според вида на обекта: U (Underground Mining) – обекти, с класически добив на уран и комбиниран метод чрез излужване; L (In Situ Leaching) - обекти с геотехнологичен метод; E (Exploratory Object)– проучвателни обекти, където не са добивани или са добивани незначителни количества уран, на които не е извършена рекултивация.

Въз основа на проучването на обектите е установено, че входовете на рудничните изработки на 39 % от систематизираните обекти са отворени, представлява не само сериозен радиационен риск, но и непосредствена опасност за населението и животните. От отворените щолни изтичат руднични води, които от някои изработки (пунктове) са с високи стойности на концентрацията на уран. Такива замърсени руднични води се пречистват само на три обекта : „Чора”, „Бялата вода” и „Искра”, със сорбционни колони с йонообменни

смоли. Водите на хвостохранилище Елешница, които изтичат по Вълче дере, се пречистват в пречиствателна инсталация за утаяване на манган, но наред с мангана се извършва съутаяване и на урана; утайките се депонират в лагуната на хвостохранилището.

3.2. Вода и дънни утайки

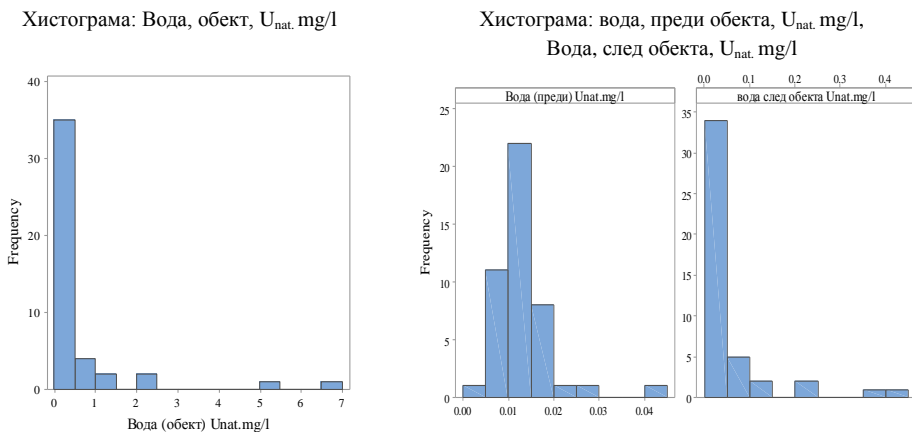
Дескриптивна статистика на резултатите за концентрацията на уран е представена в таблица 1. Диапазонът на концентрация на уран в рудничните води от минните съоръжения е от 0.005 до 6.8 mg.l⁻¹.

Таблица 1. Дескриптивна статистика на резултати за концентрация на U_{nat} и pH в проби вода от обекта, преди и след обекта, концентрация на уран в дънна утайка и коефициент на разпределение.

Параметър	Проби вода						дънни утайки	K_d
	U [mg/l] обект	pH обект	U [mg/l] преди	pH преди	U [mg/l] след	pH след	U [mg/kg] (обект)	
N	44	44	44	44	44	44	34	34
Min	0.005	3.16	0.004	6.00	0.008	4.45	1.7	4.13
Max	6.800	8.67	0.041	8.30	0.410	8.30	484	3255
Med	0.061	7.40	0.010	7.30	0.022	7.50	25.7	152
Am	0.569	7.17	0.012	7.33	0.055	7.36	65.71	401
SD	1.311	1.03	0.007	0.41	0.088	0.67	103.46	662
CV	228%	14%	54%	6%	158%	9%	155%	163%
GM	0.109	7.08	0.011	7.32	0.029	7.32	24.1	157
GSD	5.81	1.20	1.57	1.06	2.75	1.11	4.41	4.14

Стойности на концентрация на уран в рудничните води по-високи от 0.3 mg.l⁻¹ (Наредба № 1 на КИАЕМЦ, МОСВ и МЗ, 1999) са измерени в проби от 14 обекта, които представляват 32% от изследваните обекти. Стойностите за един обект (Габра) са на границата, което налага проследяването им за сезонни и годишни вариации. Най-високата концентрация на уран от изработките е измерена в обект Сенокос, а резултатите от проучвателните обекти Сугарево (5.2 mg.l⁻¹) и Горно Краище (2.0 mg.l⁻¹) са от същия порядък. Вода от шолна 9-та на Елешница не е изтичала приблизително до 2010 г., но в момента изтича с висок дебит директно в р. Златарица, а концентарцията на уран е с високи стойности 2.35 mg.l⁻¹, което потвърждава необходимостта от провеждане на продължителен радиационен контрол и мониторинг на обектите. Разпределението на измерените концентрации на уран във водите от изхвърлянията и повърхностните води преди и след обекта е логнормално ($KS, p=0.066$

за обекта; за реките преди обекта $KS, p=0.027$ и за реките след обекта $KS, p=0.167$). Разпределението на резултатите е представено графично на фигура 2.



Фигура 2. Разпределение на резултати на концентрацията на естествен уран в проби вода от обектите (в ляво) и водосборните повърхностни реки преди и след обекта (в дясно)

Взети са проби вода от най-близката водосборна повърхностна вода преди и след обекта, за да се оцени влиянието на изхвърлянията от минните изработки. Сравнително малка част от водите от обектите се изливат в големи реки, в повечето случаи изливанията са в малки потоци или дерета. Концентрацията на U във водата, взета от повърхностните води преди обекта, се приема като фоновата концентрация за районите. Тази концентрация варира от минималната концентрация на откриване 0.004 до 0.041 mg.l^{-1} със средна геометрична стойност от 0.011 mg.l^{-1} ($11 \text{ }\mu\text{g.l}^{-1}$). Концентрация на уран в диапазона от 0.02 до 0.045 mg.l^{-1} е измерена само във вода от три реки. Водата от реките (потоци или дерета) $300 - 500$ метра след вливането на рудничните води за определяне на концентрацията на уран е взета от всичките 44 оценявани обекта. Стойностите на U_{nat} във водата варират от 0.008 до 0.41 mg.l^{-1} със средна геометрична стойност на концентрацията 0.029 mg.l^{-1} ($29 \text{ }\mu\text{g.l}^{-1}$). Тази стойност е приблизително 3 пъти по-висока от оценената средна геометрична стойност (GM) фоновата стойност за районите, което показва, че съдържанието на уран в някои близки реки е повлияно от изхвърлянията на рудничните води. В интервала от 0.05 до 0.1 mg.l^{-1} е

измерен уран в 5 обекта, а стойности на концентрацията на уран в реките след обекта над 0.1 mg.l^{-1} - в 6 обекта. Най-високата стойност (0.41 mg.l^{-1}) е измерена в р. Кремиковска в селото, която от години се замърсява от шолна 93 (обект Сеславци), следвана от р. Лебница (обект Игралище) и р. Бабешка (обект Горно Краище).

В моментът на пробовземане е измерено рН на водата. Диапазонът на рН на фоновите проби от реките преди обектите е от 6.0 до 8.3, докато вариациите на рН на водата от обекта са от 3.2 до 8.7, а на водата от реките след обектите е от рН 4.5 до рН 8.3. Средните стойности на рН на водата от реката преди и след обекта не се различават съществено, но има обекти които показват променена киселинност на водите, изтичащи от изработките. Едни от обектите са променена киселинност на водата от изработките са обект Побит камък, за който е измерено рН 4.0 и Сърница, обл. Хасково с рН 3.2. Водата от обект Сърница е повлияла на преминаващата през селото р. Сичерско дере, за която е измерено рН 4.5.

За да се оцени пречистването на водите в обектите със сорбционни колони и пречиствателната станция в Елешница са взети проби вода преди и след съоръженията. Резултатите са представени в таблица 2.

Таблица 2. Резултати за концентрация на U_{nat} в проби вода от вход и изход на сорбционните съоръжения и пречиствателната станция (неопределеност на измерването е изразена в 1σ)

Инсталация	рН		Концентрация на U_{nat} [mg/l]		GPS
	вход	изход	вход	изход	
Сорбционна инсталация „Чора“	7	8.1	1.04 (0.12)	0.06 (0.01)	N 42° 46'20.7" E 23° 33' 32.4"
Сорбционна инсталация „Искра“	5.6	6.4	0.017 (0.002)	<0,01	N 42° 50'45.1" E 23° 20' 48.3"
Сорбционна инсталация „Бялата вода“	6.8	7.3	0.823 (0.099)	<0,01	N 42° 23'11.7" E 23° 41' 39.1"
Пречиствателна станция Елешница	5.5	6.2	1.247 (0.150)	0.10 (0.01)	N 41° 50'26.9" E 23° 37' 44.5"

От резултатите се вижда, че след пречистването на водата в сорбционните колони, измерените стойности са в диапазона на стойностите на фоновите проби. Заустванията на пречистваните води от сорбционните инсталации се контролират на базата на годишни изхвърляния в съответствие с наредбите на МОСВ. Представените

резултати в таблица 2 нямат за цел да представят работата на инсталациите, а ефективността на метода за пречистване на водата, което се потвърждава със стойностите на концентрацията на уран на изхода на колоните. Прилаганият метод на пречистване на водите от концентрацията на уран е ефективен, но следва да се направи анализ на „цена-полза“ като се включи управлението на продукта, който се получава при регенерация на смолите. Пречиствателната станция в с. Елешница е предназначена да пречиства водите от хвостохранилището от манган, но при процеса на утаяване на мангана се получава съутаяване на уран. От резултатите на входа и изхода на станцията се вижда, че концентрацията на уран във водите след пречистване е намаляла 8 пъти. Основният проблем при това пречистване е управлението на утайките, получени по време на процеса, за които трябва да бъде осигурено специализирано депо.

Пробите дънни утайки са взети от същото място, където са взети пробите вода, за да се направи оценка на миграцията на радионуклидите чрез процесите абсорбция и десорбция. Данните от анализа на специфичната активност на радионуклиди и концентрацията на уран в проби дънна утайка са представени в таблица 3.

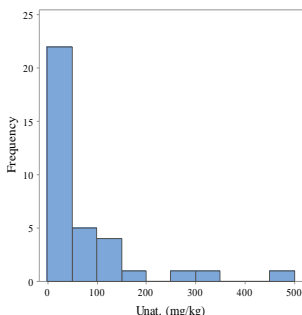
Таблица 3. Дескриптивна статистика на резултати за специфична активност на радионуклиди и концентрация на уран в проби дънна утайка от обекта, преди и след обекта

Параметър	Обект			Преди обекта				След обекта			
	²²⁶ Ra Bq/kg	²¹⁰ Pb Bq/kg	²³² Th Bq/kg	U mg/kg	²²⁶ Ra Bq/kg	²¹⁰ Pb Bq/kg	²³² Th Bq/kg	U mg/kg	²²⁶ Ra Bq/kg	²¹⁰ Pb Bq/kg	²³² Th Bq/kg
N	34	31	34	36	36	34	36	38	38	34	38
Min	29	15	8	1.02	9	11	7	1.67	18	12	11
Max	7520	1286	3980	16.80	103	147	98	117	924	344	309
Med	195	216	53	3.04	33	34	38	6.60	56	51	59
AM	545	298	196	4.01	38	36	42	15.52	119	67	68
SD	1290	293	665	3.30	21	25	22	24.93	183	70	52
CV	233%	97%	335%	0.81	56%	68%	52%	1.59	153%	102%	75%
GM	189	178	66	3.15	32	31	36	8.16	66	50	56
GSD	3.91	3.11	2.91	1.97	1.83	1.76	1.80	2.78	2.63	2.05	1.94

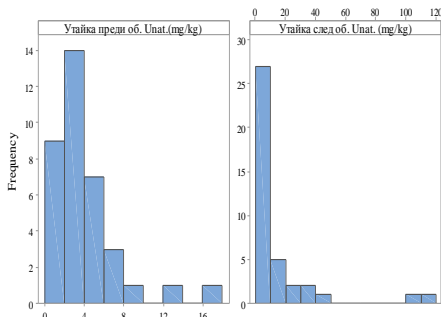
Резултатите за реките преди вливането на рудничните води могат да бъдат разглеждани като референтни (фонові) за дънните утайки от регионите на бившите уранодобивни обекти. В пробите дънна утайка от реките след вливането на рудничните води са измерени стойности

на радионуклиди от уран-радиевото семейство и на торий, които са по-високи от референтните (фоновите) измерени преди обекта.

Хистограма: утайка ,обект, U_{nat} . (mg/kg)



Хистограма: утайка, преди обекта, U_{nat} . (mg/kg), утайка, след обекта, U_{nat} . (mg/kg)



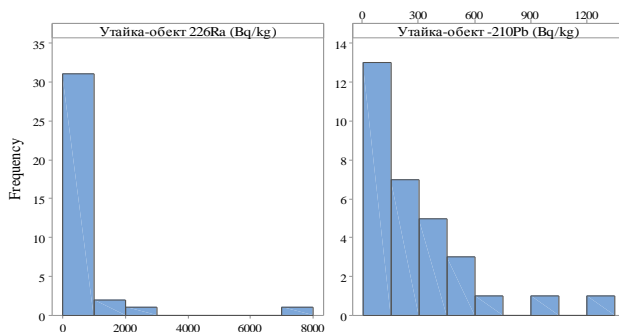
Фигура 3. Разпределение на концентрацията на естествен уран в проби дънни утайки от обектите (в ляво) и водосборните повърхностни реки преди и след обекта (в дясно)

Стойностите на концентрацията на уран в дънните утайки от обекта и от водосборните повърхностни реки преди и след вливането на рудничните води имат логнормално разпределение ($KS, p=0.740$ – преди обекта и $KS, p=0.288$ – след обекта). Хистограмите са представени на фигура 3. Концентрацията на U_{nat} в дънни утайки варира в границите от 1.7 до 484 $mgU.kg^{-1}$. Най-ниски стойности до 50 $mgU.kg^{-1}$ са измерени в 21 обекта, между 50 и 150 $mgU.kg^{-1}$ в 9 обекта, а стойности над 150 $mgU.kg^{-1}$ са измерени в 4 обекта (Елешница, Побит камък, Сборище и Нареченски бани).

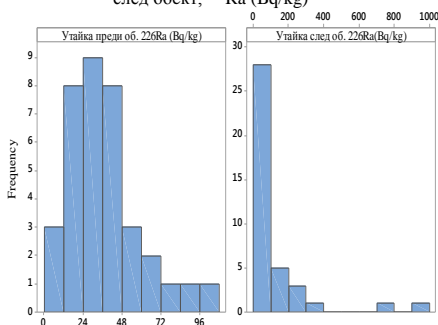
Вариациите на съдържанието на уран в дънните утайки от реките преди обектите са от 1.02 до 16.8 $mgU.kg^{-1}$ – в 9 реки по-малко от 2 $mg U.kg^{-1}$, в 21 реки в интервала от 2 - 6 $mgU.kg^{-1}$, на 3 места в интервала от 6 - 8 $mgU.kg^{-1}$, в 3 реки (р. Пробойница – Губислав, р. Яна – Сенокос и р. Сугаревска – Сугарево) - над 8 $mgU.kg^{-1}$. Концентрацията на уран в дънните утайки от реките след вливането на рудничните води варира в по-широки граници от фонови стойности 1.67 $mgU.kg^{-1}$ до 117 $mgU.kg^{-1}$, като най-високи стойности са измерени в р. Кремиковска (Сеславци) и р. Златарица (Елешница). Разпределението е както следва: по-малко от 10 mg/kg е измерено в дънните утайки от 26 реки, в интервала от 10 $mgU.kg^{-1}$ до 20 $mgU.kg^{-1}$ в утайките от 5 реки, а над 20 $mgU.kg^{-1}$ в дънните утайки от 7 реки.

Специфичните активности на ^{226}Ra и на ^{210}Pb в пробите дънна утайка от обектите и реките преди и след вливането на водите, изтичащи от минните изработки, имат логнормално разпределение. Хистограмите са представени на фигура 4, като от ляво е разпределението на стойностите на специфичната активност на ^{226}Ra от обектите и реките преди и след обектите ($KS, p=0.706$ – за обектите, $p=0.590$ – за реките преди обектите, $p=0.578$ – за реките след обектите), а от дясно разпределението на резултатите за ^{210}Pb ($KS, p=0.655$ – за обектите, $p=0.805$ – за реките преди обектите, $p=0.720$ – за реките след обектите).

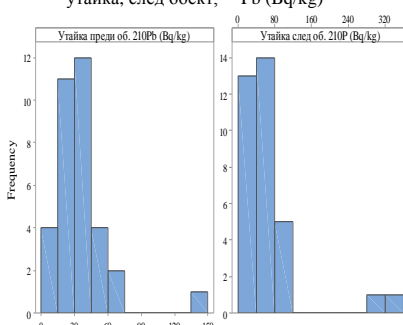
Хистограма: утайка, обект, ^{226}Ra (Bq/kg), утайка ,обект, ^{210}Pb (Bq/kg)



Хистограма: утайка, преди обект, ^{226}Ra (Bq/kg); утайка, след обект, ^{226}Ra (Bq/kg)



Хистограма: утайка, преди обект, ^{210}Pb (Bq/kg); утайка, след обект, ^{210}Pb (Bq/kg)



Фигура 4. Разпределение на специфичната активност на ^{226}Ra (в ляво) и ^{210}Pb (в дясно) в проби дънна утайки от обектите и водосборните повърхностни реки преди и след обекта

Стойностите на специфичната активност на ^{226}Ra в дънните утайки от повечето обекти, 30 на брой са по-ниски от 1000 Bq.kg⁻¹.

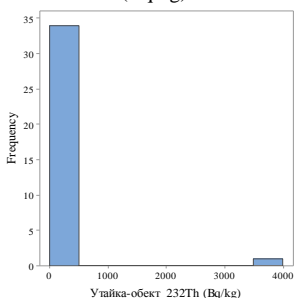
Специфични активности между 1000 и 2000 Bq.kg⁻¹ са измерени в 2 обекта (Смоляновци и Добралък) и също в 2 обекта (Нареченски бани и Сборище) те са над 2000 Bq.kg⁻¹. Фоновите стойности на специфичната активност на ²²⁶Ra са в интервала от 9 Bq.kg⁻¹ до 103 Bq.kg⁻¹. Най-високата фоновая стойност е измерена в дънна утайка от р. Яна (Сенокос). Разпределението на резултатите за специфичната активност на ²²⁶Ra в дънните утайки от реките след вливането на изливите от минните изработки също могат да се разделят в две групи: първа - 27 реки със специфична активност до 100 Bq.kg⁻¹ и втора - 11 реки със стойности над 100 Bq.kg⁻¹. Най-висока стойност на специфична активност на ²²⁶Ra в дънна утайка е измерена след обекта в Арпа дере (Планинец).

Подобно на резултатите за специфична активност на ²²⁶Ra, вариациите на специфичната активност на ²¹⁰Pb в дънните утайките от обектите също са в широки граници - от 15 до 1286 Bq.kg⁻¹. Специфична активност на ²¹⁰Pb в дънни утайки до 150 Bq.kg⁻¹ е измерена в 13 обекта, в интервала от 150 до 300 Bq.kg⁻¹ в 7 обекта, от 300 до 600 Bq.kg⁻¹ в 8 обекта и над 600 Bq.kg⁻¹ в 3 обекта (Нареченски бани, Добралък и Мелник). Фоновите стойности на специфичната активност на ²¹⁰Pb в дънните утайки от реките преди обекта са в диапазона от 11 до 147 Bq.kg⁻¹. Най-високата стойност на специфична активност на ²¹⁰Pb е измерена в дънна утайка от река Яна (Сенокос), за която е измерена също така и най-висока специфична активност на ²²⁶Ra. Разпределението на стойностите на специфичната активност на ²¹⁰Pb в дънните утайки от реките след вливането на изливите от изработките е както следва: до 40 Bq.kg⁻¹ в 13 реки, в диапазона от 40 Bq.kg⁻¹ до 120 Bq.kg⁻¹ в 19 реки, и над 280 Bq.kg⁻¹ в дънните утайки от 2 реки (р. Яна – Сенокос, р. Златарска – Елешница).

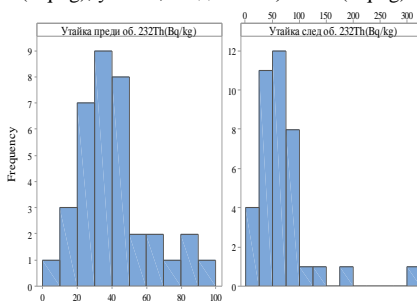
Проследено е разпределението на специфичните активности на ²³²Th в дънните утайки от обектите и реките преди и след вливането на рудничните води. Стойностите имат логнормално разпределение (KS , $p=0.396$ – за обектите, $p=0.363$ – преди обектите и $p=0.666$ – след обектите). Хистограмите на разпределение на стойности на специфичната активност на ²³²Th в дънни утайки от обектите са представени на фигура 5 в ляво, а разпределението на стойностите от реките преди и след вливането на рудничните води в дясно. Диапазонът на стойности на специфичната активност на ²³²Th в дънните утайки от обектите е от 8 до 3850 Bq.kg⁻¹. Най-високата стойност е измерена в дънна утайка от сондаж 1056 от обект Нареченски бани. Фоновите стойности на специфичната активност на ²³²Th в дънните утайки от реките преди вливането на водите, изтичащи

от изработките са в интервала от 7 до 98 $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$. Най-високи фоновни стойности на специфична активност на ^{232}Th има в дънната утайка от р. Чая (Нареченски бани), р. Яна (Сенокос), дере в с. Витина и р. Сугаревска (Сугарево), което вероятно е свързано с това, че те са райони с естествено високи стойности на концентрацията на ^{232}Th . Разпределението на стойностите на активността на тория в дънните утайки след обекта са: до $50 \text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$, измерени в 14 обекта, в интервала от 50 до $100 \text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ от 19 реки и над $100 \text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ в дънните утайки на 4 реки (Сичерско дере – Сърница, обл. Хасковско; р. Мелнишка – Мелник; р. Сперла – Бухово и Арпа дере – Планинец).

Хистограма: утайка, обект, ^{232}Th (Bq/kg)



Хистограма: утайка, преди обекта, ^{232}Th (Bq/kg), утайка, след обекта, ^{232}Th (Bq/kg)



Фигура 5. Разпределение на специфичната активност на ^{232}Th в проби дънни утайки от обектите (в ляво) и водосборните повърхностни реки преди и след обекта (в дясно)

Средно геометричната стойност на концентрацията на U_{nat} в дънните утайки от реките след вливането на изхвърленията от минните изработки е 2.6 пъти по-висока, отколкото преди вливането и хипотезата за равенство в резултатите е отхвърлена ($t, p=0,006$). Равенството между специфичната активност на ^{226}Ra от дънните утайки от реките преди и след обектите е отхвърлено ($t, p=0,009$), средно геометричните стойности се различават 2 пъти. Средно геометричните стойности на специфичната активност на ^{210}Pb е 1.6 пъти и между резултатите от реките преди и след вливането на изливите има статистически значима разлика ($t, p=0,009$).

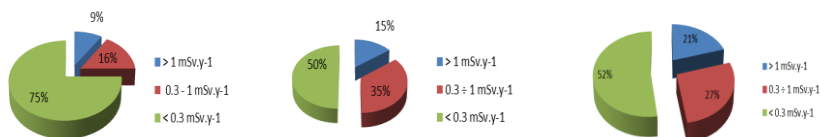
3.3. Индикатори на риска

Коефициентът на разпределение варира в широки граници от $4 \text{l}\cdot\text{kg}^{-1}$ (Сенокос) до $3255 \text{l}\cdot\text{kg}^{-1}$ (Белозем). В 13 обекта стойностите на

K_d са по-високи от средната стойност от $2.0 \cdot 10^2 \text{ l.kg}^{-1}$ (МААЕ, 2010 г.), докато в останалите 21 обекта, стойностите са по-ниски. По-ниските стойности на коефициента на разпределение показват, че в повечето обекти уранът е по-скоро мобилен и не се задържа в утайката, поради което зоната на източника на разпространение на замърсяването е по-голяма. Измерените по-високи стойности на концентрацията на уран в реките след вливането на рудничните води потвърждават твърдението, че уранът се разпространява, а не се утаява в утайките, съответно и определения коефициент на разпространение. Изследвана е линейната зависимост на коефициента на разпределение от съдържанието на уран във вода, в дънна утайка и от рН на водата. Приложен е корелационен анализ, като е използван коефициента на Спирман за доказване на зависимостта. Установена е слаба зависимост на коефициента на корелация между K_d и концентрацията на U_{nat} във водата ($\rho=0.572$). Зависимост на K_d от рН ($\rho=0.116$) и от концентрацията на U_{nat} в дънната утайка ($\rho=0.227$) не е установена, което показва, че коефициентът е специфичен за всеки обект и зависимостите следва да се оценяват за всеки един пункт (изработка), от която изтича вода. В обектите от класическия добив и проучвателните обекти се наблюдава по-нисък коефициент на разпределение. Това може да се обясни с факта, че в планинските райони, поради естественото излужване, уранът има относително по-висока разтворимост, по-малък коефициент на разпределение и се разпространява на по-големи разстояния. Коефициентът на разпределение определя обмена на радионуклидите между водата и дънните утайки и съществено зависи от вида на дънната утайка - пясък, глина и др. За това при обследване на обекта и определянето на коефициента следва да се проследява тази зависимост.

Максималните очаквани ефективни дози от ^{238}U за 30-годишен период на изхвърляне на руднична вода, която може да бъде получена от хипотетично представително лице, което използва водата изтичаща от минните изработки, варират от 0.01 до $4,3 \text{ mSv.y}^{-1}$. Очакваните максимални дози ясно показват, че при използване на водата от обектите, тя ще представлява радиационна опасност за населението. Процентното разпределение на обектите в съответствие с максималните очаквани ефективни дози от ^{238}U във водите от минните изработки са представени на фигура 6 (ляво). Консервативно изчислените дози при 75% от бившите минни обекти са по-ниски от критерия 0.3 mSv.y^{-1} . В тези обекти рискът от изтичащите води от минните изработки е нисък, но в тях следва да се извършва мониторинг за проследяване на вероятността от радиационно

замърсяване по воден път. Скрининговите очаквани ефективни дози за 16% от изследваните обекти са по-високи от критерия 0.3 mSv.y^{-1} , но по-ниски от 1 mSv.y^{-1} , а в 4 обекта (Сенокос, Сугарево, Елешница и Горно Краище), които представляват 9% от обектите, консервативно оцените очаквани дози са по-високи от препоръчаната от МКРЗ (2013) граница на годишната доза за облъчване на населението за ситуации на планирано облъчване от 1 mSv.y^{-1} .



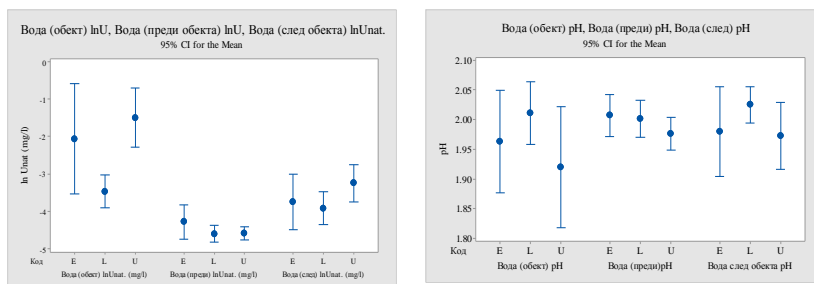
Фигура 6. Разпределение на обектите по оценените очаквани ефективни дози в % от използване на водата (ляво) и по оценените очаквани ефективни дози от инхалиране на дънните утайки (среда) и обща ефективна доза (дясно)

Процентното разпределение на обектите по оценените очаквани ефективни дози от инхалиране на ^{226}Ra , ^{234}U , ^{238}U от разпраснати дънни утайки са представени на фигура 6 (среда). Определянето на очакваната доза от инхалиране е направена за 34 обекта, от които са взети проби дънни утайки. Резултатите варират от 0.03 до 3.58 mSv.y^{-1} , като в 17 обекта очакваните ефективни дози от инхалиране са под определения критерий 0.3 mSv.y^{-1} , в 12 обекта очакваните дози са в интервала $0.3 - 1 \text{ mSv.y}^{-1}$ и в 5 обекта над 1 mSv.y^{-1} (Нареченски бани, Елешница, Сборище, Побит камък и Сугарево). Тези резултати означават, че в обектите, където очакваните ефективни дози от инхалиране са над определения критерий следва да бъдат предвидени мерки не само за управление на водите, но и за управление на дънните утайки. Оценена е общата очаквана ефективна доза за представително лице, което има вероятност да се облъчи, като използва водата, изтичаща от изработките и има вероятност да инхалират разпрасната дънна утайка на 44 обекта. Процентното разпределение на обектите по общата очаквана доза е представено на фигура 6 (дясно). В 21 % от систематизираните обекти (9 обекта) има вероятност да съществува повишен риск от използването на водата и от инхалиране на разпрасната дънна утайка. Това са обекти, за които следва да се предвидят мерки за радиационна защита и контрол. В 52 % от обектите вероятността от облъчване по воден път и

инхалиране на разпраснени дънни утайки е ниска, но в тях следва да се извършва мониторинг за проследяване и потвърждаване на вероятността от замърсяване по воден път.

3.4. Анализ на вариациите по видове обекти.

В зависимост от вида на провежданите дейности за добиване на уран, обектите са групирани в три групи със съответните кодове U, L и E и анализът на вариациите на измерените величини е извършен в зависимост от техния вид. Стойностите на концентрацията на U_{nat} във вода от обектите статистически се различават по видове обекти (KW , $p=0.010$). Водите от изработките от геотехнологични обекти (код „L“) се различават от тези на обектите с класически добив (код „U“) (MW , $p=0.004$). На фигура 7 са представени средните стойности на логаритмично трансформирани резултати на концентрацията на U_{nat} (ляво) във водите по групи при 95% доверителен интервал. От фигурата ясно се вижда, че реките след обектите са повлияни от дейностите провеждани по добива на уран. Съществена разлика между видовете обекти не се наблюдава. Разлика по групите се наблюдава само във водите от изработките. Въпреки, че GM стойността на концентрацията на уран във водите от обектите, където се е провеждало геотехнологично извличане на уран е по-ниска, тези обекти не трябва да се пренебрегват. При тях проблем може да представлява замърсяването на подземните води с течение на времето.



Фигура 7. Сравнение на резултатите по групи обекти на концентрацията на U_{nat} (ляво) и pH (дясно) във водите от обектите и реките преди и след вливането на изливите (95%-доверителен интервал)

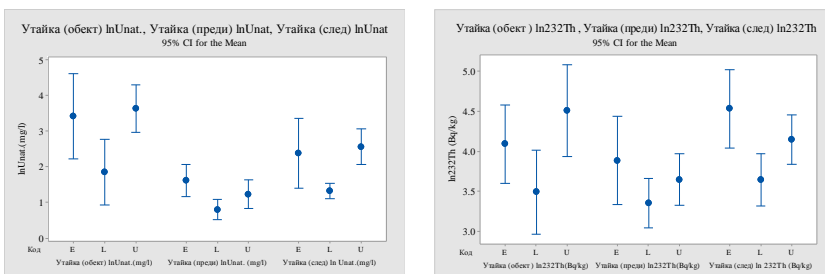
*сравнението е извършено на GM на log- трансформирани резултати

В тези райони населените места използват за питейни цели подземни води, които могат да бъдат повлияни от предишните дейности по геотехнологично извличане на уран чрез содови или киселинни разтвори. За това мониторинговите пунктове трябва да бъдат

анализирани с отчитане на информацията от хидрогеоложките проучвания за района. Следва също така да се провежда системен мониторинг на водите в района.

Средно геометричните стойности, логаритмично трансформирани и обединени за водите от обектите и реките преди и след тях по видове групи са представени на фигура 7 (дясно). От фигурата се вижда, че няма съществена разлика между рН на водата от реките преди и след вливането на водите, изтичащи от изработките. Не е установена статистически значима разлика в стойностите на рН по видове обекти от водите от обектите ($KW, p=0.355$), реките преди вливането на рудничните води ($KW, p=0.206$) и реките след обектите ($KW, p=0.382$).

Установена е разлика между концентрацията на уран в дънни утайки от обекти с код „U“ и „L“ ($MW, p=0.005$), както и между обекти с код „E“ и „L“ ($MW, p=0.024$). Концентрацията на U_{nat} в дънните утайки от реките преди обекта по видове обекти статистически се различава ($KW, p=0.035$). Стойностите за обекти с код „L“ се различават от тези за обекти с код „E“ ($MW, p=0.007$), вероятно поради различната геология на обектите от планината и низината. Статистически достоверна разлика има между стойностите на U_{nat} в дънни утайки от реки след обекта при различните видове обекти ($KW, p=0.001$). Средно геометричните стойности, логаритмично трансформирани, за концентрацията на U_{nat} в дънните утайки от обектите и реките преди и след тях по видове групи са представени на фигура 8 (ляво). Обектите с код „L“ се различават от обектите с код „U“ ($MW, p=0.001$) и обектите с код „E“ ($MW, p=0.002$) по стойностите на уран в дънните утайки.



Фигура 8. Сравнение на резултатите по групи обекти на концентрацията на U_{nat} (ляво) и ^{232}Th (дясно) в дънните утайки от обектите и реките преди и след вливането на рудничните води (95% доверителен интервал)

*сравнението е извършено на GM на log - трансформирани резултати

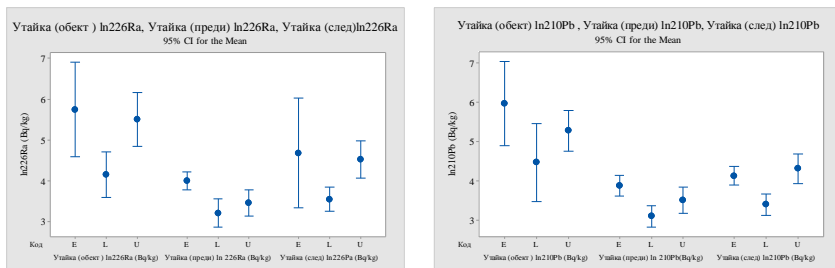
В зависимост от различията се оформят 2 групи: група на обекти с код „L“ и група на обекти с код „U“ и „E“. Вероятно причина за разликата може да бъде състоянието на рудничните изработки. Повечето сондажи в обектите с код „L“ са запечатани и от тях не изтичат води, докато в проучвателните обекти (код „E“) и тези с класически добив (код „U“) рудничните изработки са запълнени и от тях изтичат води.

На фигура 8 (дясно), са показани графично средните стойности на логаритмично трансформирани резултати на специфичната активност на ^{232}Th в дънни утайки от обектите и реките по видове обекти. Не е установена статистически значима разлика между стойностите на специфичната активност на ^{232}Th в дънните утайки от обектите по видове обекти ($KW, p=0.073$). Стойностите на активността на ^{232}Th в дънните утайки от реките преди обектите също не се различават по видове обекти ($KW, p = 0.093$). Разлика в стойностите на специфичната активност на ^{232}Th по видове обекти има само в дънните утайки от реките след вливането на изтичащите от изработките води ($KW, p= 0.007$).

Стойностите на специфичната активност на ^{226}Ra в дънните утайки от обектите статистически се различават по видове обекти ($KW, p = 0.027$). Обектите с код „L“ се различават от обектите с код „U“ ($MW, p=0.016$) и стойностите на обекти с код „E“ се различават от тези с код „L“ ($MW, p=0.032$). Фоновите стойности от реките преди обектите също се различават статистически по видове обекти ($KW, p= 0.009$) поради различната геоложка структура в районите. Обектите с код „L“ се различават от тези с код „E“ ($MW, p=0.002$), а обектите с код „U“ от тези с код „E“ ($MW, p=0.027$). Стойностите на специфичните активности на ^{226}Ra в дънните утайки от реките след вливането на рудничните води се различават статистически значимо ($KW, p= 0.004$). Обектите с код „L“ се различават от обектите с код „U“ ($MW, p=0.003$) и от обектите с код „E“ ($MW, p=0.018$). На фигура 9 (ляво) са показани средно геометричните стойности на специфичната активност на ^{226}Ra в дънни утайки по видове обекти от изтичащите изработки на обектите и реките преди и след вливането на рудничните води. От фигурата се вижда, че дънните утайки от реките са повлияни от изливащите се от изработките води и специфичната активност на ^{226}Ra се увеличава след тяхното вливане.

Стойностите на специфичната активност на ^{210}Pb естествено следват стойностите на специфичната активност на ^{226}Ra . Статистически значима разлика е установена между видовете обекти ($KW, p= 0.001$ – след обекта; $KW, p= 0.007$ – преди обекта). Обектите с код „L“ се различават от обектите с код „E“ ($MW, p=0.009$ – след

обектите; $MW, p=0.003$ – преди обектите) и с код „U“ ($MW, p=0.001$ – след обектите). На фигура 9 (дясно) са представени графично средно геометричната стойност на логаритмично трансформирани резултати на специфичната активност на ^{210}Pb в дънни утайки от обекти и реки по видове.



Фигура 9. Сравнение на резултатите по групи обекти на специфичната активност на ^{226}Ra (ляво) и ^{210}Pb (дясно) в дънни утайки от обекти и реки преди и след вливане на руднични води (95% доверителен интервал)

*сравнението е извършено на GM на \log - трансформирани резултати

Стойностите на специфичните активности на ^{226}Ra и ^{210}Pb и концентрацията на уран в дънни утайки статистически се различават между видовете обекти, в съответствие със стойностите на концентрацията на уран във водата. Установена е статистическа значима разлика между обектите с код „L“ и обектите с кодове „E“ и „U“, което може да бъде обяснено с разликата в дейностите, които са провеждани в тях. В повечето обекти, където е прилаган геотехнологичния метод на добиване на уран, няма сондажи на самоизлив и не са взети дънни утайки или на много места сондажите са разрушени. В тези обекти вероятността да се замърсят подземните води е важен проблем.

3.5. Корелационен анализ на резултатите от анализа на води и дънни утайки.

За проследяване на зависимостта между изследваните величини е приложен корелационен анализ на логаритмично трансформирани резултати за концентрацията на уран във води и дънни утайки, и специфичната активност на ^{226}Ra , ^{210}Pb и ^{232}Th в дънни утайки от обекти и реки преди и след вливането на изливите от изработките. Не е установена корелационна зависимост между концентрацията на уран във водите от обектите и реките преди и след тях, което показва, че водната среда е много динамична. На много

места рудничните води не достигат до повърхностното водосборно тяло, а се загубват по повърхността. Поради тази причина важен параметър при детайлното обследване е проследяване на нивото на подземните води и сезонния дебит на изхвърлянията. На други места водите се вливат в много по-големи реки, като р. Места, р. Доспатска, р. Черна, р. Тунджа и други, поради което концентрацията на уран се разрежда.

В дънните утайки, взети от реките преди вливането на рудничните води, са установени следните зависимости: специфичните активности на ^{226}Ra , ^{210}Pb и ^{232}Th показват силна корелация с концентрацията на U_{nat} , с коефициенти на Спиърмън $\rho=0.813$, $\rho=0.888$ и $\rho=0.811$ съответно, което се дължи на равновесието между урана и неговите дъщерни продукти и потвърждава, че това са фонове проби. В обектите е установена зависимост между концентрацията на уран във водата и дънните утайки ($\rho=0.656$), което потвърждава предположението, направено по-горе, че след 20 години съдържанието на уран във водата е в равновесие с това в дънната утайка. Естественят уран в дъните утайки от обекта корелира с ^{226}Ra ($\rho=0.615$) и ^{210}Pb ($\rho=0.613$). В дънните утайки от реките след вливането на изливите е запазена само корелацията между U_{nat} и ^{210}Pb ($\rho = 0.612$). Ниската корелация между U_{nat} и ^{226}Ra ($\rho=0.468$) потвърждава предположението, че разпространението и поведението на урана и радия е по различен начин при процеси, свързани с окисление и разтваряне.

Установена е връзка между съдържанието на ^{226}Ra и ^{210}Pb в дънните утайки от реките преди обекта ($\rho=0.864$), от обекта ($\rho=0.694$) и след обектите ($\rho=0.789$). В дънните утайки от обекта под влияние на химически процеси, които протичат в старите минни изработки, може да се направи извод, че радия и оловото са в равновесие и се разпространяват по подобен начин.

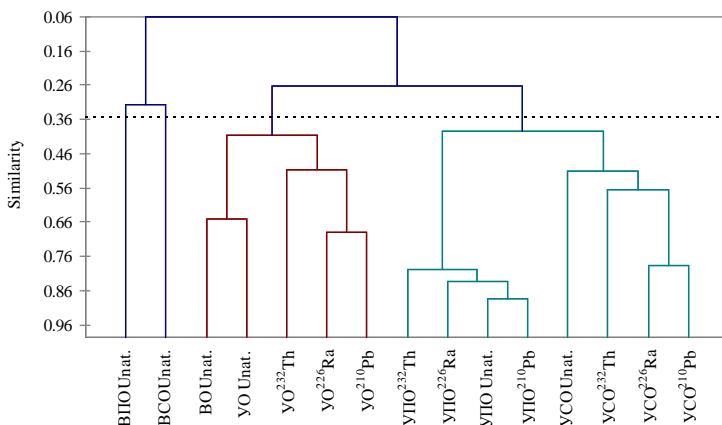
Корелацията между ^{226}Ra и ^{232}Th в дъните утайки (преди обектите $\rho=0.776$; от обектите $\rho=0.581$; след обектите $\rho=0.625$) е приблизително запазена, което показва, че ^{232}Th и ^{226}Ra са с понижена разтворимост във вода и присъстват в дънните утайки.

Слабата корелация между U_{nat} и неговите дъщерни продукти, която намираме в пробите дънна утайка от обекта и след обекта показва, че уран не се абсорбира в утайката и е податлив на десорбция т.е. уранът е по-мобилен. Това води до заключението, че уранът се разпространява на по-големи разстояния, което следва да се вземе под внимание при оценката на облъчването на населението и при

предприемането на мерки за ограничаване на радиоактивното замърсяване.

3.6. Клъстерен анализ на резултатите от анализа на води и дънни утайки

Стойностите на параметрите в групите, които са получени при клъстерния анализ, са относително еднородни, а стойностите между групите се различават. Резултатите са представени в дендограма на фигура 10. Клъстерният анализ е извършен на резултатите от концентрацията на вода, дънни утайки и специфична активност ^{226}Ra , ^{210}Pb , ^{232}Th в дънни утайки от обекти и реки преди и след вливане на руднични води. В зависимост от произхода на пробите данните са разпределени в четири групи. Първи клас съдържа данните за концентрацията на U_{nat} във водата от реките преди и след вливане на изливите от изработките. Във вторият клас са групирани концентрацията на U_{nat} , измерена във вода и дънна утайка от обектите и специфичните активности на ^{226}Ra , ^{210}Pb и ^{232}Th . Тези стойности са с относително по-високи стойности от останалите анализирани показатели. Специфичната активност на ^{226}Ra , ^{210}Pb и ^{232}Th и концентрацията на U_{nat} в дънни утайки, взети преди обекта, са в трети клас. В четвърти клас са класифицирани специфичните активности на ^{226}Ra , ^{210}Pb и ^{232}Th и концентрацията на U_{nat} в дънни утайки от реките след обектите.

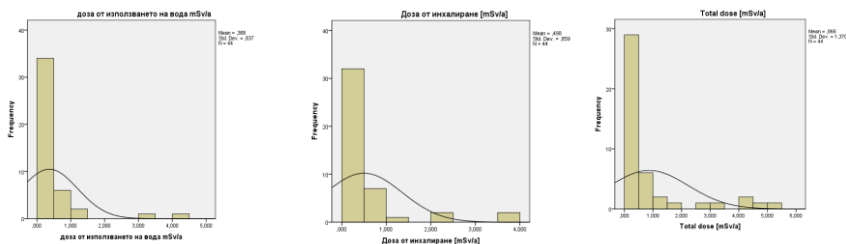


Фигура 10. Дендограма от клъстерния анализ (доверителен интервал 95%)
 *В-вода, У-дънна утайка; О-обект, ПО – преди обекта, СО – след обекта

Клъстерният анализ потвърждава различието между групите проби по техния произход и съответно наличие на радиоактивно замърсяване на пробите от обектите. Групирането на пробите от реките (вода и дънни утайки) след обекта в отделна група, различна от фоновите проби, е доказателство за разпространение на радиоактивно замърсяване във водосборните повърхностни реки.

3.7. Класифициране на обектите

За класифициране на обектите по рискови фактори на базата на индикаторите на риска е приложен степенуван подход, с цел оптимизиране на радиационната защита, мерките и контрола в обектите със съществуващо облъчване. Приложеният подход е насочен към източника, а не към рецептора, защото са приложени консервативни оценки. Разгледаните рискови фактори от изтичащите води от бившите изработките са използване на водата, разпрашаване на дънните утайки и разпространение на радиоактивното замърсяване. Като индикатори на риска, консервативно са оценени очакваните ефективни дози за населението, при предположение, че хората използват водата, изтичаща от изработките и престояват половината от времето на открито в районите. За допълнително охарактеризиране на риска е определен и коефициента на разпределение (K_d), което позволява установяване на вероятността за мигриране на замърсяването на по-големи разстояния. Хистограмите на ефективните дози от използване на вода изтичаща от изработките, инхалиране на разпраснени дънни утайки и общата доза са представени на фигура 11.



Фигура 11. Хистограми на разпределение на резултатите за ефективна доза от използването на вода (ляво), за ефективната доза от инхалиране (среда) и обща очаквана ефективна доза (дясно)

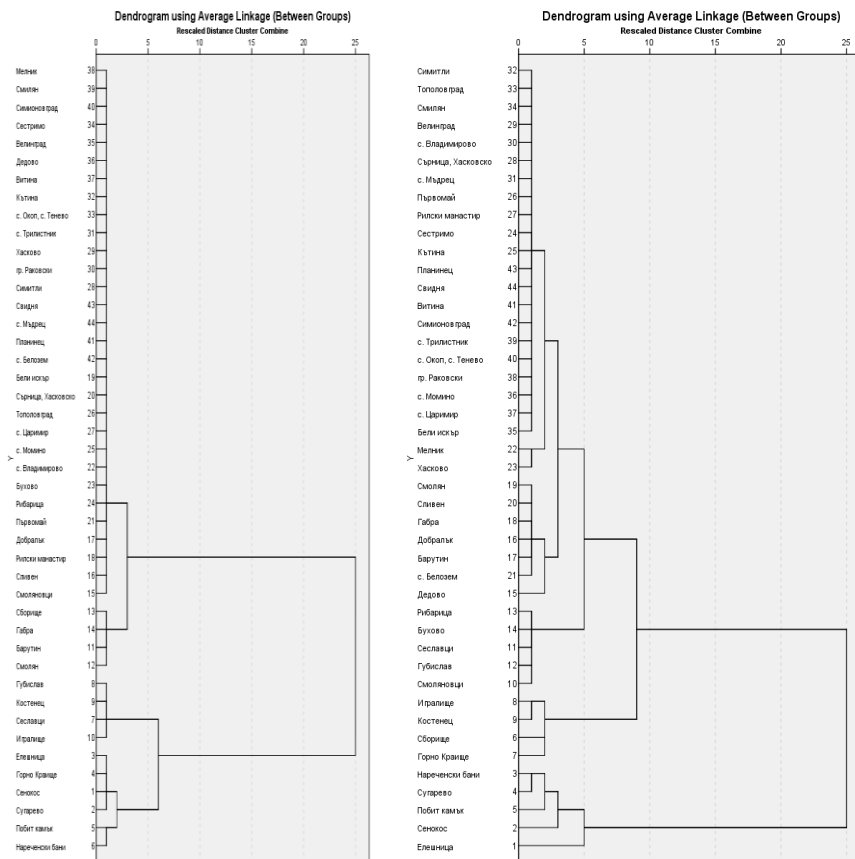
Средната стойност на очаквана доза от използване на вода, изтичаща от мините изработки е 0.40 mSv.y^{-1} , на ефективната доза от инхалиране на разпраснени дънни утайки е 0.50 mSv.y^{-1} , а на общата доза 0.90 mSv.y^{-1} . Очакваната ефективна доза от инхалиране е по-

голяма от вероятностната доза от използване на водата, което показва, че при управление, предприемане на мерки за радиационна защита и контрол на водите, следва да се предвидят и утайките. При оценката на рисковия фактор – дънни утайки, не е взето под внимание външното облъчване на населението, което показва, че тези утайки оставени в района, могат да представляват сериозен риск за населението.

В новата директива на Европейската Комисия за определяне на основни норми на безопасност, при определяне на референтните нива за правилно управление на ситуациите на съществуващо облъчване, за облъчвания под или равни на 1 mSv на година, могат да се вземат под внимание общата информация за нивото на облъчване, без да се отчитат изрично индивидуалните облъчвания. Следователно, може да бъде предложена за гранична доза 0.3 mSv.y^{-1} за воден път на облъчване от референтното ниво за ситуации на съществуващо облъчване. На база на предложената гранична доза може да бъде определена вторична граница за концентрация на естествен уран от 0.2 mg.l^{-1} по дозовите коефициенти за поглъщане на естествен уран чрез водата, предполагайки естествено съотношение на изотопите на урана. При определянето е взето под внимание, че 0.61 е приносът на питейната вода към общата доза, консумацията на вода за една година е 730 l и дозовия коефициент за естествен уран е 0.84 g.y^{-1} за 1 mSv.y^{-1} .

Обектите са обединени по рискови фактори според индикаторите на риска с помощта на клъстерен анализ. При образуването на групите (кълъстери) за измерване на сходството, е използвано Евклидово разстояние и единична връзка между случаите. По този начин рисковите фактори могат да бъдат разгледани поотделно за няколко обекта и едновременно да бъдат предвидени мероприятия за радиационна защита, контрол и управление на замърсяването. Дендограмата от клъстерния анализ на очакваната ефективна доза от използване на вода и общата очаквана ефективната доза са представени на фигура 12. В група 1 попадат обектите с най-високи стойности на дозите, а в група 4 с най-ниските. Групирането по коефициента на разпространение може да бъде използвано за определяне на видовете мерки и обхвата на контрол на разпространение на замърсяването. Например обектите Сенокос и Елешница са класифицирани в една група по доза от използване на водата, но в различни групи, по коефициент на разпределение. Уранът е мобилен в обект Сенокос и концентрацията на уран в р. Яна (0.122 mg.l^{-1}) го доказва, докато в обект Елешница той е по-податлив на утаяване. Очакваната ефективна доза от инхалиране за обект Елешница е с високи стойности, следователно следва да се предвиди

рекултивация на утайките и терена замърсен от изтичащите води, защото изливите от щолна 9 преминават през обработваемите ниви в селото.



Фигура 12. Дендограма от клъстерния анализ на обектите по ефективна доза от използване на водата от изработките (ляво) и обща очаквана доза (дясно)

Използваният степенен подход, препоръчан от МААЕ (2014) е оптимален за оценка на разпределението на дозите, постигнато в резултат на прилагането на стратегията за управление на ситуации за съществуващо облъчване, обмисляне на стъпки за оптимизиране на защитата и за намаляване на облъчвания, които надвишават референтното ниво.

Класифицираните обекти могат да бъдат приоритизирани за по-детайлна оценка на разпространяването на замърсяването чрез водата и за провеждане на контрол на дадения етап. Детайлната оценка изисква повече работа по обследване на обекта и характеризиране на източниците, геоложките особености и навиците на населението, от района, както и използването на по-реалистични модели. Бившите уранодобивни обекти са много на брой и използването на междинна скринингова оценка, която да позволява надграждане на информацията, е гъвкав подход за подобряване на качеството на провеждания контрол в тях. В новата Европейска директива едно от основните изисквания, наред с оценка на облъчването, е работата със заинтересованите страни и населението в района. Следователно провеждането на контрол в обектите, където има вероятност от замърсяване на територии от минали дейности, следва да включи работа с местното население и заинтересованите лица в района.

4. ИЗВОДИ

1. Извършени са системни проучвания на повърхностните водосборни реки преди вливането на водите от минните изработки, които позволяват да бъдат установени фонове стойности на концентрацията на уран във води и дънни утайки и специфичната активност на естествени радионуклиди в дънните утайки за районите на бившите уранодобивни обекти.

2. Анализът на данните за пробите вода и дънни утайка след вливането на водите от минните изработки, показва че водосборните реки са засегнати от замърсените изливи, което допринася за разпространение на радиоактивното замърсяване на по-големи разстояния.

3. Корелационният анализ на съдържанието на радионуклиди във водата и в дънните утайки показва липса на равновесие между тях.

4. Изследваната зависимост на концентрацията на уран във водата и дънните утайки от обекта и водосборните реки в районите доказва, че урана е мобилен и в повечето обекти не се абсорбира в утайките. При прилагане на мерки за редуциране на радиоактивното замърсяване, следва да се има предвид мобилността на урана и констатираните високи стойности на специфичната активност на ^{226}Ra и ^{210}Pb .

5. Предложените индикатори на риска са оптимални за оценка на разпределението на дозите, постигнато в резултат на прилагане на стратегията за управление на замърсяването на водите и предприемане на стъпки за оптимизиране на пречистването им.

6. Оценените очаквани ефективни дози от воден път на облъчване и инхалиране на разпрасени дънни утайки дават основание да се направи извода, че облъчването в повечето от обектите следва да се разглежда като ситуация на съществуващо облъчване.

7. Рекултивационните дейности следва да продължат да се прилагат, като се включат и проучвателните обекти. Необходимо е детайлно анализиране на прилаганата рекултивационна стратегия, с

цел оптимизиране и обмисляне на дейности по рискови фактори за защитата и за намаляване на всякакви облъчвания.

8. Степенуваният подход с консервативно оценени индикатори на риска може да бъде използван за класификацията на обектите и рисковите фактори, за изготвяне на програма за профилактика и промоция на здравето на населението от районите, където има вероятност да съществува облъчване вследствие на замърсяване на територии от минали дейности.

5. ПРИНОСИ

Научни приноси:

1. Анализирани са корелационните зависимости между съдържанието на естествен уран в пробите вода и дънни утайки и специфичната активност на естествени радионуклиди в дънните утайки от обектите и водосборните повърхностни реки.

2. Установени са фонове (референтни) нива на концентрацията на уран във води и дънни утайки, и специфичната активност на естествени радионуклиди в проби дънни утайки.

3. Изследвана е мобилността на урана в бившите обектите от уранодобивната промишленост.

Научно – приложни приноси

4. Предложени са индикатори на риска при охарактеризиране на замърсяването на водите, на базата на които е извършена класификацията на обекти и оптимизиране на прилагания контрол и мерки за редуциране разпространението на замърсяването.

5. Предложена е гранична доза за рисковия фактор - изтичане на руднични води от 0.3 mSv.y^{-1} , от референтното ниво на ефективната доза за население за ситуации на съществуващо облъчване, с вторична граница за концентрация на естествен уран – 0.2 mg.l^{-1} .

6. Предложен е степенуван подход с консервативно оценени рискови индикатори за целите на изготвяне на програма за профилактика и промоция на здравето на населението.

Научни публикации по темата на докторантската теза

1. **Ivanova, K.**, Stojanovska, Z., Badulin, V., Kunovska, B., Yovcheva, M., Radiological impact of surface water and sediment near uranium mining sites. J. Radiol. Prot. 35, 819, 2015
2. **Иванова, К.**, Бадулин, В., Йовчева, М., Куновска, Б., Състояние на обектите от бившата уранодобивна и уранопрееработваща промишленост. НЦППЗ 50 години-София, pp 23-33, ISBN: 978-619-90135-3-3, 2013.
3. O'Brien, R., McDonald, P., Yu, C., Koukouliou, V, **Ivanova, K.**, et al. Environmental modelling of NORM. Radioprotection, Vol. 44, pp 23-28, 2009
4. **Ivanova, K.**, Kraivanov, I., Zaneva, N. Retrospection and analysis of remediation action in the former mining and milling sites in Bulgaria and assessment of the radioecological status of the environment in the sites. Journal Ecology& Safety. International Scientific Publications, Vol 2, part 2, pp 262-268, ISSN 1313-2563, 2008.

Научни съобщения по темата на докторската теза

1. **Иванова, К.**, Бадулин, В., Куновска, Б., Йовчева, М., Котова, Р., Тоцева, Р. Оценка на замърсяване на околната среда и радиационен риск в ситуация на съществуващо облъчване(с.Елешница). Постер на 15-ти национален конгрес на БАР, 26-29.09.2013 г.

Участие в проекти на МААЕ по темата:

EMRAS (2003-2011) Проект на МААЕ “Моделиране на трансфера в околната среда за целите на радиационната защита”. Участие в IAEA-TECDOC-1678, Environmental Modelling for Radiation Safety – Summary Report of results on the EMRAS Programme (2003-2007)

Справка за цитирания на научни публикации от други автори:
O'Brien, R., McDonald, P., Yu, C., Koukouliou, V, ..., Ivanova, K., et al. Environmental modelling of NORM. Radioprotection, Vol. 44, pp 23-28, 2009

Цитати в:

Report of the Belgian Nuclear Research Centre, SCK•CEN-ER-147. ISSN 1782-2335 Qualification file of “GASRIM” for dispersion calculations of radioactive contamination in the atmosphere

Uranium Mining industry in Bulgaria – existing exposure situation and risk for population

Summary

Former uranium mining sites are contaminated areas with residual radioactive materials creating prerequisites of public exposure. The present study analyzed the radiological impact of surface water and bottom sediment twenty years after closing of uranium mining activities. For the purpose uranium concentration in water and sediments as well as specific activities of radionuclides in bottom sediments from the former uranium mining sites, upstream and downstream nearby rivers for the period 2012 - 2015 were determined.

Statistically significant differences between the radionuclides levels in the river upstream and downstream mining sites were found, suggesting that near streams are influenced by the mine water. The Unat concentration in 80% of waters downstream the sites were above background values. The bottom sediments in 86% of streams showed levels above background as well.

Risk factors for the population from mining discharges, associated with the use of water and inhalation of powdered bottom sediment, have also been determined. For the purposes of classification of objects and optimization of the control indicators for screening assessment of the risk associated with the surface waters pollution have been proposed. Based on the assessed indicators, effective dose limit of 0.3 mSv.y^{-1} as a reference level of existing exposure situations due to contaminated waters discharges has been proposed.

Grading approach using conservative estimated risk indicators is a dynamic system that can be used for classification of objects and risk factors for various purposes, including activities aiming public radiation protection in sites where there is likely to exist situation of radiation exposure due to contamination of areas of past mining activities.

Благодарности

Изказвам най-сърдечна благодарност на научния си консултант инж-физ. Виктор Бадулин, с чиято помощ, съвети и подкрепа е свързано не само разработването на настоящата дисертация, но и цялостното ми израстване в областта на радиационната защита.

Изказвам благодарност на ръководството на Националния център по радиобиология и радиационна защита за съдействието и поддръжката през цялото време.

Искрено благодаря на доц. Зденка Стояновска от Университет „Гоце Делчев“, Шип, Македония не само за помощта при статистическата обработка на резултатите, но за подкрепата, която ми оказва.

Дължа благодарности на колегите от „Инспекция за контрол в ядрената енергетика“ за съдействието при изготвянето на настоящия труд.

Накрая, но не на последно място благодаря на всички колеги и приятели, които ме подкрепят, мотивират и ми помагат.
