

АКАДЕМИЯ МЕДИЦИНСКИХ НАУК УКРАИНЫ
НАУЧНЫЙ ЦЕНТР РАДИАЦИОННОЙ МЕДИЦИНЫ

РАЗРЕШАЮ
на депонирование
Зам.директора по научной работе
_____ проф. Пятак О.А.

УДК 539.1.074.83

ГАСНТИ

“МЕТОДЫ ЖИДКОСТНО-СЦИНТИЛЯЦИОННОГО СЧЕТА В
РАДИОЭКОЛОГИИ”, 1996. ВЫП.2.
СБОРНИК

Ответственный за сборник _____ М.Г.Бузынний

Киев-1996

СОДЕРЖАНИЕ

<i>ОСОБЕННОСТИ РАСПРЕДЕЛЕНИЯ ^{137}CS И ^{90}SR В БИОМАССЕ МОЛОДОЙ СОСНЫ ПОСАДКИ 1987-1988 ГГ. В БЛИЖНЕЙ ЗОНЕ ЧАЭС.</i>	<i>3</i>
<i>МЕТОД КОРРЕКЦИИ ГАШЕНИЯ ДЛЯ ЧЕРЕНКОВСКОГО СЧЕТА НА ОСНОВЕ ИНТЕГРАЛЬНОЙ СКОРОСТИ СЧЕТА СПЕКТРА ВНЕШНЕГО СТАНДАРТА..</i>	<i>13</i>
<i>СОВРЕМЕННАЯ ЭНЕРГЕТИЧЕСКАЯ КАЛИБРОВКА ЖИДКОСТНО - СЦИНТИЛЛЯЦИОННОГО БЕТА - СПЕКТРОМЕТРА.</i>	<i>20</i>
<i>ВМІСТ РАДІОВУГЛЕЦЮ АВАРІЙНОГО ВИКИДУ ЧОРНОБИЛЬСЬКОЇ АЕС В РІЧНИХ КІЛЬЦЯХ ДЕРЕВ</i>	<i>27</i>
<i>ИСПОЛЬЗУЕМАЯ ЛИТЕРАТУРА.</i>	<i>32</i>

АКАДЕМИЯ МЕДИЦИНСКИХ НАУК
НАУЧНЫЙ ЦЕНТР РАДИАЦИОННОЙ МЕДИЦИНЫ

Сборник “Методы жидкостно-сцинтилляционного счета в радиоэкологии”, 1997.

Вип.2.

Деп. в ГНТБ Украины

БУЗЫННИЙ М.Г., ЛОСЬ И.П., ШЕПЕЛЕВИЧ К.И.

Научный центр радиационной медицины АМН Украины

КУЧМА Н.Д.

Чернобыльский научно-технический центр международных исследований

ОСОБЕННОСТИ РАСПРЕДЕЛЕНИЯ ^{137}CS И ^{90}SR В БИОМАССЕ
МОЛОДОЙ СОСНЫ ПОСАДКИ 1987-1988 ГГ. В БЛИЖНЕЙ ЗОНЕ
ЧАЭС.

РЕФЕРАТ

В статье приведены результаты исследований, проведенных в 1996 г., касающиеся распределения ^{137}Cs и ^{90}Sr в биомассе молодой сосны посадки 1987-1988 года в ближней зоне ЧАЭС. Установлено существенное отличие в распределении удельной активности ^{137}Cs и ^{90}Sr в биомассе сосны. Максимальные уровни удельной активности составляют 4.2 МБк кг^{-1} ^{137}Cs в хвое текущего года и 1.1 МБк кг^{-1} для ^{90}Sr в хвое максимального возраста. Проведены оценки суммарных поглощенных доз. Уровни наблюдаемых суммарных доз выше 2 Гр. год^{-1} и в максимуме составляют: на вершину $16.8 \text{ Гр. год}^{-1}$ и на хвою за время жизни (4 года) - 44 Гр.

ВВЕДЕНИЕ

Радиационное воздействие на лесные массивы в ближней зоне ЧАЭС (до расстояния около 3 км) обусловило летальные и сублетальные дозы на сосну, в результате чего подавляющая масса деревьев погибла. Погибший лес был спилен и захоронен по методу “под себя”, причем слой песка, укрывающий захороненную древесину сверху, составил 1.0-1.5 метра. По всей территории массового захоронения древесины в 1987-1988 гг. была проведена посадка сосны и других культур. Интерес к объекту исследования вызван существенным отличием в питании молодых насаждений по отношению в сравнении с таковыми на нетронутых участках почвы и в особенности в

лесу, где подавляющая масса радиоактивности находится в подстилке. Насаждения на момент отбора проб имели высоту 1.5-2.0 метра. Образцы отобраны в июне-июле 1996 г.

МЕТОДЫ

Для проведения исследований выбран участок посадки в районе мемориала “Факел” по Западному следу аварийного выброса на котором мощность дозы гамма-излучения на высоте 1 м на момент отбора проб (лето 1996) составляла 2-5 мР час⁻¹. Для уточнения глубины залегания захоронений леса, которая в этом месте составила 1.5 м, были выкопаны 3 траншеи. Интегральные измерения мощности дозы гамма-излучения проведены до глубины 1 м с интервалом в 20 см, на поверхности почвы и на высоте в 1 м. На этом участке выбраны три дерева, из которых были отобраны образцы биомассы. Для измерения мощности дозы гамма-излучения применялись портативные дозиметры ДРГ-01Т и VICTOREEN, а также ТЛ - дозиметры фирмы HARSHAW.

Отбор проб

Для анализа брали: хвоя по возрастам; участки ствола: нижний, средний и верхний; корни: крупные и мелкие. Отбор проб был ориентирован на измерение высоких активностей ¹³⁷Cs и ⁹⁰Sr в образцах малой массы - менее 1 грамма в расчете на разработанные нами методы, описанные в [1, 2], что позволило анализировать распределение радионуклидов по годичным кольцам.

Стронций -90

Пробы древесины тщательно разделялись по годичным слоям, что обеспечивало взаимное влияние древесины соседних колец менее 1%. Однотипно приготовленные “тонкие” образцы помещались в гелеобразную сцинтилляционную смесь (10мл воды +10мл Luma Gell) и измерялись жидкостно -сцинтилляционным спектрометром *Quantulus 1220TM* фирмы *Wallac Oy*. Для расчета активности проб анализировался высокоэнергетический участок спектра, соответствующий ⁹⁰Y. Для калибровки использованы пробы, приготовленные аналогично счетным образцам на основе стандартных растворов ⁹⁰Sr+⁹⁰Y и ¹³⁷Cs. Погрешность определения ⁹⁰Sr и ¹³⁷Cs не превышала 5%.

Цезий-137

Измерение удельной активности ¹³⁷Cs проводилось при помощи гамма - спектрометра. Использован гамма спектрометр на основе оборудования фирм *ORTEC EG&G* и

BICRON Inc. При этом в зависимости от удельной активности древесины измерения проводились по тем же образцам или по образцам, имеющим большую массу.

РЕЗУЛЬТАТЫ

Результаты исследований приведены на рисунках 1-7. На рисунке 1 дано распределение годовой поглощенной дозы внешнего облучения (Гр) для различных уровней заглубления относительно уровня поверхности почвы. Видно, что максимуму соответствует глубина 0.6-0.8 м.

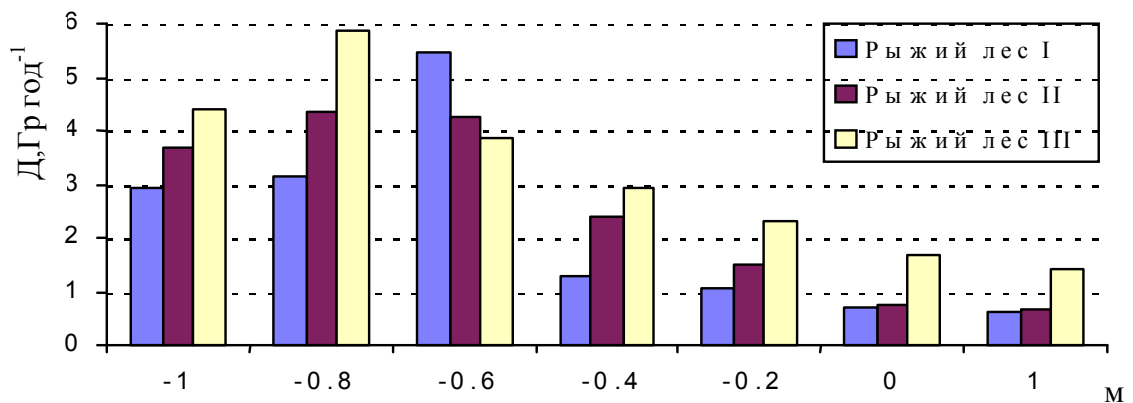


Рисунок 1. Распределение годовой поглощенной дозы внешнего облучения на различных уровнях относительно уровня поверхности почвы.

На рисунке 2 приведено распределение удельной активности ^{90}Sr по основным компонентам древесины: ствол, хвоя, корни (большие и малые). Содержание ^{90}Sr в стволе и больших корнях практически неотличимы за исключением коры и луба, а в малых корнях активность ^{90}Sr в 2 раза ниже, чем в больших корнях. Удельная активность в хвое текущего (первого) года практически равна активности текущего годичного кольца ствола. Активность хвои другого возраста пропорциональна возрасту, т.е. наблюдается накопление ^{90}Sr с возрастом.

Что же касается ранней и поздней древесины (рисунок 3.), то удельная активность поздней древесины на 20-30% выше, за исключением древесины, возраст которой предшествует вегетации 1995 г. Результаты исследований удельной активности ^{137}Cs в ранней и поздней древесине приведены на рисунке 4. Уровни удельной активности ^{137}Cs для ранней и поздней древесины неотличимы.

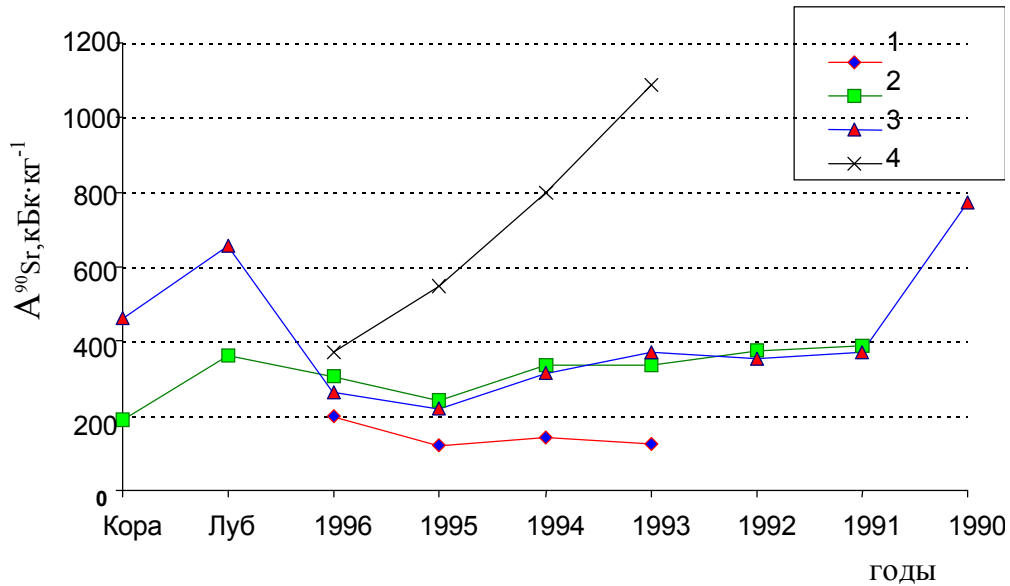


Рисунок 2. Распределение удельной активности ^{90}Sr по годичным кольцам и сегментам молодой сосны. 1-корень тонкий, 2-корень толстый, 3-нижний участок ствола, 4-хвоя

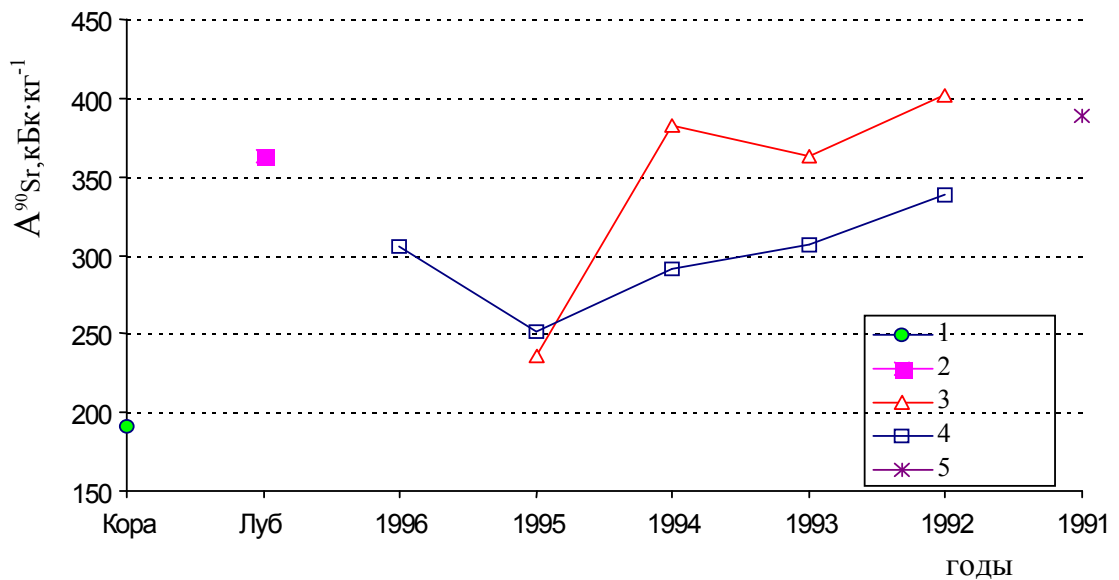


Рисунок 3. Распределение удельной активности ^{90}Sr между ранней и поздней древесиной по годичным кольцам ствола. 1- кора, 2-луб, 3-поздняя древесина, ранняя древесина, сердцевина

Распределение ^{90}Sr и ^{137}Cs по годичным кольцам ствола сосны представлено на рисунке 5. Общие закономерности повторяются для ^{90}Sr и ^{137}Cs в глубине ствола, а отличия существенны для луба и коры. Как видно из рисунка 6 отличия в распределении ^{90}Sr и ^{137}Cs по высоте ствола незначительны за исключением коры и луба.

Совместное представление распределений ^{90}Sr и ^{137}Cs по хвое различного возраста приведено на рисунке 7. Видно, что ^{90}Sr накапливается с возрастом, а максимум удельной активности ^{137}Cs обнаруживается в молодой хвое текущего года.

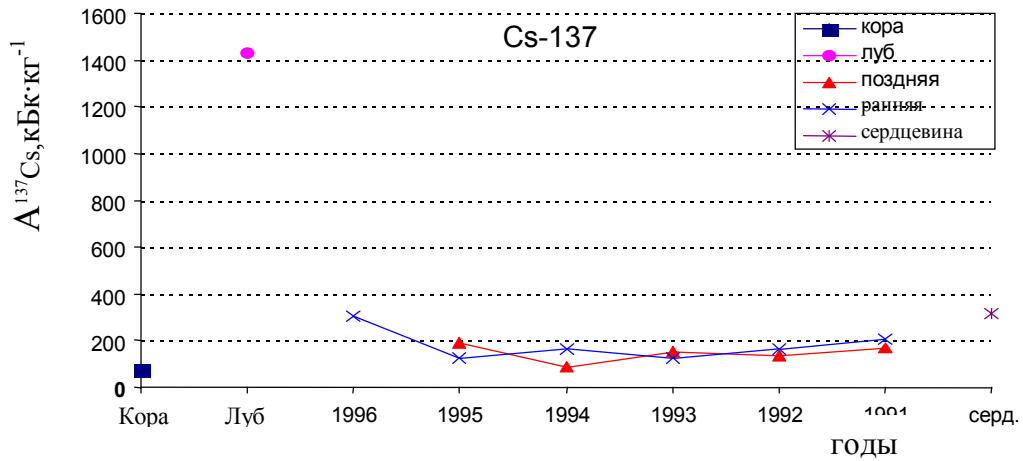


Рисунок 4. Распределение удельной активности ^{137}Cs по годичным кольцам и сегментам сосны. Корень тонкий, корень толстый, нижний участок ствола, хвоя.

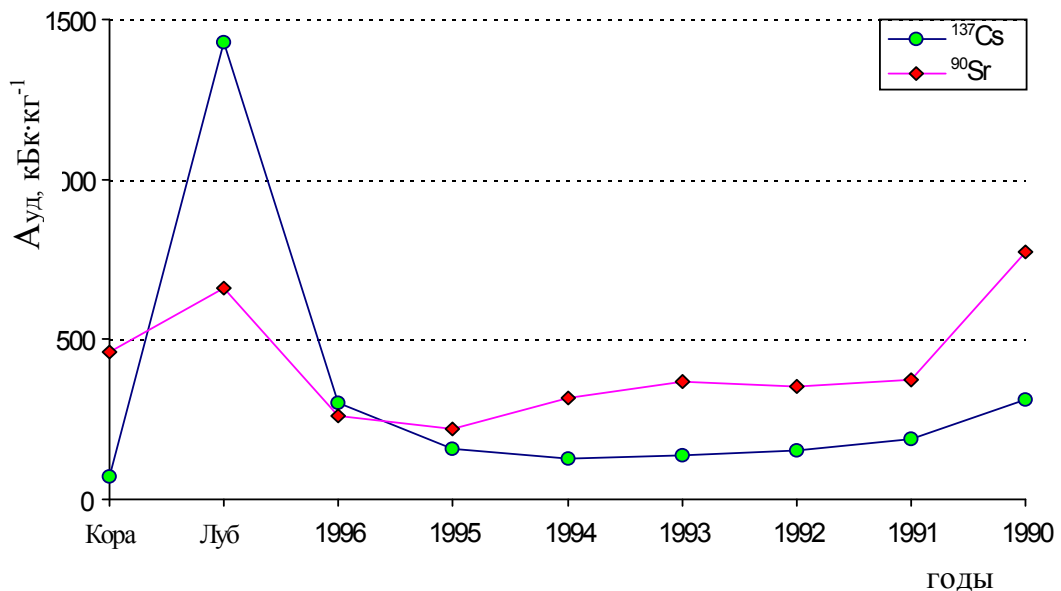


Рисунок 5. Распределение удельной активности ^{137}Cs и ^{90}Sr по годичным кольцам ствола сосны.

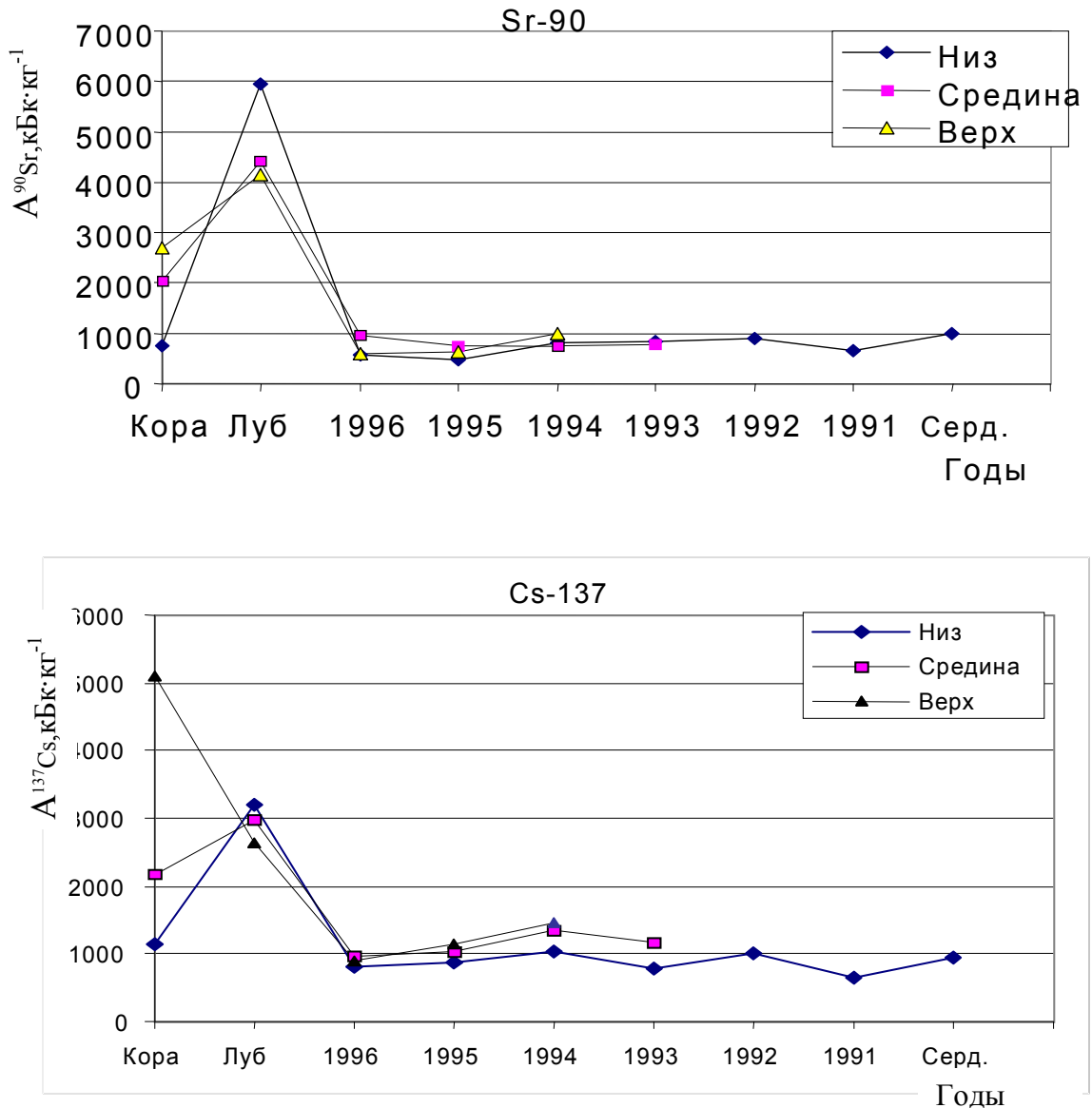


Рисунок 6. Распределение ^{137}Cs и ^{90}Sr (кБк·кг⁻¹) по годичным кольцам молодой сосны

ДОЗЫ ОБЛУЧЕНИЯ

Для получения обобщенной информации о величине доз облучения различных органов молодой сосны проведены расчеты доз внутреннего облучения от ^{90}Sr и ^{137}Cs и определены дозы внешнего гамма - облучения по методу ТЛ - дозиметрии. Усредненные результаты для накапливаемой за год дозы (Гр год⁻¹) сведены в таблицу 1. Как видно диапазон суммарных поглощенных доз составляет 3.5 раза при максимальной дозе (верхний участок ствола) 16.8 Гр и минимальный (тонкие корни) 4.8 Гр. Таким образом верх ствола, который фактически в данном возрасте дерева является верхней быстрорастущей веткой, боковые ветки и хвоя получают

максимальные дозы. Разнообразие в соотношении компонент дозы облучения представлено на рисунке 8.

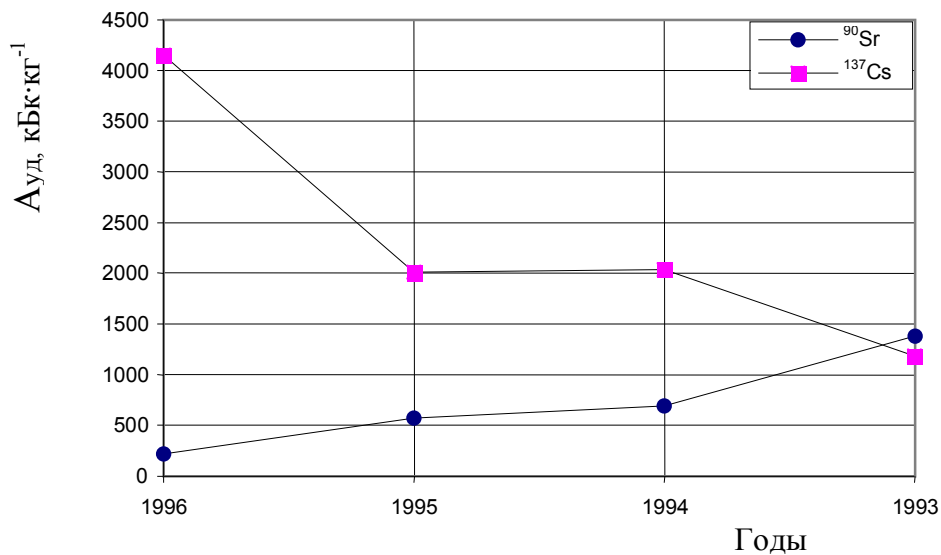


Рисунок 7. Распределение удельной активности ^{90}Sr и ^{137}Cs по хвое различного возраста, усреднение по трем пробам для каждого типа

Таблица 1

Годовые дозы облучения молодой сосны, Гр год⁻¹

Орган, ярус	^{90}Sr	^{137}Cs	ТЛД	Сумма
Верх ствола	10.9	4.9	1.0	16.8
Средина	7.8	2.6	1.0	11.3
Низ ствола	3.4	1.7	1.1	6.3
Хвоя	6.7	4.4	1.0	12.0
Ветка	6.8	6.1	1.0	13.8
Корень толстый	5.4	3.6	1.7	10.7
Корень средний	3.3	1.3	1.7	6.3
Корень тонкий	1.0	2.1	1.7	4.8

Контраст в распределении доз внутреннего облучения по годичным слоям за счет ^{90}Sr и ^{137}Cs приведен в таблице 2. Покомпонентное накопление доз облучения хвои на вершине дерева за время жизни представлено на рисунке 9. Видно, что за первый год происходит наиболее существенное накопление дозы – до 20 Гр суммарно и более 17 Гр за счет внутреннего облучения от ^{137}Cs . В тоже время за 4 года суммарная доза достигает 44 Гр.

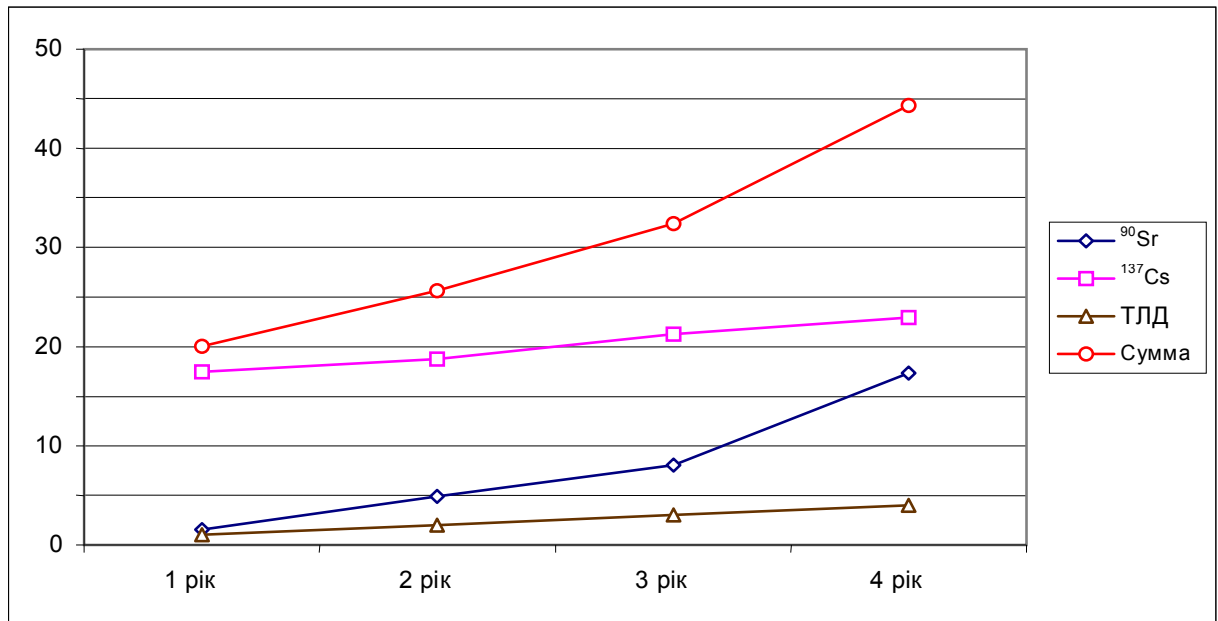


Рисунок 9. Накопление поглощенной дозы в хвое с возрастом, Гр (вершина дерева)

ВЫВОДЫ

Как видно по представленным результатам распределение ^{90}Sr и ^{137}Cs в биомассе молодой сосны весьма контрастно. Наибольший контраст представляет луб по отношению к древесине предыдущего перед вегетацией года, что характерно для распределения и ^{90}Sr и ^{137}Cs . Сопоставление удельных активностей ^{90}Sr и ^{137}Cs для годовичных колец 1990-1996 гг. указывает на то, что ^{90}Sr больше в 2-5 раз в сравнении с ^{137}Cs . Отличия между ранней и поздней древесиной по ^{90}Sr существенны за исключением года предшествующего текущей вегетации, тогда как соответствующие значения для ^{137}Cs практически неотличимы между собой. Удельная активность больших корней по ^{90}Sr неотличима от их активности по ^{137}Cs . Наибольшие отличия наблюдаются по хвое: по ^{90}Sr - идет практически пропорциональное накопление с возрастом, а по ^{137}Cs за тот же период наблюдается спад от максимального значения по мере старения до значения в три раза меньшего.

Контрастность в распределении активности ^{90}Sr и ^{137}Cs в органах исследуемых молодых сосен приводит к контрастности поглощенных доз облучения, что и видно из расчетов. Наибольшие поглощенные дозы получают органы, в которых происходят быстрые обменные процессы - растущая верхушка дерева, ветки, хвоя. Дозы внутреннего облучения выше доз внешнего облучения, а дозы от ^{90}Sr выше таковых от ^{137}Cs . Вследствие накопления стронция в растущем органе, более старые его части получают большие дозы, в то время как от цезия основная часть дозы реализуется за

первый год. Обращает на себя внимание то, что суммарные накопленные дозы облучения, получаемых органами сосны по своей величине весьма значительные (например, кумулятивная накопленная доза на хвою за 4 года составляет около 45 Гр).. Этому соответствуют наблюдаемые на этих участках посадки радиационные эффекты.

АКАДЕМИЯ МЕДИЦИНСКИХ НАУК
НАУЧНЫЙ ЦЕНТР РАДИАЦИОННОЙ МЕДИЦИНЫ

Сборник “Методы жидкостно-сцинтилляционного счета в радиозкологии”, 1996.

Вип.2.

Деп. в ГНТБ Украины

БУЗЫННЫЙ М.Г.

Украинский центр радиационной медицины АМН Украины, 254050, Киев-50, Мельникова 53

МЕТОД КОРРЕКЦИИ ГАШЕНИЯ ДЛЯ ЧЕРЕНКОВСКОГО СЧЕТА НА ОСНОВЕ
ИНТЕГРАЛЬНОЙ СКОРОСТИ СЧЕТА СПЕКТРА ВНЕШНЕГО СТАНДАРТА..

РЕФЕРАТ

Черенковский счет является наиболее эффективным методом регистрации для целого ряда высокоэнергетичных β -излучателей, как, например, $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$. Слабым местом при реализации Черенковского счета остается необходимость стандартизации на этапе химической подготовки проб. Разработан метод стандартизации Черенковского счета в случае цветового гашения. Новый метод стандартизации использует корреляцию между скоростью счета пробы и скоростью счета спектра внешнего стандарта, что позволяет покрыть широкий интервал цветового гашения проб. Применение метода позволяет повысить точность калибровки при измерении высокоэнергетичных β -излучателей методом Черенковского счета и расширить пределы применения метода Черенковского счета - реализации соответствующего экспресс-метода для определения высокоэнергетичных β -излучателей. Для целого ряда случаев метод позволяет избегать применения дорогих и продолжительных процедур химической подготовки образцов.

ВВЕДЕНИЕ

Метод Черенковского счета для определения удельной активности высокоэнергетичных β -излучателей в том числе и $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$ в различных пробах окружающей среды с использованием техники жидкостно-сцинтилляционного счета является предпочтительным т.к. он достаточно прост и не требует расхода сцинтиллятора. Известно, что спектр оптических сигналов, регистрируемых

фотоэлектронным усилителем в случае Черенковского счета имеет низкую интенсивность, что влечет за собой сильное влияние цветowych гасителей, которые всегда присутствуют в пробе. Поэтому для обеспечения стандартизации при химической подготовке к Черенковскому счету применяют многократную очистку образцов от возможных красителей. Усложнение анализов за счет этих процедур не всегда обеспечивает идентичность воспроизведения условий регистрации β -излучения. В тоже время на Черенковский счет практически не оказывает влияния химическое гашение, т.е. химический состав образца, а его действие сводится только к едва ощутимому сдвигу нижней границы регистрируемого участка спектра, а поэтому этот метод предполагает возможность работы с концентрированными растворами кислот и щелочей.

Параметр гашения спектра (spectrum quench parameter, SQP(E)), определяемый по спектру внешнего стандарта и используемый для стандартизации (коррекции гашения) при жидкостно-сцинтилляционном счете в жидкостно-сцинтилляционном спектрометре (ЖСС) Quantulus 1220™, выпускаемом фирмой Wallac Oy, не отражает гашения в силу чего он неприменим для Черенковского счета.

Требования, предъявляемые к рутинным анализам ограничивают время, необходимое для подготовки одного образца, и требуют автоматизации всех процедур подготовки проб. Потребность в стандартизации ограничивает возможность Черенковского счета, прежде всего, в случае экспресс методов, когда диапазон колебания эффективности может составлять до 2-3 раз. Во избежание применения дорогих и продолжительных процедур химической стандартизации образцов для Черенковского счета [3, 4, 5, 6, 7] и для увеличения чувствительности в сравнении с β -спектрометрическим методом [6] был разработан метод, описанный ниже.

МЕТОДЫ

Разработанный метод предназначен для стандартизации Черенковского счета в случае цветового гашения. В основе метода лежит использование корреляционной связи скорости счета образца со скоростью счета внешнего стандарта. Калибровочные кривые, определяемые как для различных радионуклидов так и для фоновых проб, являются функциями от количества гасителя и материала сцинтилляционных виал. Для того чтобы определить калибровочные коэффициенты, которые определяют соответствующие “кривые гашения”, были приготовлены и отмерены наборы

образцов для нескольких радионуклидов ($^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$, ^{137}Cs , и ^{40}K) и фоновых образцов при различном гашении. При этом в качестве гасителя использован раствор треххлористого железа. Вся процедура выполнена как для обычных пластиковых так и низкофоновых тефлоновых виал. Соответствующие наборы калибровочных кривых для радионуклидов показаны на рисунке 1 и для фона на рисунке 2.

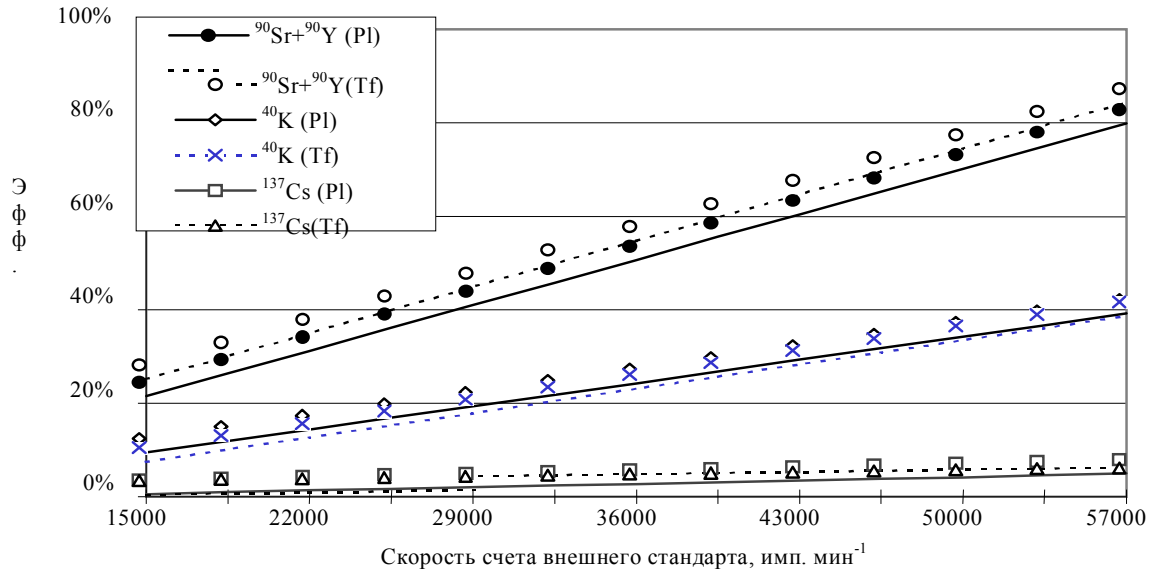


Рисунок 1. Зависимости эффективности регистрации $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$, ^{40}K и ^{137}Cs методом Черенковского счета от скорости счета внешнего стандарта (имп. мин⁻¹) для пластиковых и тефлоновых виал.

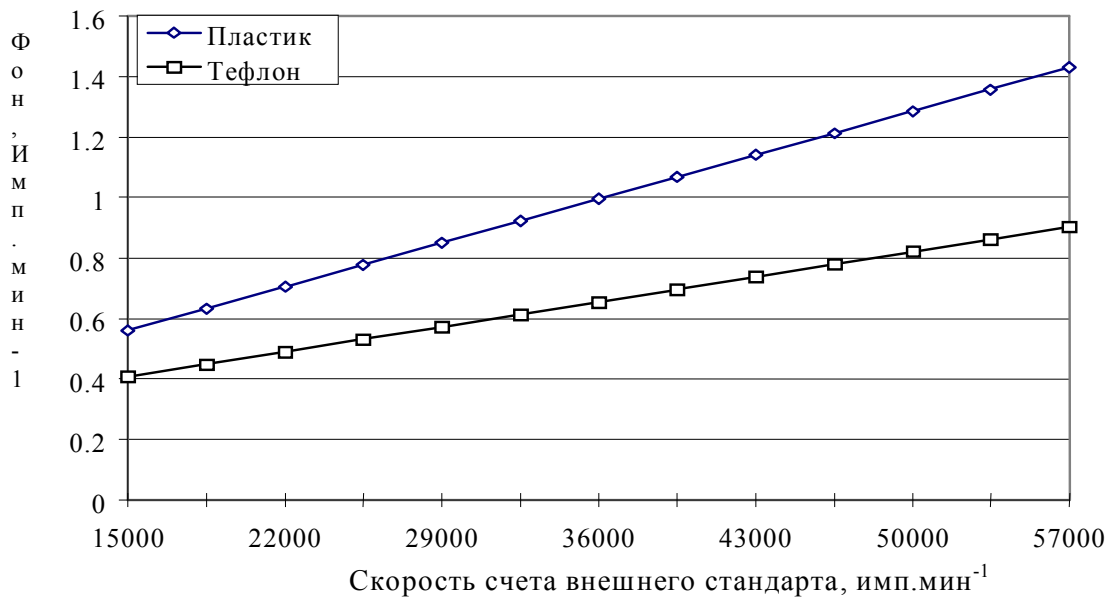


Рисунок 2. Зависимость скорости счета регистрации фона от скорости счета внешнего стандарта для пластиковых и тефлоновых виал 20 мл.

Применение метода предполагает выполнение следующих шагов:

- *измерение спектра образца и спектра внешнего стандарта (определение обеих скоростей счета);*
- *последующий расчет эффективности регистрации и скорости счета фона для образца;*
- *традиционный расчет удельной активности пробы по предварительно найденным значениям эффективности и скорости счета фона и измеренной скорости счета пробы.*

Отснятые “кривые гашения” хорошо описываются линейной зависимостью ($Y = A * X + B$, где, Y - искомая зависимость: эффективность и фон, X - скорость счета внешнего стандарта для измеряемой пробы; A и B найденные калибровочные коэффициенты, см. Таблица 1.). Коэффициент корреляции составил для пластиковых виал 0.994, 0.98, 0.992, и 0.984 для калибровки $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$, ^{137}Cs , ^{40}K , и фона соответственно. Аналогичные значения получены и для тефлоновой виалы. Все значения калибровочных коэффициентов сведены в таблицу 1. По полученным данным видно, что эффективность регистрации $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$ в 2.2 и 26 раз выше чем для ^{40}K и ^{137}Cs соответственно (см. Рисунок 1 и Рисунок 2).

Таблица 1.

Калибровочные коэффициенты для применения Черенковского счета для измерений в пластиковых и тефлоновых виалах емкостью 20мл

Материал виалы	Пластик		Тефлон	
	А	В	А	В
Проба $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$	$1.39 \cdot 10^{-5}$	0.0065	$1.41 \cdot 10^{-5}$	0.040
^{137}Cs	$1.02 \cdot 10^{-6}$	-0.009	$6.42 \cdot 10^{-7}$	-0.0047
^{40}K	$7.09 \cdot 10^{-6}$	-0.012	$7.41 \cdot 10^{-6}$	-0.036
Фон	$2.07 \cdot 10^{-5}$	0.25	$1.18 \cdot 10^{-5}$	0.23

Для сравнения зависимости обобщенного параметра качества измерений (Figure of Merit - $\text{FOM} = E^2 \text{BG}^{-1}$) для пластиковой (PL) и тефлоновой (TF) виалы, а также их соотношение (TF/PL) приведено на Рисунке 3. Видно, что тефлоновая виала дает существенно лучшее значение (TF/PL = $6.0 \div 10.0$). Это соответствует тому, что использование тефлоновых виал более оптимально. Коэффициенты приведенные в таблице 1 используются при дальнейшем определении эффективности регистрации и

соответствующего значения фона и последующем расчете удельной активности образцов.

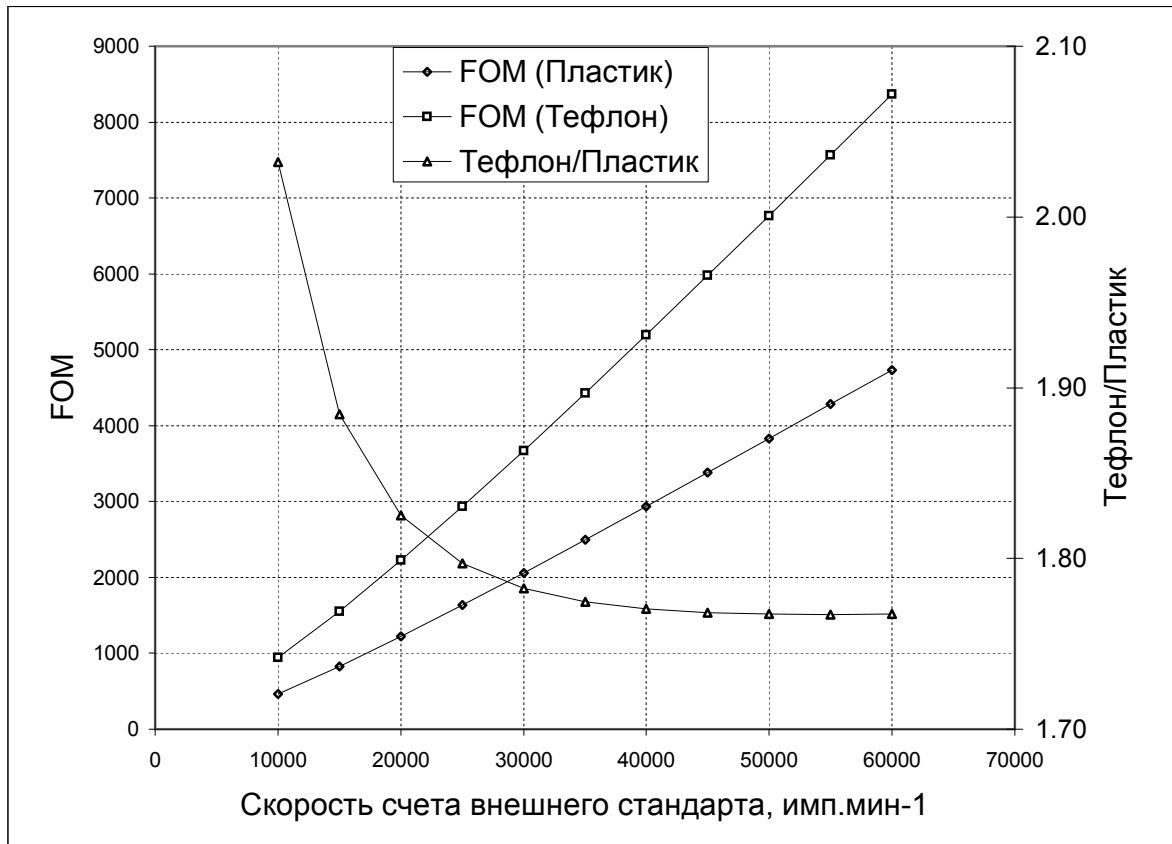


Рисунок 3. Зависимости обобщенного показателя качества измерения от скорости счета внешнего стандарта для пластиковых и тефлоновых виал, а также их соотношение. Зависимости FOM от скорости счета внешнего стандарта для пластиковых (PL/1000) и тефлоновых (TF/1000) виал отображены уменьшенными в 1000 раз для совместного отображения с их соотношением (TF/PL).

ПРАКТИЧЕСКИЕ АСПЕКТЫ

Экспресс метод на основе Черенковского счета

Для демонстрации применимости метода стандартизации Черенковского счета я приведу описание процедуры применения метода для определения удельной активности ^{90}Sr в воде р. Днепр методом Черенковского счета после экспресс метода подготовки проб (выпаривание досуха с последующим растворения сухого остатка в 5 М соляной кислоте). Кроме того для более точного расчета использованы усредненные за 1992 год значения для удельной активности ^{137}Cs (0.08 ± 0.03 Бк л $^{-1}$) и ^{40}K (0.15 ± 0.06 Бк л $^{-1}$) в р. Днепр.

Принимая во внимание незначительность колебаний ^{40}K и низкую эффективность регистрации ^{137}Cs методом Черенковского счета, процедура определения ^{90}Sr в воде р. Днепр включала:

- измерения спектров пробы и внешнего стандарта;
- расчет эффективностей (для $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$, ^{40}K и ^{137}Cs) и скорости счета фона пробы;
- вычитание фона и парциального вклада ^{40}K и ^{137}Cs в суммарный β спектр;
- вычисление удельной активности ^{90}Sr .

Применимость процедуры справедлива в случае отсутствия других радионуклидов сопоставимой активности, что справедливо для проб воды р. Днепр.

На рисунке 4 приведены данные о загрязнении воды р. Днепр в зоне влияния Чернобыльской АЭС полученные описанным выше методом. Активность в пруде-охладителе ЧАЭС составляет около 3 Бк на литр. Она постепенно снижается дальше по течению р. Припять и составляет 0.8 и 0.4 в Киевском водохранилище. Затем активность воды р. Днепр колеблется на уровне 0.25-0.35 Бк на литр.

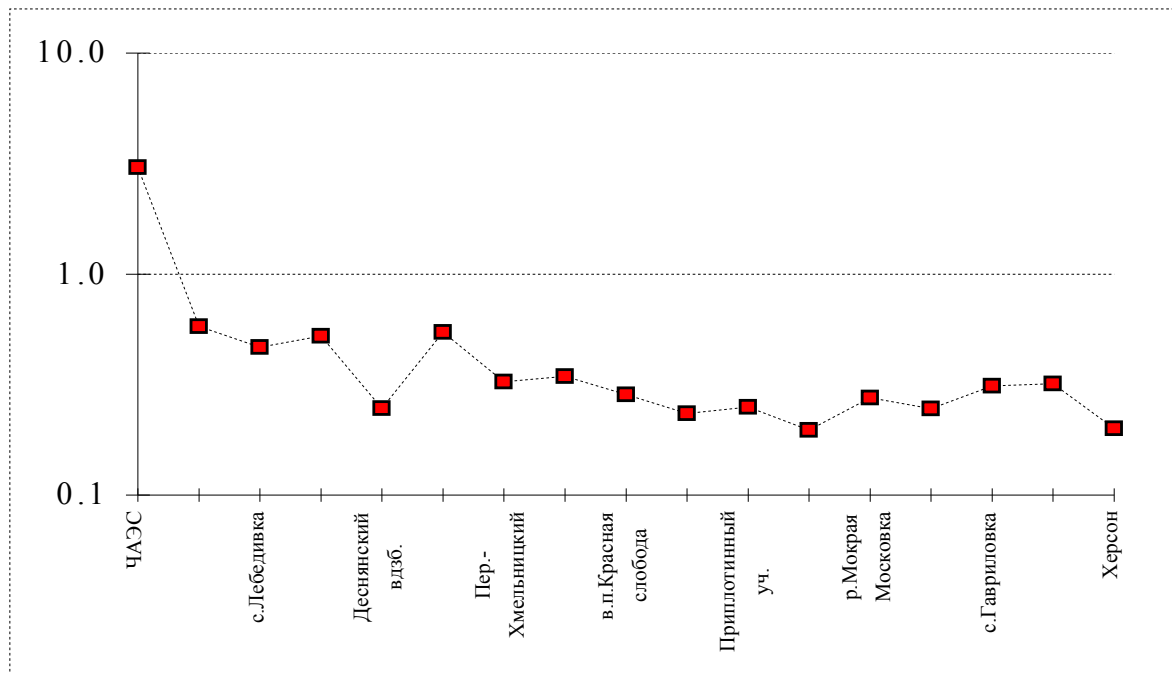


Рисунок 4. Удельная активность проб воды отобранных вдоль по Днепру в течении июля-августа 1993г.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Описанный метод позволяет проводить стандартизацию Черенковского счета с коррекцией фона и для различных радионуклидов, что дает возможность проводить

корректные измерения высокоэнергетичных β -излучателей в широком интервале цветового гашения. Этот метод, как модификация метода Черенковского счета, является неразрушающим т.е. сохраняет пробу для любых последующих анализов и не вносит неопределенности в результат, связанной с подготовкой проб. На базе этого метода для определения ^{90}Sr возможно применение более простых и дешевых методов подготовки проб без потери точности и экспрессности анализа. Пример применения метода для воды р. Днепр указывает на возможность его применения для определения удельной активности ^{90}Sr при его уровне выше одного Бк л⁻¹ Прямо без какой либо подготовки проб.

АКАДЕМИЯ МЕДИЦИНСКИХ НАУК
НАУЧНЫЙ ЦЕНТР РАДИАЦИОННОЙ МЕДИЦИНЫ

Сборник “Методы жидкостно-сцинтилляционного счета в радиозоологии”, 1996.

Вип.2.

Деп. в ГНТБ Украины

БУЗЫННИЙ М.Г.

Научный центр радиационной медицины МН Украины

СОВРЕМЕННАЯ ЭНЕРГЕТИЧЕСКАЯ КАЛИБРОВКА ЖИДКОСТНО -
СЦИНТИЛЛЯЦИОННОГО БЕТА - СПЕКТРОМЕТРА.

РЕФЕРАТ

Разработан метод и соответствующие математические процедуры преобразования жидкостно-сцинтилляционного спектра β -излучения на основе энергетической калибровки β -спектрометра, что позволяет избегать проведения перекалибровки, связанной с гашением проб. Предлагается трех и пятикратное измерение композиционной пробы в составе смеси источников конверсионных электронов (КЭ) (^{109}Cd , ^{137}Cs , ^{207}Bi) для соответствующих контрастных значений уровня гашения. Метод разработан и тестирован для жидкостно-сцинтилляционного спектрометра (ЖСС) Quantulus 1220™ и может быть применен для других ЖСС, использующих спектр внешнего стандарта для мониторинга гашения проб. Установлено подобие калибровочных коэффициентов для ЖСС *Quantulus 1220™* (сравнение калибровок 3-х отдельно взятых ЖСС данного типа позволило установить, что максимальное значение взаимного несоответствия калибровок менее 3% для энергетического окна свыше 30 КэВ). Это позволяет выполнять преобразование спектров по калибровочным коэффициентам, полученным для другого экземпляра прибора при использовании однотипных виал и сцинтиллятора. Принцип трансформации спектра логарифмический (приборный) \Rightarrow линейный (расчетный) позволяет упростить коррекцию формы спектра вызванную гашением образца. По аналогии использование принципа трансформации спектра линейный (приборный) \Rightarrow логарифмический (расчетный) упрощает коррекцию гашения в ЖСС, имеющих линейные спектры.

ВВЕДЕНИЕ

Для анализа сложных β -спектров требуется проведение энергетической калибровки спектрометра. Обычно энергетическая калибровка жидкостно-сцинтилляционных спектрометров затруднена влиянием гашения пробы. Решение этой важной для любого типа ЖСС задачи рассматриваем на примере использования сверхнизкофонного ЖСС *Quantulus 1220^{mm}*. Сама же эта задача может быть решена аналогичным образом для любого из ЖСС использующих для контроля гашения проб метод внешнего стандарта. Для энергетической калибровки спектра использован параметр гашения $SQP(E)$, определяемый в *Quantulus 1220^{mm}* по спектру внешнего стандарта. Для реализации метода используются источники конверсионных электронов (КЭ). Суть метода сводится к нахождению закономерности изменения положения каждого из нескольких пиков КЭ, имеющих существенно различающиеся энергии от уровня гашения пробы, что позволяет установить аналитическое выражение для калибровки в данном диапазоне энергий.

$$Chn(E_n) = F[E_n, SQP(E)] \quad (1)$$

где,

Chn - номер канала;

E_n - энергия (МэВ), для диапазона от E_1 до E_2 , соответствующих минимальной и максимальной энергиям пиков конверсионных электронов, используемых радионуклидов;
 $SQP(E)$ -параметр гашения.

Это даст возможность по уровню гашения конкретной пробы найти номера каналов ее спектра, которые соответствуют данным значениям энергии β -излучения, что позволит выполнить экстраполяцию взаимного соответствия энергия-канал для всех промежуточных каналов спектра.

Поскольку используемый в ЖСС *Quantulus 1220^{mm}* аналого-цифровой преобразователь (АЦП) логарифмирующий, для экстраполяции функции энергетической калибровки используется логарифмическая зависимость:

$$Ni \Leftrightarrow \log(E_i) \quad (2)$$

Коэффициенты этого преобразования определяются по семейству кривых, задаваемых выражением (1) и определяемых по экспериментальным кривым.

После установления взаимного соответствия энергия-канал появляется возможность выполнения процедуры преобразования приборного спектра в энергетический, т.е. определение содержимого каждого канала энергетического спектра:

$$Ne_{(k,En)} = \sum_{i=N_1^{SQP(E)}}^{N_2^{SQP(E)}} Np_{(i)} \quad (3)$$

где,

N_e -энергетический спектр;

N_p -приборный спектр;

k = от 1 до 128-номера каналов энергетического спектра для каждого из которых соответствуют пары каналов приборного спектра N_1 и N_2 ; 128-количество каналов энергетического спектра.

МЕТОДЫ

Исследования проведены на ЖСС *Quantulus 1220^{mm}* № 20040 при использовании следующих источников конверсионных электронов: ^{109}Cd , ^{137}Cs , ^{207}Bi , по линиям КЭ соответственно 85, 624 и 975 кэВ, см. Рисунок 1. Для исследований использованы пробы на основе как отдельно взятых вышеназванных радионуклидов, так и их смеси. Положения центроида каждого пика определялось путем описания его вершины (на уровне выше 0,85 от максимального) параболой. Зависимости положений вершин пиков для указанных энергий КЭ от параметра гашения (SQP) приведены на Рисунке 2.

РЕЗУЛЬТАТЫ

Установлено, что зависимость положения каждого пика КЭ от параметра гашения SQP(E) линейна. Зависимости, полученные по отдельным источникам, совпадают с зависимостями, полученными по калибровочной пробе смеси, что позволяет упростить процедуру калибровки и сводит ее к следующему:

- измерение пробы состоящей из смеси радионуклидов-источников конверсионных электронов: ^{109}Cd , ^{137}Cs , ^{207}Bi для трех-пяти уровней гашения в широком интервале значений параметра SQP(E);
- определение положений пиков КЭ и установление зависимости положения каждого пика от уровня гашения;

- преобразование спектра в энергетический.

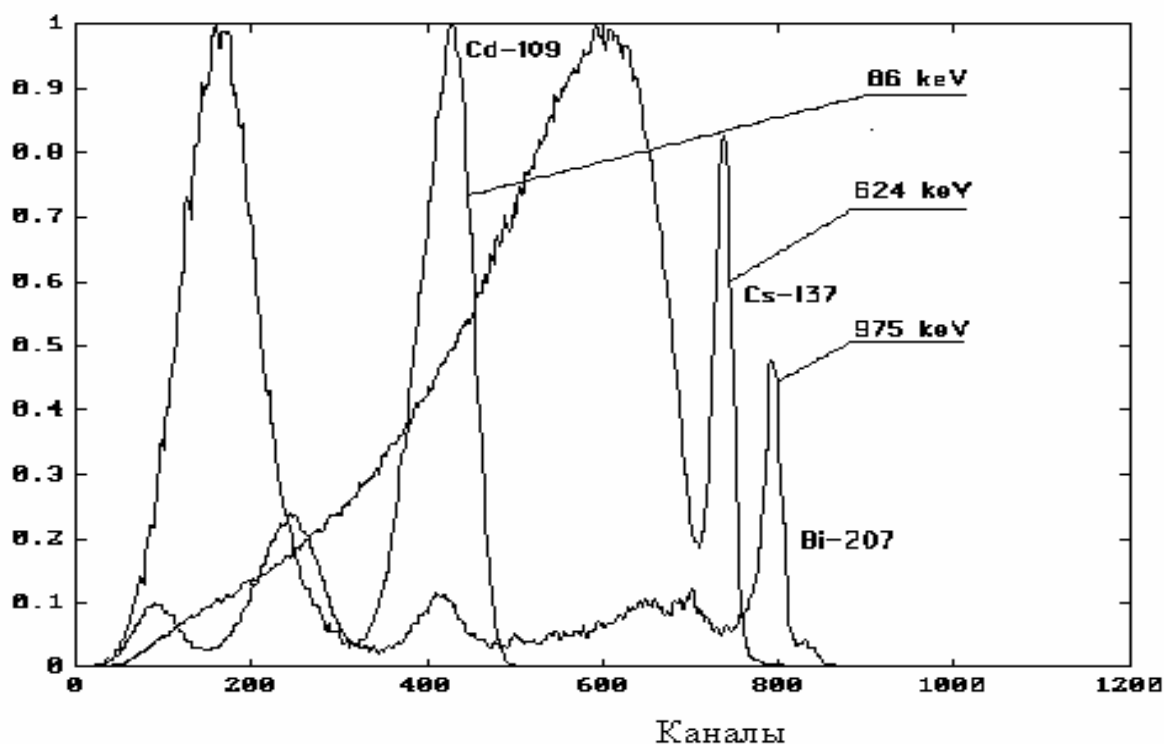


Рисунок 1. Нормированные спектры источников конверсионных электронов, используемых для калибровки ЖСС β -спектрометра.

Таким образом проведены калибровочные измерения для других приборов № 20063, № 20068. Полученные калибровочные кривые представлены на рисунке 3. Зависимости положения пиков КЭ полученные для различных приборов (см. Рисунок 3) достаточно близки для того, чтобы их использовать для отображения и преобразования спектров других приборов. Индивидуальная калибровка дает большую точность преобразования и отображения спектра. Преобразование спектров в энергетические может быть использовано для решения анализа сложных β -спектров методами декомпозиции. Это позволяет существенно сократить количество используемых калибровочных спектров, ускорить саму процедуру анализа спектра. Применение преобразования спектра для задач β -спектрометрии ^{90}Sr , (см. Рисунок 4) позволяет сократить время обработки одного спектра не менее чем в 4 раза без снижения точности разложения.

Одно из основных направлений развития и применения методов измерения радионуклидов с применением жидких сцинтилляторов является измерение проб, содержащих несколько радионуклидов (обычно 2-4) без предварительного химического

разделения. Типичным примером является задача измерения ^{137}Cs , ^{40}K и ^{90}Sr в пробах молока или воды. Главная проблема при проведении подобных измерений - изменение формы спектров и эффективности регистрации в зависимости от уровня гашения (химического или цветового) в сцинтиляционной смеси пробы и сцинтиллятора [8].

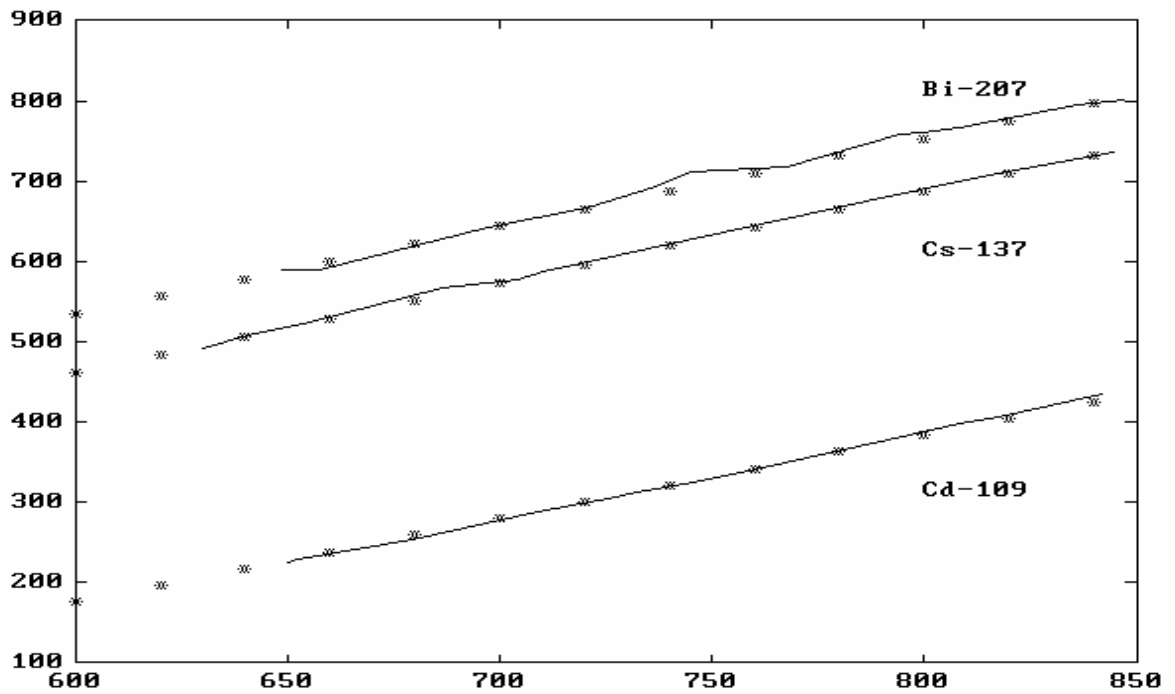


Рисунок 2. Зависимости положения пиков конверсионных электронов: от уровня гашения соответствующих проб для источников конверсионных электронов: ^{109}Cd , ^{137}Cs , ^{207}Bi .

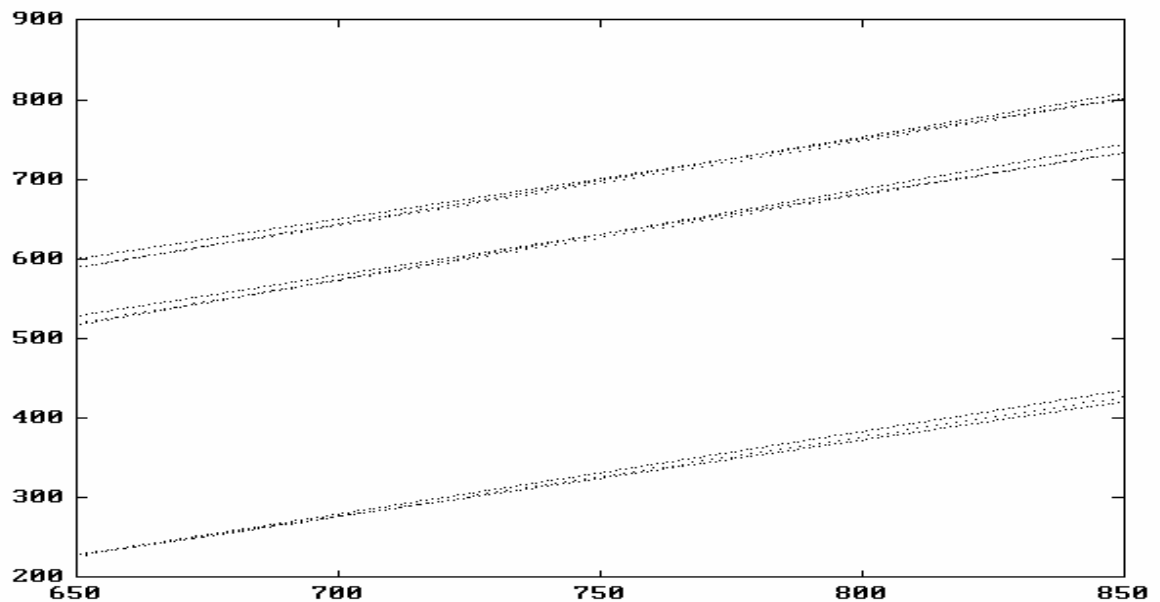


Рисунок 3. Сопоставление результатов проведения энергетической калибровки по спектрам источников конверсионных электронов для различных приборов: ^{109}Cd , ^{137}Cs , ^{207}Bi .

Разработанный нами метод энергетической калибровки и математические процедуры преобразования и обработки спектров позволяют избежать проведения перекалибровок при изменении уровня гашения пробы или изменении радионуклидного состава пробы. Способ реализован на основе низкофонового жидкостно-сцинтилляционного спектрометра *Quantulus 1220^{mm}* и может быть использован для любого другого типа спектрометра, в котором используется метод внешнего стандарта для контроля уровня гашения проб.

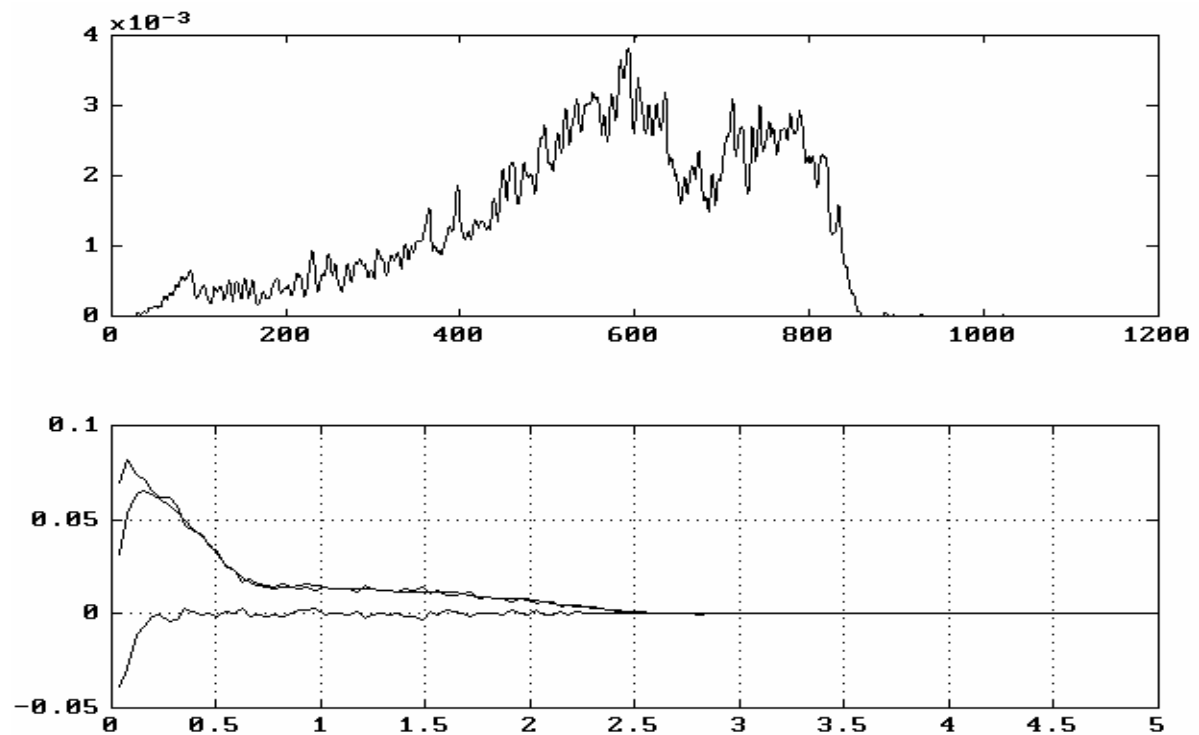


Рисунок 4. Спектры ^{90}Sr в логарифмическом (приборный спектр) и линейном масштабе (преобразованный спектр).

Для реализации метода используются источники конверсионных электронов ^{109}Cd , ^{137}Cs , ^{207}Bi по энергетическим линиям конверсионных электронов 85, 624 и 975 кэВ, соответственно. Были опробованы калибровки как по отдельно измеренным источникам, так и по их смеси. Зависимости положений вершин пиков для указанных энергий конверсионных электронов от параметра гашения оказались линейными. Зависимости, полученные по отдельным источникам, совпадают с зависимостями, полученными по калибровочной смеси. Это позволяет упростить процедуру

калибровки и сводит ее к измерению пробы калибровочной смеси радионуклидов (^{109}Cd , ^{137}Cs , ^{207}Bi) для трех-пяти уровней гашения и последующей математической обработке полученных спектров для получения калибровочных коэффициентов для данного типа спектрометра. Результаты калибровок для трех спектрометров Quantulus 1220TM позволяет утверждать, что калибровочные коэффициенты, полученные на одном приборе могут быть использованы на другом с относительной статистической погрешностью не более чем 3% в полном энергетическом диапазоне регистрируемого β -спектра, начиная с энергии 30 кэВ.

АКАДЕМИЯ МЕДИЦИНСКИХ НАУК
НАУЧНЫЙ ЦЕНТР РАДИАЦИОННОЙ МЕДИЦИНЫ

Сборник “Методы жидкостно-сцинтилляционного счета в радиозологии”, 1996.

Вип.2.

Деп. в ГНТБ Украины

БУЗИННИЙ М.Г.

Науковий центр радіаційної медицини АМН України, 254050, Київ-50, Мельникова 53

ВМІСТ РАДІОВУГЛЕЦЮ АВАРІЙНОГО ВИКИДУ ЧОРНОБИЛЬСЬКОЇ
АЕС В РІЧНИХ КІЛЬЦЯХ ДЕРЕВ

У роботі визначені та приведені рівні ^{14}C аварійного походження, накопичені в річних кільцях дерев. Проведена перша спроба відображення просторового розподілу ^{14}C аварійного походження. Отримані результати вказують на інформативності та практичну значимість радіовуглецевих досліджень, що дає можливість їх застосування для ретроспективної реконструкції аварійних газових викидів ЧАЕС і, перш за все, радіойоду.

ВСТУП

Радіовуглець (^{14}C) став однією з компонент викиду радіоактивності внаслідок аварії на Чорнобильській АЕС. Будучи одним з найбільш довгоживучих радіонуклідів в спектрі аварійного викиду ЧАЭС ($T_{1/2}=5730$ років), ^{14}C може бути відносно міткою для відновлення кількості газоподібних радіонуклідів в різних напрямках і місцях оточуючого Чорнобильську станцію середовища. Цей слід (мітка ^{14}C) залишається на певний, досить довгий час (десятки-сотні років), що відкриває перспективи його використання для цілей ретроспективних методів дозиметрії.

До складу основних форм викиду радіовуглецю із зруйнованого 4-го енергоблоку ЧАЕС слід назвати, перш за все, газоподібну в складі CO_2 та аерозольну у складі графіту та карбонатів.

До цього часу практична увага щодо ^{14}C приділялась здебільшого тільки проблемам, пов'язаним з газоподібними викидами [9, 10, 11]. При цьому дані просторового розподілу радіовуглецю в складі CO_2 можуть бути використані для ретроспективного відновлення рівнів викиду та закономірностей розподілу радіойоду та інших радіонуклідів з метою відновлення доз опромінення населення [12]. Особливо це

важливо для території ближньої зони ЧАЕС, де використання моделей переносу радіоактивності ускладнено локальними неоднорідностями.

Радіовуглець накопичувався в графіті реактора під час штатної роботи. Аварійний ^{14}C у складі CO_2 газоподібних викидів, розповсюджувався з повітряними масами, усвоювався рослинами. За рахунок цього в навколишньому середовищі був сформований “слід”, який дає інформацію про інтегральний вплив ^{14}C зі складу CO_2 по річним кільцям дерев, які засвоїли ^{14}C із складу CO_2 повітря. Інші типи зразків, як то однорічні рослини, їх гербарії 1986 року малоінформативні за рахунок значного поверхневого забруднення [11].

Іншими носіями ^{14}C є власне графіт та карбонати. Їх викид з аварійного блоку ЧАЕС та перенесення в навколишнє середовище у складі аерозолей також сформував певний “слід”. Всі названі носії (компоненти) ^{14}C відповідають за аварійний газоподібний та аерозольний викид, а тому потенційно цікаві для ретроспективних досліджень. Приведені далі результати стосуються газоподібної компоненти викиду ^{14}C .

МЕТОДИ ДОСЛІДЖЕНЬ

Визначення ^{14}C в об'єктах навколишнього середовища, зумовлені викидами під час аварії на ЧАЕС, проводились нами для оцінки діапазону дозових навантажень, зумовлених викидами ^{14}C та кореляційних зв'язків рівня надлишкового ^{14}C , накопиченого в навколишньому середовищі, з рівнями інших радіонуклідів, викинутих в газоподібній формі. Для частини зразків використовувалась підготовка окремо зразків деревини першої та другої половини вегетаційного періоду 1986 року (рання та пізня деревина річного кільця сосни) [11], як це робила *Ingrid Olson* [13], що дало можливість більш точно визначати надлишковий радіовуглець.

Для досліджень використовували сучасну технологію на основі рідинно-сцинтиляційного (РС) лічення з використанням хімічного обладнання для синтезу бензолу та відповідної технології, що розроблені *В.В. Скрипкіним та співавтор.* [14, 15]. При роботі із зразками кожного річного кільця сосни для виключення впливу процесів дифузійного обміну смолянистих речовин проводили їх екстракцію за допомогою спирто-бензольної суміші з наступним обвуглюванням (за методом, описаним *Х.А.Арслановим* [16]). В процесі обвуглювання леткі речовини випарювались і згоряли, тобто не використовувались при синтезі бензолу. Бензол було синтезовано з обвугленого зразка, що дозволяло використовувати тільки клітковину, яка була сформована в відповідний рік і в послідуочий період не змінювалась.

Для визначення питомої активності ^{14}C в зразках використовували метод РС лічення на основі РС спектрометра Quantulus 1220TM, виготовленого фірмою Wallac, Фінляндія, сумісно з комплектом вимірювальних ємностей - віал, виготовлених з тефлону, об'ємом 7, 3 та 0.8 мл [17]. Для підготовки зразків в бензол добавляли сцинтилятори: 4 г·л⁻¹ PPO і 0.1 г·л⁻¹ POPOP. Для кожного типу віал виконана повна процедура стандартизації-калібровки з урахуванням "гасіння" зразків, що забезпечило абсолютну похибку вимірювань не вище 2-3%.

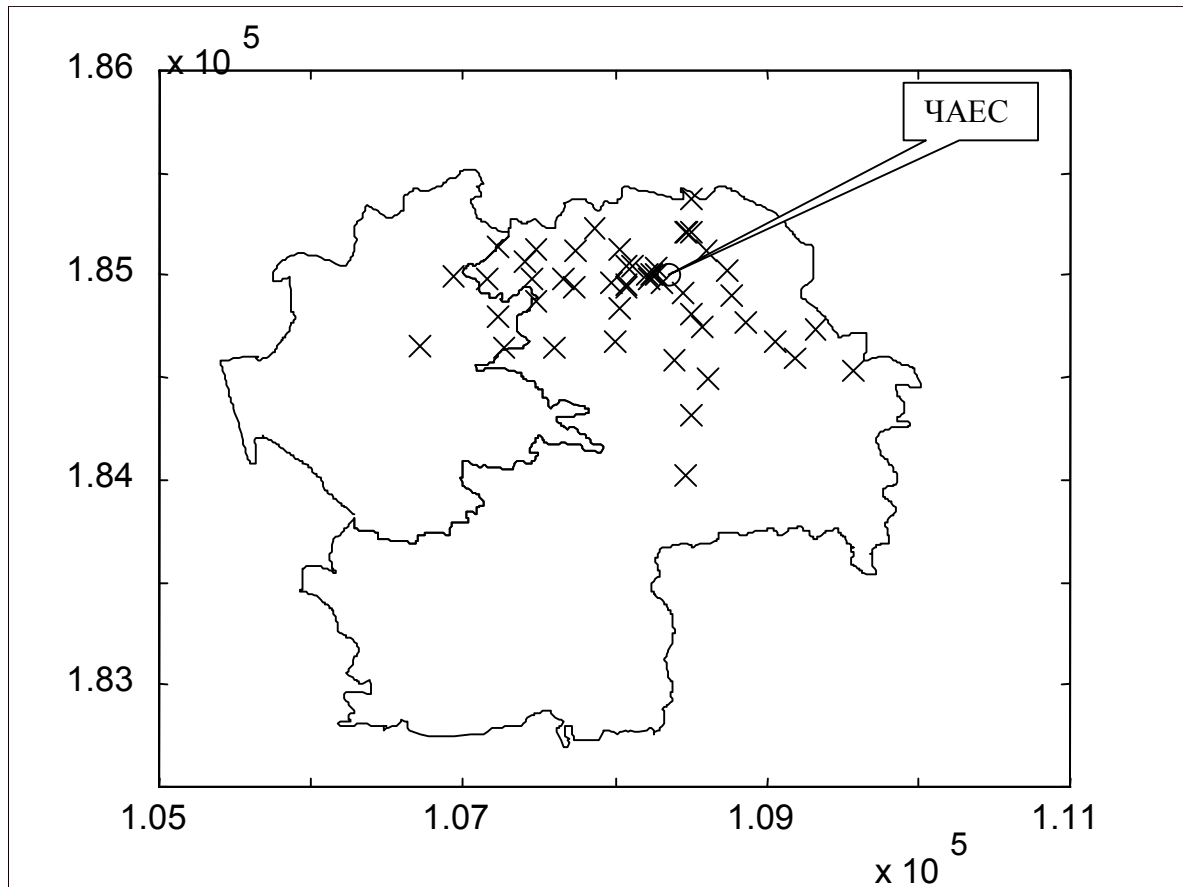
Для визначення надлишкової компоненти радіовуглецю аварійного походження над фоновим рівнем розглядалися річні кільця 1985, 1986 та 1987 рр. По результатам визначення питомої активності річних кілець деревини було визначено надлишкову питому активність ^{14}C - аварійного походження, яка визначалась як різниця активності 1986 року і активності усередненої по зразкам 1985 та 1987 років.

РЕЗУЛЬТАТИ

Проаналізовані зразки для 38 дерев. Сіть відбору зразків охопила 30 км зону відчуження ЧАЕС. Дерева ближньої зони часто мають дуже складну структуру річних кілець, що вимушує аналізувати значно більшу кількість зразків (більше шести річних кілець на одне дерево). Це підтверджує раніше отриманий висновок про те, що дерева, які відбираються для досліджень, повинні мати кільця значної ширини, що була б достатня як для їх ідентифікації так і для набору необхідної маси матеріалу. Для всієї вибірки зразків визначені географічні координати, що дозволили відобразити як власне сіть відбору зразків (мал.1) так і просторовий розподіл радіовуглецю аварійного походження (мал.2).

Максимальне значення активності ^{14}C для кільця 1986 року, найдене по всім проаналізованим зразкам, досягло 583 Бекерелів на кілограм вуглецю (Бк кг⁻¹С) при фоновому 270 ± 5 Бк кг⁻¹С, а найбільше значення для надлишкового ^{14}C досягло 270 Бк кг⁻¹С. При цьому приймалось, що маса ранньої та пізньої деревини 1986 року однакові.

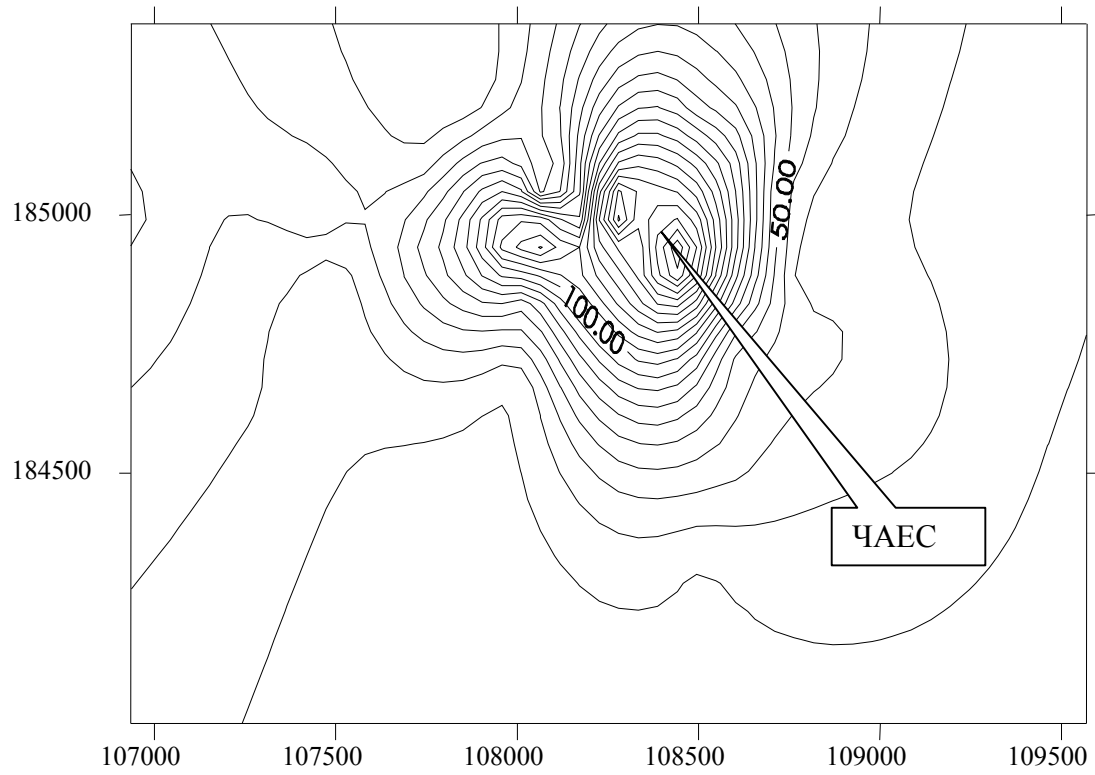
Встановлено, що найбільші рівні характерні для *західного* та *північного* сліду викиду радіоактивності. В той же час просторове відображення результатів вказує напрямки наступного відбору зразків, що охоплює перш за все - південь: Терехів, Іловниця, Розсоха, Бички, Замошна, Новоселки; південь-схід-південь: Чорнобиль, Опачичі, Куповате, Оташев, Городище, Зелений Мис; схід: Городчан, Чапаєвка; північ: Усів. Це дасть можливість отримати більш детальну і точну катину просторового розподілу радіовуглецю аварійного походження.



Мал. 1. Схема пунктів відбору зразків дерев. Контури окреслюють сучасний Іванківський та Поліський райони Київської області (Координатна сітка секундна)

ВИСНОВКИ

Отримані результати свідчать про можливість визначення надлишкового радіовуглецю аварійного походження на відстанях близько 30 км від Чорнобильської АЕС і вказують на існування напрямків від ЧАЕС, для яких високі рівні надлишкового радіовуглецю залишаються на суттєво більших відстанях. Доцільність використання радіовуглецевого маркера ґрунтується на широко впровадженій техніці радіовуглецевих досліджень. Застосування “тонкої” технології підготовки зразків, тобто два зразки для деревини 1986 року, дозволяє більш точно визначати рівень надлишкового радіовуглецю.



Мал. 2. Просторовий розподіл радіовуглецю накопиченого в річних кільцях дерев. Ізолінії побудовані з кроком $10 \text{ Бк кг}^{-1}\text{С}$

ИСПОЛЬЗУЕМАЯ ЛИТЕРАТУРА.

1. Особенности распределения ^{90}Sr в древесине. / Бузынный М.Г., Лось И.П., Несветаило В.Д., Демчук В.В. // Методы жидкостно-сцинтилляционного счета в радиозоологии”, 1995. Вып.1. Сб. / Науч. центр радиац. медицины АМН Украины.- Киев, 1996. С.28-35. - Рус. - Деп. в ГНТБ Украины 22.01.96, №341 -Ук96
2. Особенности распределения ^{90}Sr в древесине./ Бузынный М.Г., Лось И.П., Несветаило В.Д., Демчук В.В. В материалах Международной конференции: ”Радиоактивность и радиоактивные элементы в окружающей среде человека”, 1996. Томск. 25-26 мая 1996г. с.403-406.
3. Peng C.T. Sample preparation in liquid scintillation counting // Revive / The Radiochemical Centre Amersham, England. - 1975. - N 17. - P. 111.
4. Schonhofer F., Henrich E. Recent progress and application of low level liquid scintillation counting. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Articles, Vol. 115, No. 2(1987) p. 317- 333.
5. Randolph, R.R. "Determination of Strontium-90 and Strontium-89 by Cherenkov and Liquid-Scintillation Counting," Int. J. Appl. Rad. Isotop., 26:9-16, (1975).
6. Rucker, T.L. "Calculational Method for the Resolution of ^{89}Sr and ^{90}Sr Counts from Cerenkov and Liquid Scintillation Counting." Proc. of 1989 Oak Ridge Conference, 529-535, (1991).
7. Carmon, B. and German., U. "Radioassay of Low ^{90}Sr Activities by Early Counting of the Cerenkov Radiation Induced by the Ingrowing Daughter Nuclide ^{90}Y ." Health Physics. 42:529-530, (1982).
8. Buzinny M.G., Zelensky A.V., Los' I.P. Beta-Spectrometric Determination of Strontium-90 in Water, Milk, and Other Samples with Ultra-Low-Level Liquid Scintillation Counter. In Liquid Scintillation Spectrometry 92, Proc. of the Int. Conf. on Advances in LSC 92, Vienna, Austria, Sept. 14-18, 1992. Eds. J.E. Noakes, Franz Schonhofer & H.A. Polach. Radiocarbon. Tucson 1993, pp. 439-446.
9. Бузынный М.Г., Зеленский А.В., Ковалюх Н.Н. и др. / Ретроспективное восстановление уровня аварийного выброса ^{14}C в атмосферу вследствие аварии на Чернобыльской АЭС. Материалы науч. Конф. Киев, 27-29 октября 1992 г.- Киев: Украинский научный центр радиационной медицины МЗ и АН Украины,

- Предприятие по радиационным обследованиям и ситуационному анализу (РОСА) Минчернобыля Украины.1993. 1993.- С. 118-124.
10. Бузынный М.Г., Лось И.П., Зеленский А.В. и др. О возможной корреляции уровней С-14 в растительности с I-131 в щитовидной железе после аварии на ЧАЭС. Актуальные проблемы ликвидации медицинских последствий аварии на Чернобыльской АЭС: Тез. Докл. Украинской науч.практ. конф., Киев, 20-22 апреля 1993 г.- Киев: Часть I. М.З. Украины, Украинский научный центр радиационной медицины, 1993.-С. 48-49.
 11. Michael Buzinny, Nikolaj Kovaluch, Ilja Likhtarjov, Ivan Los', Valerij Nesvetajlo. M. F.Pazdur, Emlen Sobotovich, Vadim Skripkin. Ecological chronology of nuclear fuel cycle sites. In Proceedings of 15th International 14C Conference, edited by G.T.Cook, D.D.Harkness, B.F.Miller and E.M. Scott. RADIOCARBON, Vol. 37, No. 2, 1995, P.469-473.
 12. Медицинские последствия Чернобыльской аварии. Результаты пилотных проектов АЙФЕКА и соответственных национальных программ. НАУЧНЫЙ ОТЧЕТ. Международная программа по медицинским последствиям Чернобыльской аварии (АЙФЕКА). ВОЗ. Женева 1995.СС.560.ISBN 5-88429-009-8
 13. Olson I. ¹⁴C Activity in Different Sections and Chemical Fractions of Oak Tree Rings, AD 1938-1981. RADIOCARBON. Vol. 34, N.3, - P.757-767.
 14. Ковалюх Н.Н., Скрипкин В.В. Химическая подготовка образцов для радиоэкологических исследований радиоуглерода. Радиоизотопы в экологических исследованиях. - Киев: "Наукова Думка":-1992.-160 с.
 15. Skripkin V., Kovalyukh N. An Universal Technology for Oxidation of Carbon Containing Materials for Radiocarbon Dattng. Conference of geochronology and dendrochronology of old town's and radiocarbon dating of archeological findings Lithuania, VILNIUS, October 31- November 4, 1994. Abstracts and Papers. Vilnius University Press, 1994. - P. 37-42.
 16. Арсланов Х.А. Радиоуглерод: геохимия и геохронология. -Л.: Изд. Ленингр. Ун.-та, 1987. - 295 с.
 17. Buzinny M. and Skripkin V. Newly designed 0,8 -ml teflon vial for microvolume radiocarbon dating. In Proceedings of 15th International ¹⁴C Conference, edited by G.T.Cook, D.D.Harkness, B.F.Miller and E.M. Scott. RADIOCARBON, Vol. 37, No. 2, 1996, P.743-747.