

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 87.15

**“МЕТОДЫ ЖИДКОСТНО-СЦИНТИЛЛЯЦИОННОГО СЧЕТА В  
РАДИОЭКОЛОГИИ”, 1999. ВЫП.3.  
СБОРНИК**

Ответственный за сборник \_\_\_\_\_ М.Г.Бузынный

Киев-1999

**СОДЕРЖАНИЕ**

<b>МОНИТОРИНГ ТРИТИЯ В УКРАИНЕ: ОСАДКИ И ВЫБРОСЫ АЭС. ....</b>	<b>3</b>
<b>КАЛИБРОВКА ЖИДКОСТНО-СЦИНТИЛЛЯЦИОННОГО СПЕКТРОМЕТРА QUANTULUS 1220™ ДЛЯ ИЗМЕРЕНИЯ РАДИОУГЛЕРОДА. ....</b>	<b>10</b>
<b>РЕТРОСПЕКТИВНЫЕ ИСЛЕДОВАНИЯ РАДИОУГЛЕРОДА АВАРИЙНЫХ ВЫБРОСОВ ЧЕРНОБЫЛЬСКОЙ АЭС.....</b>	<b>13</b>
<b>ШТАТНІ ВИКИДИ РАДІОВУГЛЕЦЮ ЧОРНОБІЛЬСЬКОЇ АЕС. ....</b>	<b>26</b>
<b>ИЗМЕРЕНИЯ УДЕЛЬНОЙ АКТИВНОСТИ ТРИТИЯ МЕТОДОМ ЖИДКОСТНО- СЦИНТИЛЛЯЦИОННОГО СЧЕТА В ПРОБАХ ВОДЫ ПЕРЕВЕДЕННЫХ В БЕНЗОЛ. ....</b>	<b>34</b>
<b>ЛИТЕРАТУРА. ....</b>	<b>46</b>

АКАДЕМИЯ МЕДИЦИНСКИХ НАУК  
 НАУЧНЫЙ ЦЕНТР РАДИАЦИОННОЙ МЕДИЦИНЫ

Сборник “Методы жидкостно-сцинтилляционного счета в радиоэкологии”, 1999. Вип.3.  
 Деп. в ГНТБ Украины

МОНИТОРИНГ ТРИТИЯ В УКРАИНЕ: ОСАДКИ И ВЫБРОСЫ АЭС.

*БУЗИННЫЙ М.Г., ЛОСЬ И.П.*

Научный центр радиационной медицины АМН Украины,

E-mail: [Buzinny@BigFoot.com](mailto:Buzinny@BigFoot.com), URL: <http://BigFoot.com/~Buzinny>

*СКУДНОВА Л.В.*

Центральная геофизическая обсерватория Госкомгидромета Украины

**РЕФЕРАТ.** Тритий относится к числу биологически активных радионуклидов с относительно большим периодом полураспада ( $T_{1/2}=12.35$  года). Он является потенциальным загрязнителем (индикатором загрязнения) окружающей среды локального и глобального масштаба. Высокая скорость обмена водорода обуславливает быстрое достижение равновесия трития в воде во всех экологических цепях. Это приводит к тому, что для определения воздействия трития достаточно определить его удельную активность в воде. Внимание уделяется воде, поскольку вода является наиболее чувствительным индикатором чистоты ядерной технологии и главным объектом мониторинга окружающей среды в районах размещения АЭС. Исследования выбросов АЭС проводятся нами, начиная с 1988 года. Исследования осадков проводятся УНЦРМ и ЦГО ГКГМ совместно, начиная с конца 1990 года. Осадки отбираются за сетью Гидрометеорологических наблюдений Украины, а вода – в окрестностях действующих АЭС с реакторами типа ВВЭР. В основании сети мониторинга лежат около 50-ти пунктов метеорологических наблюдений по территории Украины, Молдовы и республики Крым. Проанализировано около 10000 образцов, из которых около 2000 осадки. Измерение удельной активности трития проводятся при помощи современного жидкостно-сцинтилляционного спектрометра Quantulus 1220 фирмы EG&G Wallac. Наблюдение за удельной активностью осадков указывает на ее постоянное снижение, позволяет дифференцировать пункты наблюдения, выявляя аномалии локального воздействия источников выброса. Кроме того, это дает возможность следить за тенденциями глобальных колебаний запасов и поведения трития в окружающей среде. Наблюдения за уровнем удельной активности трития в объектах окружающей среды и технологических средах указывают на тенденцию в его накопление в водоемах-охладителях  $50 \text{ Бк л}^{-1}$  (1991 г.) и  $250 \text{ Бк л}^{-1}$  (1996 г.) для Южно-Украинской АЭС (водоем-охладитель с ограниченным водообменом). Стабилизация удельной активности трития на уровне  $350 \pm 50 \text{ Бк л}^{-1}$  (1989-1997 гг.) характерная для пруда-охладителя Запорожской АЭС, на котором регулярно выполняется технологическая замена части воды.

**ВВЕДЕНИЕ.**

Существование трития в природе обусловлено его постоянным образованием в верхних слоях атмосферы в результате ряда ядерных реакций, главной из которых по выходу трития есть взаимодействие нейтронов с ядрами атомов азота:  ${}^{14}_7\text{N} + {}^1_0\text{n} \rightarrow {}^{12}_6\text{C} + {}^3_1\text{H}$ . За год образуется около  $(5.5-11.1) \times 10^{16}$  Бк космогенного трития. Общее содержание трития естественного происхождения на планете составляет  $(9.2-18.5) \times 10^{17}$  Бк [1, 2]. Образование трития на поверхности континентов и его накопление в органических

соединениях обусловило то, что его природная концентрация в осадках над континентами составляла до  $1.2\text{--}1.7$  Бк л<sup>-1</sup> при том, что в речных и озерных водах —  $0.24\text{--}1.2$  Бк л<sup>-1</sup> и  $0.1\text{--}0.3$  Бк л<sup>-1</sup> в воде на поверхности океанов [1, 3]. Общий выброс трития в окружающую среду за счет испытания ядерного оружия составил около  $1.5 \times 10^{20}$  Бк, что обусловило повышенное его содержание во время выбросов в выпадениях (осадках) и объектах окружающей среды в 1963 году до уровней в несколько тысяч Бк·л<sup>-1</sup> [2]. Миграционные процессы и естественный распад существенно понизили к настоящему времени величину этой компоненты трития в окружающей среде. Ежегодные выбросы за счет предприятий ядерной энергетики уже в 1978 году составляли более  $1.5 \times 10^{18}$  Бк [4]. Прогноз содержания трития в озерах Северной Америки к 2000 году составляет  $600$  Бк·л<sup>-1</sup> [4]. Выброс трития и его вынос в Черное море, связанный с аварией на ЧАЭС составил  $5.2 \times 10^{15}$  Бк, что составляет около 1% его запасов в Черном море [5].

Проводимые исследования охватывают территорию Украины, подверженную возможному влиянию выбросов АЭС: осадки - по сети станций Гидрометеорологических наблюдений Украины и вода – в окрестности действующих АЭС с реакторами водородного типа - поскольку контроль содержания трития в воде является наиболее чувствительным методом радиационного мониторинга окружающей среды в районах размещения АЭС, индикатором чистоты ядерной технологии [6, 7, 8, 9]. Наши наблюдения за уровнем содержания трития в объектах окружающей среды и технологических средах указывают на тенденцию к его накоплению в водоемах охладителях  $50$  Бк л<sup>-1</sup> (1991 г.) и  $250$  Бк л<sup>-1</sup> (1996 г.) для Южно-Украинской АЭС (водоём-охладитель с ограниченным водообменом). Стабилизация уровня удельной активности трития на уровне  $350 \pm 50$  Бк л<sup>-1</sup> (1989 -1997 гг.) характерна для пруда-охладителя Запорожской АЭС на котором регулярно выполняется технологическая замена воды [10]. Наблюдение за осадками позволяет дифференцировать наблюдательные пункты выявляя аномалии локального влияния источников выброса [11].

## МЕТОДЫ.

С начала 60-х годов на планете работает более 100 станций, которые ведут наблюдения за динамикой трития в осадках в рамках программы GNIP (Global Network on Isotopes in Precipitations). На территории Украины Госкомгидромет начал такие исследования в 1970 году в Одессе, а с 1978 года отбор проб атмосферных осадков начат еще и в Киеве, Львове и Севастополе (См. рисунок 1. За данными GNIP [12]). Анализ проб проводился в системе Госкомгидромета НПО “Тайфун” (г.Обнинск, Россия), с 1990 года

исследования проводились в Украине: в ПГО СевУкрГеология, а с 1992 года – анализ осуществляется в УНЦРМ АМН Украины. Наблюдательная сеть охватывает около 50-ти пунктов метеорологических наблюдений по территории Украины, Молдовы и республики Крым. В качестве анализируемых образцов использовались части усредненных за месяц проб осадков. За время исследований проанализировано более 2000 образцов.

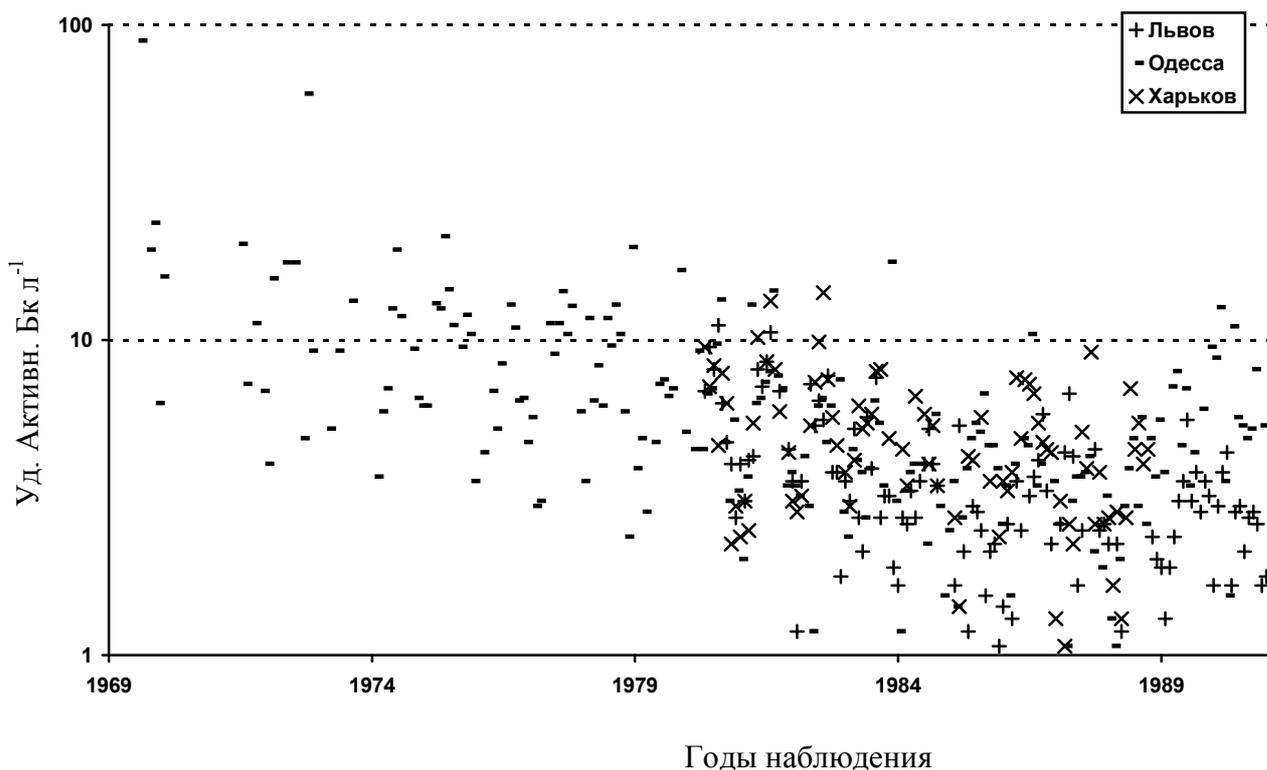


Рисунок 1. Удельная активность трития (Бк литр<sup>-1</sup>) в пробах усредненных осадков (ежемесячные пробы) [12].

При исследованиях осадков и воды счетный образец готовился смешиванием в пластиковой виале 8 мл дистиллированной пробы и 12 мл жидкой сцинтилляционной смеси Optiphase Hisave 3. Определение содержания трития проводили при помощи жидкостно-сцинтилляционных альфа-бета спектрометров типа "Quantulus" фирмы LKB-Wallac. Время измерения проб - 120 минут для обычных проб, при повышенной активности счет пробы ограничивался при наборе 500 - 1000 отсчетов, что давало погрешность счета 4.5-3.0 процента соответственно. Калибровку чувствительности проводили при помощи стандартного радиоактивного раствора на основе тритиевой воды с погрешностью удельной активности не более 3% и специального калибровочного набора Net-trick фирмы LKB-Wallac с погрешностью не хуже 1%. Минимальная детектируемая активность при измерении трития составляла 5.1 и 1.1 Бк·л<sup>-1</sup> для времени измерения

образцов 100 и 500 минут соответственно. Для учета степени гашения образцов была снята зависимость влияния гашения на эффективность регистрации излучения трития, а ее параметры заведены в расчетную программу. В качестве гасящей добавки использован четыреххлористый углерод.

## РЕЗУЛЬТАТЫ.

Для анализа полученных результатов мы приводим отображение представительности выборки проб по пунктам (См. Рисунок). На рисунке 2 представлены результаты за весь период наблюдения начиная с конца 1990 года: средние результаты и количество проб в ежемесячной выборке. Как видно средние величины изменяются от 7-8 до 2-3 Бк литр<sup>-1</sup>. Локальные выбросы соответствуют одиночным пробам и прежде всего наблюдениям, проводимым в г.Киев, где точка наблюдений расположена рядом с тритиевой лабораторией НИИ ЯИ НАНУ, см. более подробно на рисунке 3. Применение дополнительной сети отбора проб указывает на локальное влияние источника выброса.

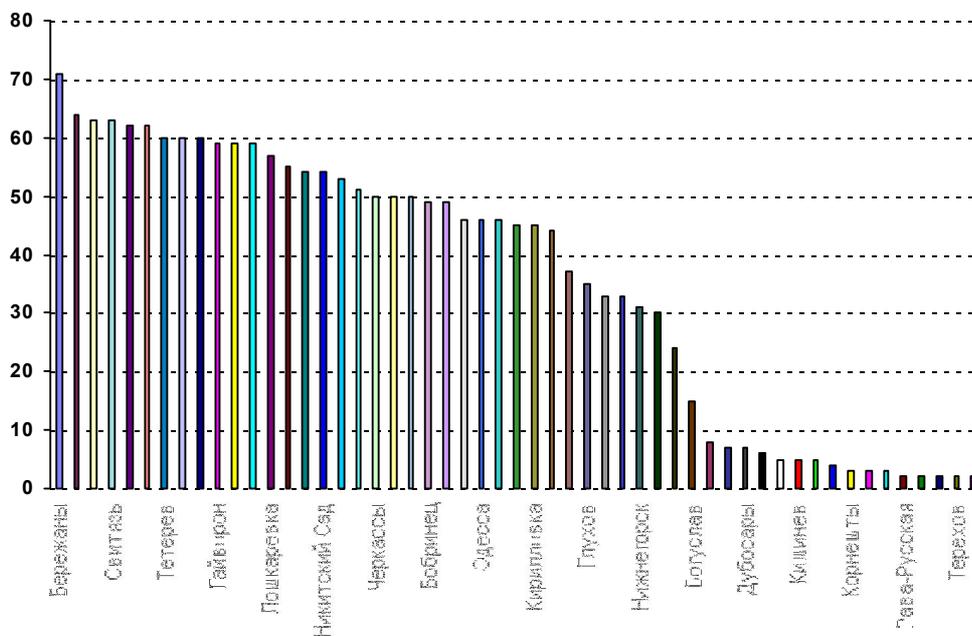


Рисунок 2. Представительность выборки проб по пунктам наблюдений.

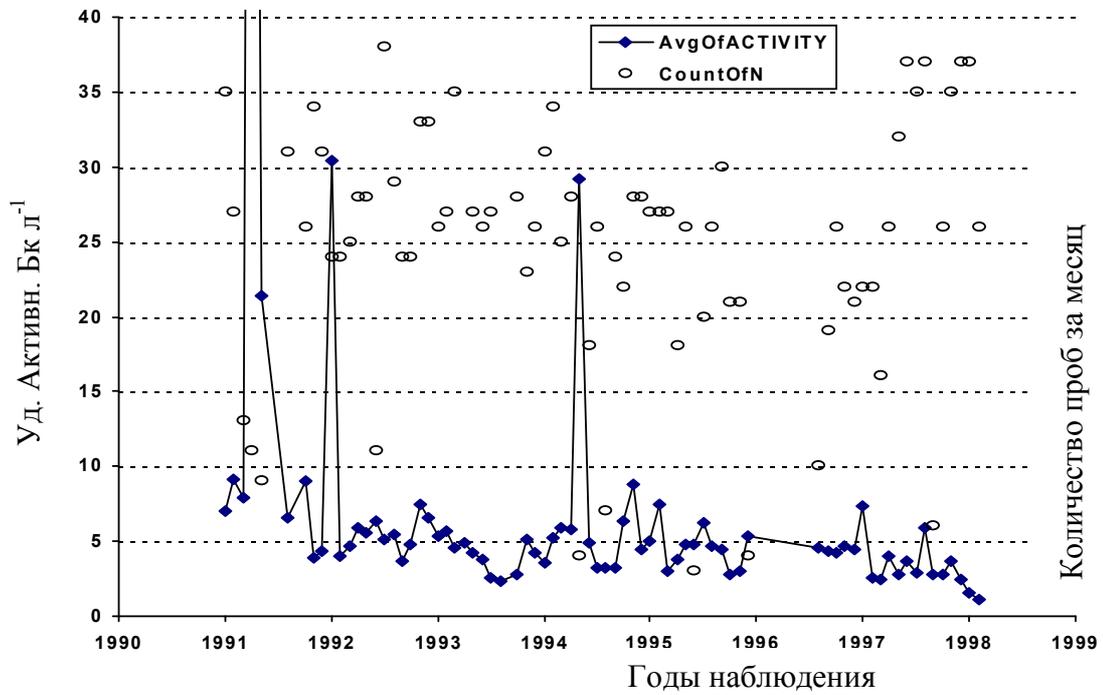


Рисунок 3. Удельная активность проб осадков по тритию по наблюдательной сети Гидромета Украины.

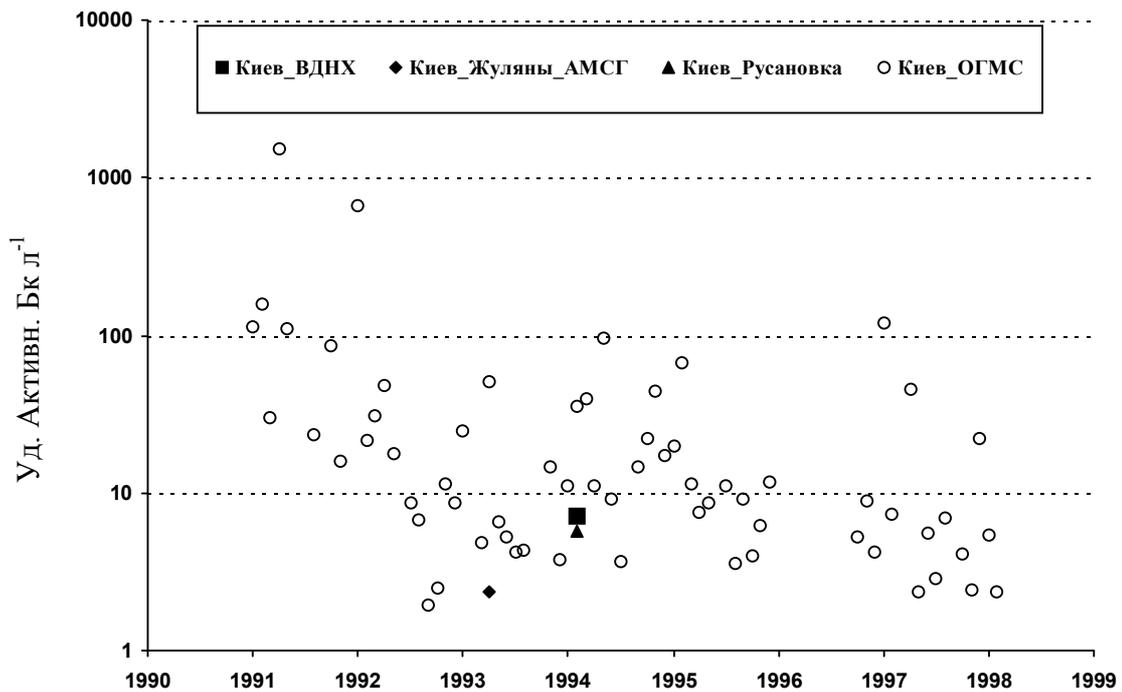


Рисунок 4. Удельная активность проб осадков по тритию по сети отбора проб г.Киева.

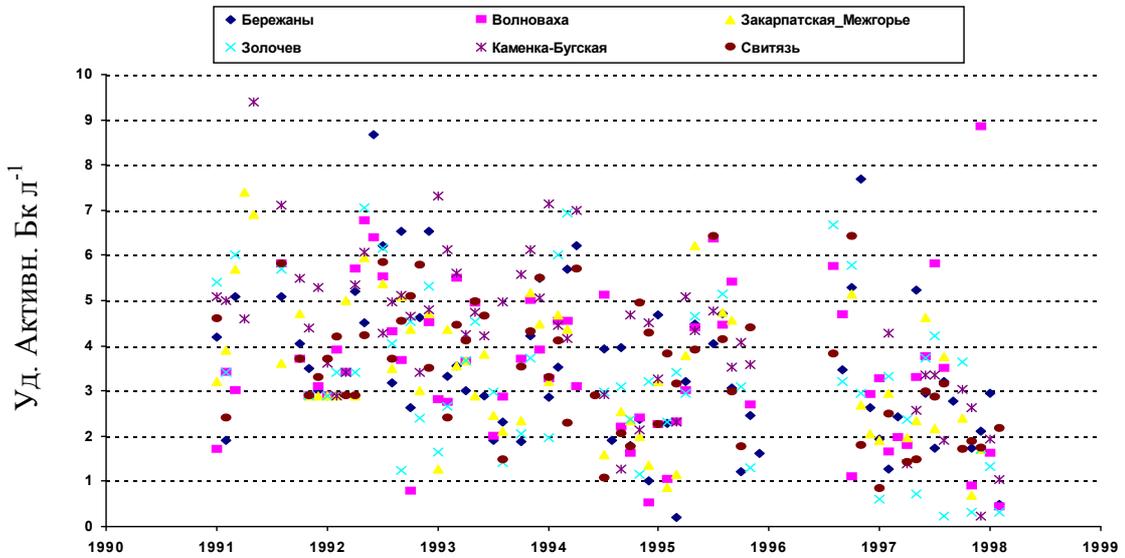


Рисунок 5. Удельная активность проб осадков по тритию по пунктам наблюдательной сети с наиболее представительной выборкой.

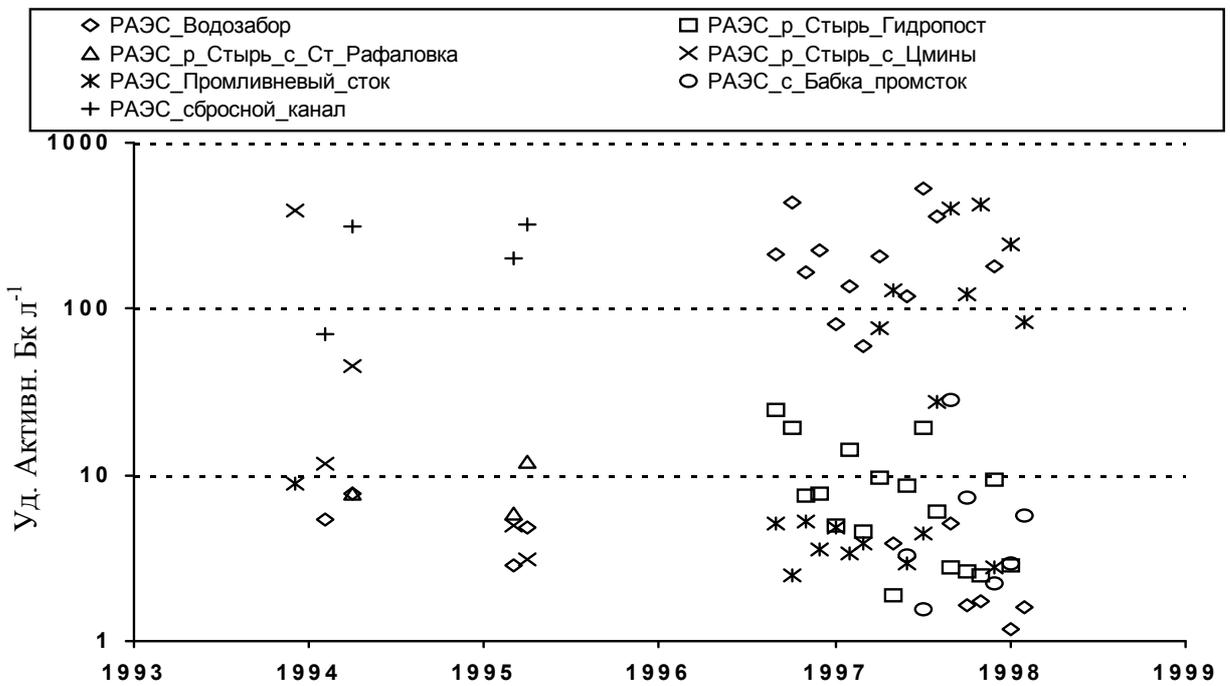


Рисунок 6. Удельная активность проб воды по тритию по наблюдательной сети Ровенской АЭС.

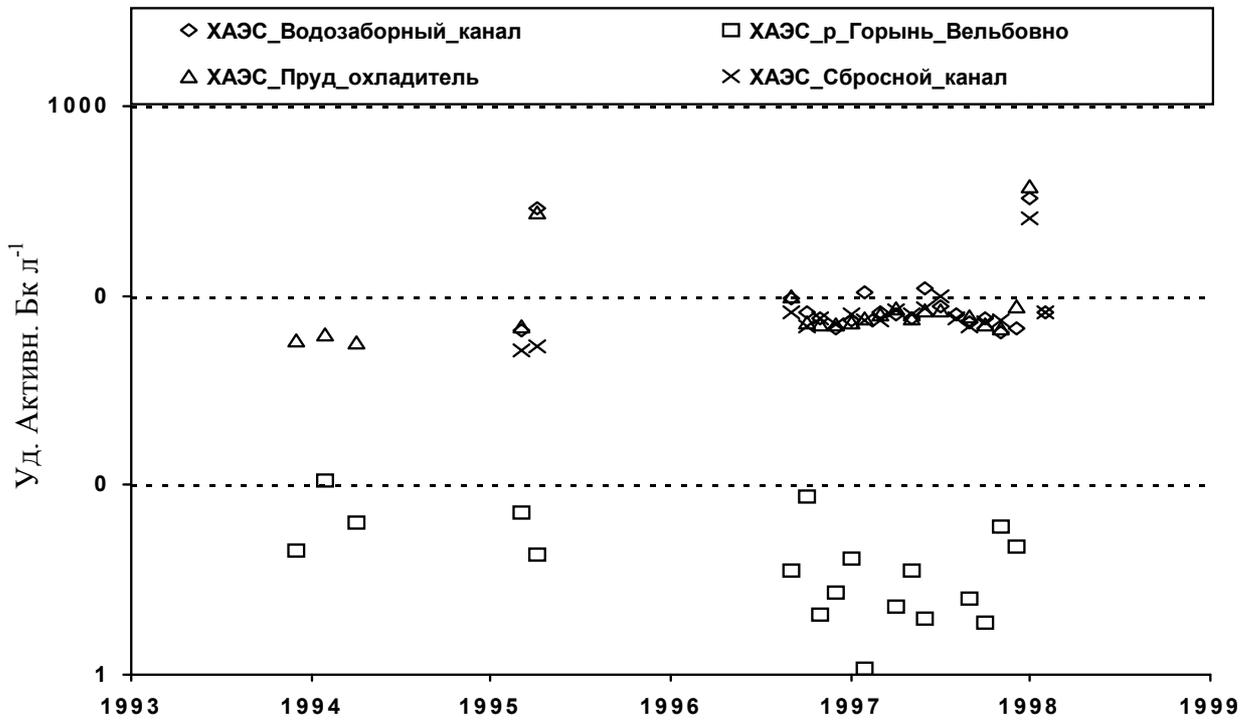


Рисунок 7. Удельная активность проб воды по тритию по наблюдательной сети Хмельницкой АЭС.

АКАДЕМИЯ МЕДИЦИНСКИХ НАУК  
НАУЧНЫЙ ЦЕНТР РАДИАЦИОННОЙ МЕДИЦИНЫ

Сборник “Методы жидкостно-сцинтилляционного счета в радиоэкологии”, 1999. Вип.3.

Деп. в ГНТБ Украины

КАЛИБРОВКА ЖИДКОСТНО-СЦИНТИЛЛЯЦИОННОГО  
СПЕКТРОМЕТРА QUANTULUS 1220<sup>TM</sup> ДЛЯ ИЗМЕРЕНИЯ  
РАДИОУГЛЕРОДА.

Бузынный М.Г.

Научный центр радиационной медицины АМН Украины

254050, Украина, Киев, ул. Мельникова, 53,

E-mail: [Buzinny@BigFoot.com](mailto:Buzinny@BigFoot.com), URL: <http://BigFoot.com/~Buzinny>

**РЕФЕРАТ.** Повышение точности измерений удельной активности радиоуглерода, необходимость измерения образцов различной массы, требует использования измерительных емкостей различного объема. Нами проведен полный набор процедур калибровки для коррекции гашения образцов при измерении удельной активности радиоуглерода при помощи жидкостно-сцинтилляционного спектрометра Quantulus 1220<sup>TM</sup>. Используются четыре типа измерительных емкостей: стандартные – 7мл и 3мл, миливиала – 0.8мл и новые 2.5мл – тонкие. В качестве реагента, вносящего фиксированное гашение в образец, использован четыреххлористый углерод. Проведены исследования зависимости эффективности регистрации радиоуглерода и исследования зависимости фона для каждого типа измерительных емкостей от значения гашения. Полученные зависимости эффективности регистрации образцов и скорости регистрации фона от спектрального параметра гашения SQP(E) описаны полиномом второй степени для всех измерительных емкостей. Функциональное определение фона при измерениях радиоуглерода открывает возможность проводить измерения более точно, особенно важно при определении малых активностей.

**ВВЕДЕНИЕ.**

Коррекция гашения образцов, используется для стандартизации жидкостно-сцинтилляционного счета бета-излучающих радионуклидов. Применение стандартизации для измерения радиоуглерода весьма целесообразно в связи с требованиями высокой точности измерений. Нами используются четыре типа измерительных емкостей: стандартные виалы: 7 и 3мл, миливиала – 0.8мл и новые тонкие V3 - 2.5мл. Так образцы, измеренные в течение 1997 года, занимают следующие интервалы значений параметра SQP(E): 3ml (750-800), 7ml (800-850), 2.5ml (800-850) и 0.8ml (770-830) см. Рисунок 1. Это

соответствует диапазонам значений эффективности 65-72%, 76-83%, 75-82% и 76-86% соответственно.

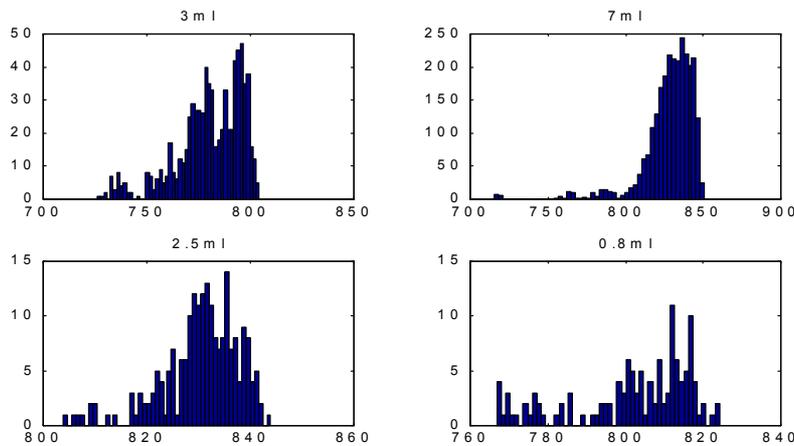


Рисунок 1. Частотные распределения встречаемости значений параметра SQP(E) проб для различных измерительных емкостей.

#### МЕТОДЫ И РЕЗУЛЬТАТЫ.

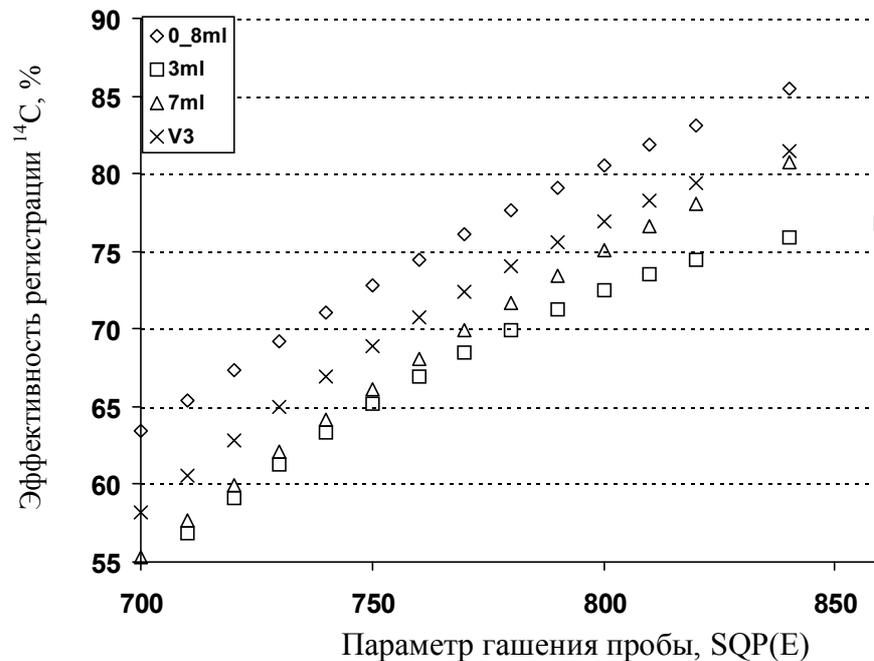


Рисунок 2. Зависимость эффективности регистрации  $^{14}\text{C}$  от параметра гашения пробы “кривая гашения”.

Полученные зависимости эффективности регистрации – E (%) приведены на рисунке 2 и для фона ВГ (имп. мин.<sup>-1</sup>) описаны полиномом второй степени (См. Формула 1), причем соответствующие параметры сведены в таблицу 1.

$$Y = Ax^2 + Bx + C \quad (1)$$

Таблица 1. Зависимость (параметры) эффективности и фона от спектрометрического параметра гашения образцов SQP(E) при регистрации радиоуглерода

Виала	Параметры для расчета эффективности		
	А	В	С
емкость			
0.8 мл	-0.000339	0.6798	-246.3
7 мл	-0.000385	0.775	-298.3
3 мл	-0.000680	1.2003	-452.6
2.5 мл	-0.000528	0.9789	-368.3

#### ВЫВОДЫ.

Как видно по приведенным зависимостям отличия “кривых гашения” наиболее существенны для используемых измерительных емкостей 0.8 мл, 2.5 мл и 3.0 мл. “Кривая гашения” для измерительных емкостей 7.0 мл представляет собой вариант, который является переходным от типа 3.0 мл к типу 2.5 мл по мере повышения параметра SQP(E). Это определяется размерами и особенностями конструкции измерительных емкостей: минимальная эффективность при значительном “гашении” образцов одинакова для емкостей 3 и 7 мл, что определяется одинаковым диаметром; максимальная эффективность при незначительном гашении образцов одинакова для емкостей 7 и 2.5 мл, что определяется одинаковой высотой участка виалы заполненного бензолом.

Учитывая требования оптимизации измерений необходимо использовать подготовку образцов направленную на обеспечение чистоты пробы, которая обеспечит идентичность параметров регистрации бета-излучения.

АКАДЕМИЯ МЕДИЦИНСКИХ НАУК  
НАУЧНЫЙ ЦЕНТР РАДИАЦИОННОЙ МЕДИЦИНЫ

Сборник “Методы жидкостно-сцинтилляционного счета в радиоэкологии”, 1999. Вып.3.  
Деп. в ГНТБ Украины

РЕТРОСПЕКТИВНЫЕ ИСЛЕДОВАНИЯ РАДИОУГЛЕРОДА АВАРИЙНЫХ  
ВЫБРОСОВ ЧЕРНОБЫЛЬСКОЙ АЭС

Бузынный М.Г., Талерко Н.Н.

Научный центр радиационной медицины АМН Украины

04050, Украина, Киев, ул. Мельникова, 53, E-mail: [Buzinny@BigFoot.com](mailto:Buzinny@BigFoot.com)

**Реферат.** Для решения задачи реконструкции динамики радиоактивного загрязнения воздуха и подстилающей поверхности в начальный период аварии на Чернобыльской АЭС предложено использование данных радиоуглеродных исследований. В основе такого подхода - подобие в поведении высокоактивных газовых выбросов с  $\text{CO}_2$  с одной стороны и частиц графита, выбрасывавшихся из аварийного реактора, с радиоаэрозолями с другой. Две указанных компоненты радиоуглерода ( $T_{1/2}=5730$  лет) аварийного выброса ЧАЭС оставили в окружающей среде след, который сохраняется продолжительное время: годовые слои деревьев для  $\text{CO}_2$  и лесная подстилка-почва для графита. Применяемая радиоуглеродная технология измерений основана на синтезе бензола и последующем жидкостно-сцинтилляционном счете. На основе исследований годовых колец древесины (>50 пунктах 30 км зоны ЧАЭС) построена подробная картина пространственного распределения радиоуглерода, переносимого в газовом состоянии. Максимальный наблюдаемый уровень аварийной компоненты составляет 550 Бк·кг<sup>-1</sup>С. Метод обнаруживания пылеобразного графита, депонированного на поверхности почвы, имеет чувствительность 0.1 мг графита на кв. метр. Абсолютный максимум депонированного графита (52.6 мг·м<sup>-2</sup>), обнаруженный по исследованным образцам, находится в 9 км от источника по западному следу аварийного выброса. При помощи модели атмосферного переноса LEDI проведены расчеты переноса аэрозольной и газообразной компонент радиоактивного углерода, их осаждения в зоне, и пространственного распределения на расстояниях до 30 км от Чернобыльской АЭС. Оценка общего количества газообразного <sup>14</sup>С, выброшенного из аварийного реактора в начальный период аварии, составила 50 ТБк. Сочетание натуральных измерений и математического моделирования атмосферного переноса радиоуглерода может служить материалом для реконструкции динамики радиоактивного загрязнения в начальный период аварии на ЧАЭС высоколетучими радиологически опасными радионуклидами, данные измерений которых отсутствуют.

**ВВЕДЕНИЕ**

Для оценки радиологических последствий аварийных радиоактивных выбросов Чернобыльской АЭС на окружающую среду и на человека используются различные прямые и ретроспективные методы. Формирование полей радиоактивного загрязнения воздуха и подстилающей поверхности в начальный период аварии было обусловлено как

погодными условиями распространения активности, так и характеристиками газо-аэрозольного выброса. Реконструкция динамики изменения параметров выброса во времени остается до сих пор окончательно не решенной задачей, что в значительной степени обусловлено отсутствием достаточного количества данных измерений радиологически опасных радионуклидов в первый период аварии. Ситуация осложняется тем обстоятельством, что для короткоживущих нуклидов (радиоактивные благородные газы, аэрозольная и газообразная компоненты ряда изотопов радиойода), внесших существенный вклад в дозу облучения населения, проживавшего в пределах зоны отчуждения Чернобыльской АЭС на момент аварии, данные измерений концентраций в воздухе, почве и растительности отсутствуют вовсе. С другой стороны, представляется возможной реконструкция сценария динамики выброса активности из аварийного реактора с привлечением данных натуральных наблюдений для ряда нуклидов, которые сами по себе не внесли значимого вклада в дозу, но имеют достаточно большой период полураспада и содержание которых в компонентах природной среды с высокой степенью точности регистрируется спустя длительный период после аварии. Радиоуглеродные исследования являются одним из методов, позволяющих провести восстановление характеристик полей радиоактивного загрязнения по данным измерений содержания долгоживущего  $^{14}\text{C}$  в растительности. В основе подхода - подобие в поведении (в окружающей среде и при атмосферном переносе) высокоактивных газовых выбросов с  $\text{CO}_2$ . [13, 14]. Однако существенной особенностью аварийного выброса из Чернобыльской АЭС является то, что, кроме газовой компоненты, в выбросе присутствовала мелкодиспергированная радиоактивная аэрозольная компонента, наличие которой связано с разрушением и последующим горением графитовой кладки реактора типа РБМК-1000. Соответственно, измерения содержания аэрозольной компоненты радиоуглерода дают дополнительную информацию о закономерностях распространения и осаждения аэрозольного выброса из аварийного блока в первый период аварии. Нами предложен метод и проведена предварительная оценка его информативности, основанный на подобии поведения высокоактивных радиоактивных аэрозолей и частиц графита, выбрасывавшихся из аварийного реактора. Для этой цели проводились исследования запаса мелкодиспергированного графита в лесной подстилке и накопления газообразного радиоуглерода аварийного происхождения в древесине в зоне отчуждения Чернобыльской АЭС.

## ГАЗОВАЯ СОСТАВЛЯЮЩАЯ РАДИОУГЛЕРОДНОГО ВЫБРОСА

### Отбор и подготовка образцов древесины

Сеть отбора образцов для радиоуглеродных исследований включает в себя более 60 точек и покрывает практически всю зону отчуждения ЧАЭС. Для исследования годовичных слоев выбирались уединенные деревья или деревья стоящие на опушке леса с развитой кроной и растущие в непосредственной близости с населенными пунктами<sup>1</sup>.

Для подготовки образцов использованы современные методы. Во всех случаях счетной формой являлся бензол. Для древесины проводились исследования для отдельных годовичных колец 1985-1987 годов. При этом измерения образцов за 1985 и 1987 годы дают возможность оценить влияние штатных выбросов ЧАЭС для содержание радиоуглерода как в доаварийных, так и в послеаварийных слоях древесины, что позволило более точно определять вклад радиоуглерода аварийного происхождения. В измерениях была использована целлюлоза, очищенная от экстрактивных веществ спиртобензольной смесью. Измерения проводились на низкофоновом жидкостно-сцинтилляционном спектрометре Quantulus 1220<sup>TM</sup> фирмы Wallac. Погрешность измерений не превышала 1-1.5%.

### Пространственное распределение содержания $^{14}\text{C}$ в древесине по данным измерений

Известно, что  $^{14}\text{C}$ , накопленный в древесине годовичного кольца (слоя) соответствует усредненному за вегетационный период содержанию  $^{14}\text{C}$  в воздухе. Нами установлено, что  $^{14}\text{C}$  аварийного происхождения вошел в состав ранней древесины 1986 года [13]. Анализ содержания  $^{14}\text{C}$  отдельно по ранней и поздней древесине 1986 года, проводимый нами для большинства образцов, позволил проводить эти определения более надежно и точно. Приводимые в таблице 1 уровни  $^{14}\text{C}$  дополнены примерно на треть по сравнению с анализом, который проводился нами ранее [14]. Картина интегрального пространственного распределения содержания аварийного  $^{14}\text{C}$  в древесине, полученные по данным измерений, приведена на рисунке 1. Как видно, наблюдаются ярко выраженные максимумы в западном и северо-восточном направлениях от источника, расположение которых определялось направлением переноса в период максимальной интенсивности выброса.

---

<sup>1</sup> Большинство населенных пунктов зоны отчуждения отселено



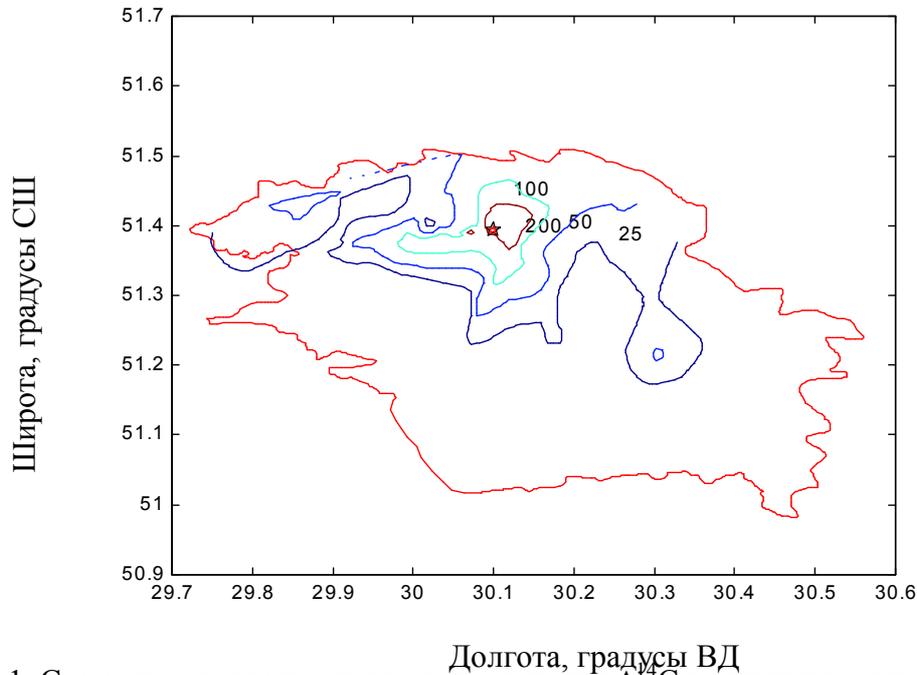


Рисунок 1. Схема пространственного распределения  $\Delta^{14}\text{C}$  в годичных кольцах деревьев вокруг Чернобыльской АЭС, изолинии ( $\text{Бк кг}^{-1}\text{C}$ ).

### Численное моделирование распространения аварийного $^{14}\text{C}$

Полученные данные измерений содержания  $^{14}\text{C}$  в древесине зоны отчуждения Чернобыльской АЭС могут быть использованы для реконструкции динамики радиоактивного выброса в течение начальной стадии Чернобыльской аварии. Восстановление параметров источника выброса проводилось методом решения обратной задачи атмосферного переноса радиоактивной примеси с использованием результатов прямых измерений содержания  $^{14}\text{C}$  в годичных кольцах деревьев, проведенных в 1995-97 гг. В предположении о существенно нестационарном источнике выброса (с интенсивностью выброса и начальной высотой подъема активности, изменяющимися во времени в течение первых 10 суток аварии) были проведены расчеты переноса газообразной примеси с помощью модели атмосферного переноса LEDI [15] по реальным данным о погоде в течение рассматриваемого периода. Для расчетов были использована стандартная метеорологическая информация, полученная по данным радиозондирования атмосферы в гг. Киеве и Гомеле, и включающая в себя данные о скорости и направлении ветра, температуре и давлении на высотах до 2000 м с периодичностью 6 часов.

С помощью модели атмосферного переноса было рассчитано поле интегральной по времени объемной концентрации в приземном слое воздуха 30-километровой зоны ЧАЭС и была рассчитана концентрация аварийного  $^{14}\text{C}$  в древесине. В результате сопоставления результатов расчетов с данными прямых измерений было восстановлено поле

концентрации углерода в древесине по всей территории 30-км зоны вокруг ЧАЭС, а также оценены как суточные выбросы углерода в атмосферу за период с 26 апреля по 5 мая 1986 г., так и общее количество  $^{14}\text{C}$ , вышедшее из аварийного реактора за этот период.

Пространственное распределение аварийного  $^{14}\text{C}$  в древесине 30-километровой зоны ЧАЭС, полученное на основе моделирования атмосферного переноса выброса из 4-го блока, показано на рис. 2. Наблюдаются 3 основных следа: западный след, сформированный в основном 26 апреля, северо-восточный след, вызванный интенсивным радиоактивным выбросом в течение 27-28 апреля, и южный, определяемый выбросом за период с 30 апреля по 5 мая. Согласно расчетам, максимум поля концентраций, достигающий значений более  $400 \text{ Бк кг}^{-1}$ , расположен в северо-восточном направлении. Таким образом, сравнение полей концентраций содержания  $^{14}\text{C}$  в древесине 30-км зоны, полученных при обработке данных натуральных наблюдений и расчетным путем с помощью моделирования атмосферного переноса показывает достаточно хорошее согласование между собой (рис. 1).

Временной ход выброса  $^{14}\text{C}$  подобен аналогичным оценкам, сделанным для других летучих радионуклидов [16]. Интенсивность выброса имела максимальные значения в течение первых трех дней после аварии, затем значительно уменьшилась, к 5 мая достигнув второго слабого максимума, после чего выброс из аварийного реактора резко снизился (рис.3). Полученная оценка суммарного выброса за этот период составляет 50 ТБк.

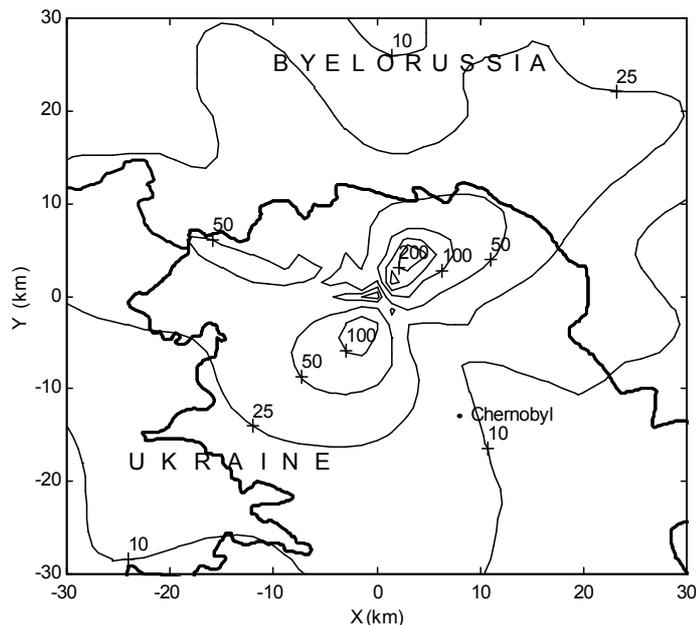


Рисунок 2. Изолинии реконструированного с помощью модели атмосферного переноса поля концентрации  $^{14}\text{C}$  (в  $\text{Бк кг}^{-1} \text{C}$ ) в годовых кольцах деревьев.

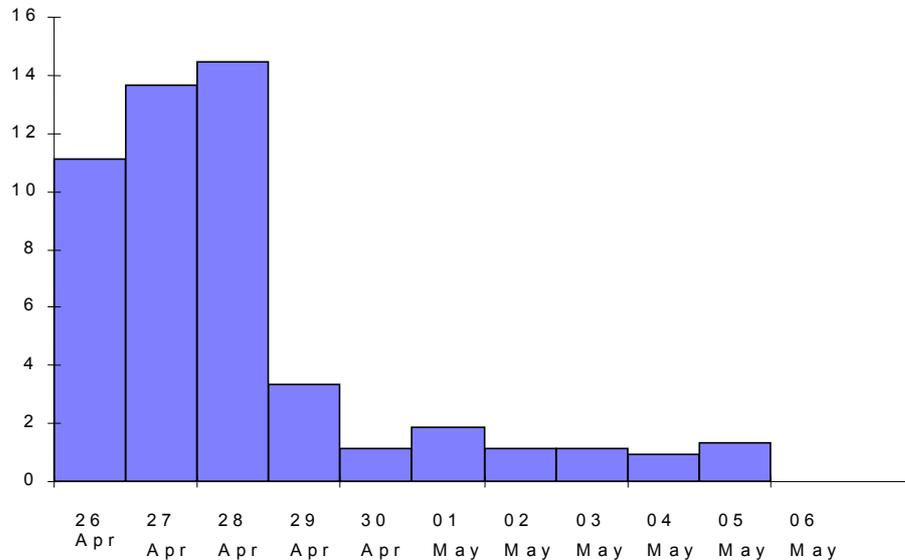


Рисунок 3. Оценки суточных выбросов  $^{14}\text{C}$  (в ТБк) в начальный период Чернобыльской аварии

### ОЦЕНКИ БАЛАНСА РАДИОУГЛЕРОДА В АВАРИЙНОМ ВЫБРОСЕ ЧАЭС

Анализ рассеяния и осаждения различных физико-химических компонент радиоуглерода в аварийном выбросе ЧАЭС затрудняется достаточно большими неопределенностями в оценках как общего количества  $^{14}\text{C}$  в момент аварии, так и вклада каждой компоненты. Расчет баланса радиоактивного углерода в 4-м блоке ЧАЭС исходит из того, что масса графитной кладки в соответствии с проектной документацией составляла 1850 т. Согласно данным, приведенным в [17], во время активной стадии аварии большая часть графита сгорела, часть графита диспергирована в результате взрыва и выброшена за пределы реактора, а оставшая его часть – около 700 т (что составляет 38%) в настоящее время находится внутри объекта «Укрытие». В [18] дана оценка накопления радиоуглерода в активной зоне реактора 4-го блока ЧАЭС перед аварией, составляющая 100 ТБк. В работе [19] приводится оценка скорости наработки  $^{14}\text{C}$  для реакторов РБМК-1000, используемых на ЧАЭС, равная 33000 ГБк/ГВт(э) год. Исходя из этого значения, при среднем по зоне выгорания, равном 10.9 МВт сут/кг (U) и периоде кампании реактора 570 суток оценка накопления  $^{14}\text{C}$  составляет 187 ТБк. Указанные два значения рассматриваются в данной работе как нижняя и верхняя оценки суммарной активности радиоуглерода в реакторе 4-го блока ЧАЭС. Соответственно, диапазон оценок активности для той части углерода, которая находится в разрушенном реакторе, составляет от 38 до 71 ТБк. Используя полученную при решении обратной задачи атмосферного переноса оценку вклада газообразной компоненты радиоуглерода,

составляющую 50 ТБк, получим, что на долю аэрозольной компоненты аварийного выброса  $^{14}\text{C}$  приходится от 12 до 66 ТБк.

## АЭРОЗОЛЬНАЯ СОСТАВЛЯЮЩАЯ РАДИОУГЛЕРОДНОГО ВЫБРОСА

### Предварительная оценка чувствительности методов измерения содержания графита в отобранных образцах

В настоящее время радиоуглерод аварийного происхождения в аэрозольной форме (мелкодиспергированные частицы графита) практически полностью сосредоточен в лесной подстилке на поверхности грунта

Для оценки информативности лесной подстилки для определения графита мы испытали несколько методов, которые отличались эффективностью использования углерода анализируемой пробы (коэффициентом). Для отображения полученной чувствительности в единицах массы графита мы используем имеющуюся нижнюю оценку удельной активности графита 4-го энергоблока ЧАЭС, равную  $2.5 \cdot 10^7$  Бк  $\text{кг}^{-1}$ , и массы кладки графита реактора 1850 тонн [20]. Для предварительных оценок чувствительности методов подготовки проб предполагалось, что выброс в форме графита составлял 25% от массы кладки, а вся масса, выброшенная из реактора, симметрично распределена вокруг и определяется интегралом:

$$M_0(R) = 2\pi \int_0^R \sigma(r) r dr \quad (1.)$$

Где,  $r$  – расстояние от источника выброса;

$R$  – радиус локализации загрязнения;

$\sigma(r)$  – плотность поверхностного загрязнения.

Далее рассматривались варианты, когда плотность выпадения графита выражается зависимостью от расстояния до источника в виде  $\sigma = \sigma(1/r^3)$  или  $\sigma = \sigma(1/r^4)$ . Считая, что при этом 95% выброса графита распределено на территории ограниченной радиусом 30 км, получим следующий вид зависимости  $\sigma$  от расстояния до ЧАЭС (Рис. 4). Принимая во внимание то, что отбор образцов проводится с площадки 50 x 50 см ( $S=2500 \text{ см}^2$ ), считаем, что масса соответствующего образца подстилки составляет 500 г. Рассматриваем совместно скорости счета радиоуглерода пробы СРМ (имп.мин $^{-1}$ ), обусловленные выпадением графита и материала лесной подстилки для двух вариантов подготовки образцов: метода обугливания и метода вакуумного пиролиза [21] согласно формулам (2) и (3) соответственно:

$$\text{CPM}_{\text{гр.}} = M_{\text{подст.}} \cdot A_{\text{у.гр.}} \cdot \sigma / M_{\text{S}} \cdot (S/S_0) \cdot E_{\text{гр.}} \cdot E \cdot 60; \quad (2.)$$

и

$$\text{CPM}_{\text{подст.}} = M_{\text{подст.}} \cdot A_{\text{подст.}} \cdot E_{\text{подст.}} \cdot E \cdot 60; \quad (3.)$$

где,  $A_{\text{у.гр.}} = 2.5 \cdot 10^4 \text{ Бк г}^{-1}$

$M_{\text{подст.}} = 8$  или  $40$  грамм (два метода подготовки образцов);

$\sigma$  - плотность выпадения графита ( $\text{г м}^{-2}$ )

$M_{\text{S}}$  - масса пробы лесной подстилки;

$S/S_0 = 0.25$  - относительная доля площади пробоотбора;

$E_{\text{гр.}} = 0.8$  (выход бензола из графита);

$A_{\text{подст.}} = 0.5 \cdot 0.92 \cdot 0.227 \text{ Бк г}^{-1}$ ; (сомножители: 0.5 доля углерода в массе подстилки, 0.92 - доля углерода в бензоле и  $0.227 \text{ Бк г}^{-1}$  удельная активность современного углерода);

$E_{\text{подст.}} = 0.45$  или  $0.12$  (выход бензола из подстилки - два метода подготовки образцов);

$E = 0.8$  (эффективность регистрации радиоуглерода в пробах).

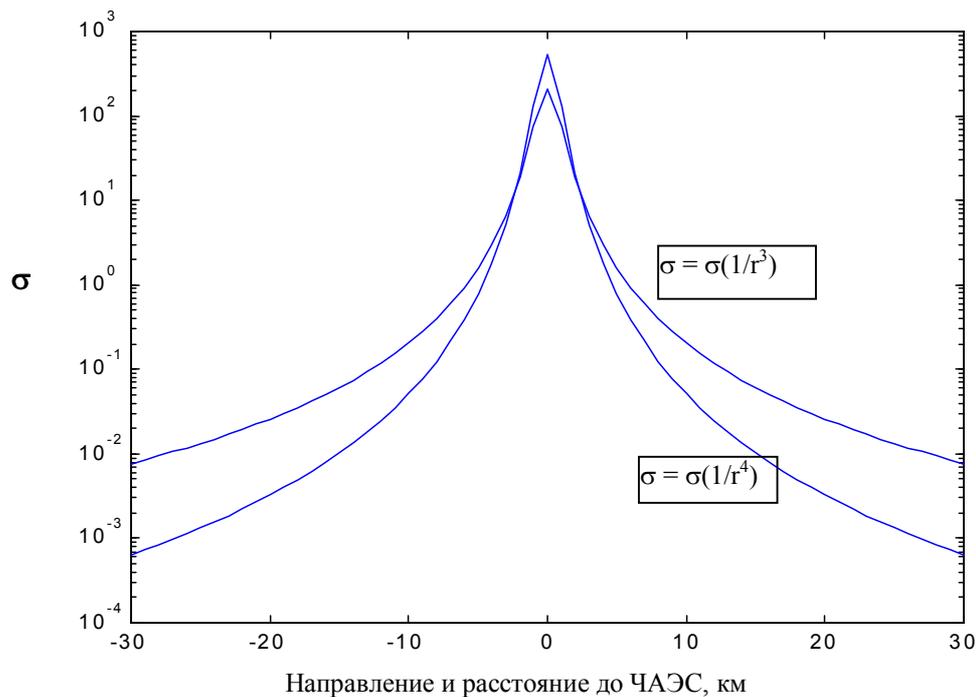


Рисунок 4. Модельная зависимость плотности выпадения графита  $\sigma$  ( $\text{г м}^{-2}$ ) от расстояния для симметричного распределения.

Полученные значения скоростей счета для характерных вариантов подготовки проб приведены в таблице 2. Из приведенных данных следует, что более чувствительным есть

метод на основе обугливания: при этом чувствительности достаточно для работы с образцами, для которых  $\sigma$  находится в интервале не ниже  $10^{-2} \div n \cdot 10^{-4}$  г м<sup>-2</sup>, тогда как для метода на основе вакуумного пиролиза интервал  $\sigma$  не ниже  $10^{-2} \div n \cdot 10^{-3}$  г м<sup>-2</sup>. Итак, метод подготовки образцов на основе обугливания является более чувствительным и позволяет охватить всю 30-км зону независимо от рассматриваемых вариантов функционального вида зависимости плотности выпадения от расстояния (См. Рисунок 4 для  $\sigma = \sigma(1/r^4)$  и  $\sigma = \sigma(1/r^3)$ ). Однако ввиду того, что он имеет существенный недостаток - большую неопределенность относительно химического выхода бензола, что дает дополнительное расхождение результатов, в данных исследованиях был использован метод вакуумного пиролиза. Так, для более пессимистического случая (зависимость  $\sigma = \sigma(1/r^4)$ ) чувствительность метода "позволяет" гарантированно проводить измерения активности графита в образцах на расстоянии до 10 км от ЧАЭС.

Таблица 2. Характерные значения скорости счета (имп. мин.<sup>-1</sup>) радиоуглерода в пробе подстилки и графита для вариантов подготовки проб

$\sigma$ , г м <sup>-2</sup>	Обугливание			Вакуумный пиролиз		
	Графит	Подстилка	Соотн.	Графит	Подстилка	Соотн.
$10^{-2}$	240	28.8	8.33	48	21.6	2.22
$10^{-3}$	24	28.8	0.83	4.8	21.6	0.22
$10^{-4}$	2.4	28.8	0.083	0.48	21.6	0.02

### Содержание аэрозольной составляющей радиоуглерода в лесной подстилке

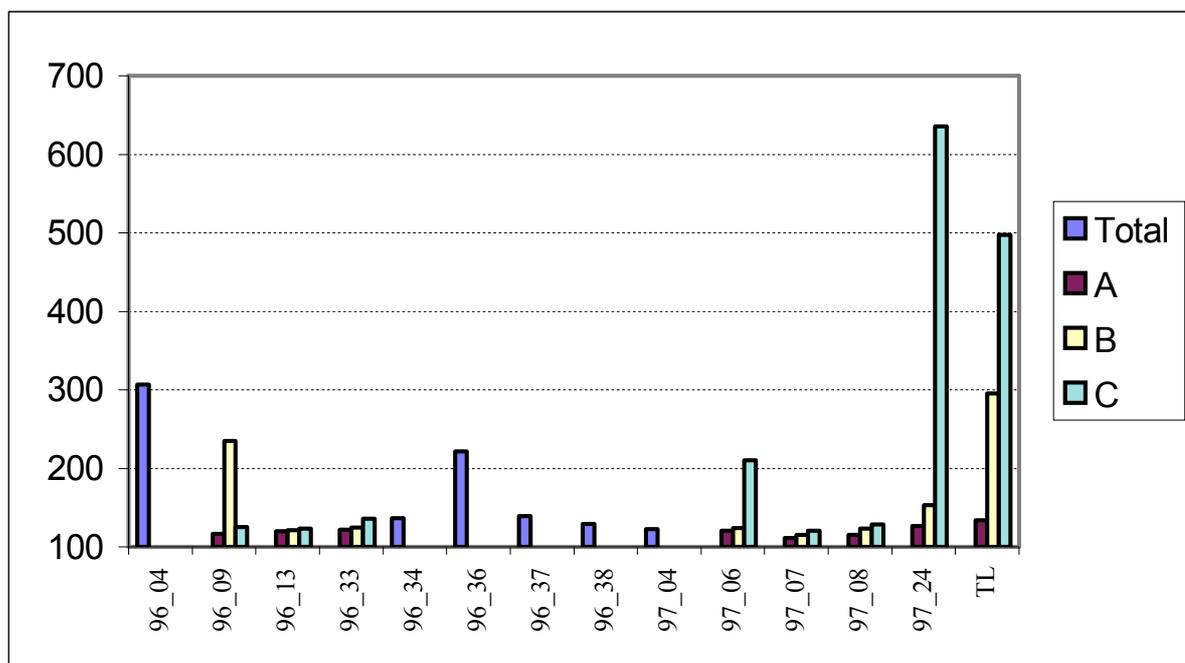


Рисунок 5. Удельная активность  $^{14}\text{C}$  (pMC) в образцах лесной подстилки (слои: А, В, С и Total – усредненные образцы, см. по тексту)

Для определения избыточной компоненты радиоуглерода отбор образцов лесной подстилки проводился на площадке размером  $50 \times 50$  см ( $2500 \text{ см}^2$ ). Отбор трех слоев, в соответствии с морфологическим делением, включал: А-верхний - свежий опад, В-средний - без структурных изменений и С-нижний (граничащий с верхним слоем почвы) - полуразложившийся. Мы предполагали, что графит сосредоточен в нижнем слое, при том, что два других составляют для него относительный фоновый уровень. Условности деления слоев подстилки, а также неопределенности местоположения графита побудили нас к отбору проб почвы для проведения последующих анализов. Пробы почвы отбирались на глубину 5 см на площадке, где была отобрана подстилка с помощью пробоотборника размером  $15 \times 25$  см. Исследования показали (См. таблицу 3 и рисунок 2), что удельная активность образцов выше фоновой и достаточно контрастна, хотя установить точно величину превышения для них невозможно. Так разница между удельной активностью образцов по слоям подстилки для пункта TL (рисунок 5) значительная: 135, 275, 380 pMC<sup>2</sup> для слоев А, В, С соответственно, причем, исходя из нашей терминологии, слой А и В загрязнены.

<sup>2</sup>pMC – относительная единица, соответствующая одному проценту удельной деятельности современного углерода, 100 pMC соответствует  $227 \text{ Бк} \cdot \text{кг}^{-1}\text{C}$

Кроме того, видно, что для образцов 97/24 и TL удельная активность слоя В выше ожидаемой. Данные для образца 96/09 указывают на то, что возможен и такой вариант, когда избыточный  $^{14}\text{C}$  практически весь находится в слое В. Мы также видим, что для части образцов для пунктов ближней зоны (расстояние от ЧАЭС 5-8 км) не удается зафиксировать заметный избыточный уровень  $^{14}\text{C}$  (практически одинаково невысокая удельная активность  $^{14}\text{C}$  всех слоев подстилки), что может свидетельствовать об одном из двух: или эти места попали под дезактивацию и подстилка с графитом была собрана вскоре после аварии, или графит за это время проник в верхний слой почвы. Во всяком случае, анализы почвы (прежде всего слоя 0-5 см) и повторные отборы образцов позволят сузить круг гипотез. Принимая во внимание то, что существует ряд природных и техногенных факторов, которые могут привести к перемешиванию слоев лесной подстилки и почвы, а также механического и биологического (микроорганизмами) разрушения графита, мы понимаем, что детальный анализ результатов еще впереди. Разрушение графита, в свою очередь, со временем может привести к изменению скорости обмена между рассмотренными слоями. Без учета факторов, которые обуславливают перенос и судьбу графита в окружающей среде, невозможно использование лесной подстилки как инструмента для восстановления начальной картины выпадений.

Таблица.3. Баланс  $^{14}\text{C}$  и графита в лесной подстилке по пунктам отбора образцов

Код точки отбора	Расстояние до ЧАЭС, км	Кол. слоев	Масса образца, гр	Масса углерода, гр.	Активность $^{14}\text{C}$ (Бк)	Фон, $^{14}\text{C}$ (Бк)	Избыточная активность, $^{14}\text{C}$	Плотность выпадения $^{14}\text{C}$ (Бк·кг <sup>-1</sup> ·с)	Код точки отбора	Расстояние до ЧАЭС, км	Кол. слоев	Масса образца, гр	Масса углерода, гр.	Активность $^{14}\text{C}$ (Бк)	Фон, $^{14}\text{C}$ (Бк)	Избыточная активность, $^{14}\text{C}$	Плотность выпадения $^{14}\text{C}$
9727	8.98	1	900	149	368	39.3	328	52.61	9609	5.56	3	570	68.0	21.9	17.9	4.0	0.64
9604	1.89	1	215	32.4	28.4	8.5	19.8	21.14	9722	13.35	1	1300	130	38.2	34.4	3.8	0.60
9724	4.85	3	926	223	174	58.8	115	18.50	9623	22.67	1	480	57.8	18.6	15.2	3.4	0.54
9628	13.52	1	440	81.1	87.2	21.4	65.8	10.53	9633	2.73	3	485	93.3	27.3	24.6	2.7	0.43
9720	14.67	1	1005	200	107	52.8	54.3	8.68	9706	2.95	3	709	72.4	21.5	19.1	2.4	0.39
9636	1.87	3	1440	364	120	96.0	24.9	3.98	9634	1.73	1	42	7.6	2.3	2.0	0.3	0.36
9602	5.78	3	828	176	60.3	46.6	13.8	2.20	9708	11.73	3	600	110	30.7	29.1	1.6	0.26
9613	2.31	3	697	150	49.8	39.5	10.3	1.64	9624	17.45	1	380	57.4	16.3	15.1	1.1	0.18
9638	6.89	1	570	126	39.9	33.2	6.7	1.07	9610	7.24	1	330	42.1	12.1	11.1	1.0	0.16
9726	12.47	1	450	94.6	29.7	24.9	4.8	0.77	9618	9.15	1	445	95.1	26.0	25.0	1.0	0.16
9617	3.63	3	585	126	38.0	33.4	4.7	0.74	9721	9.62	1	345	74.7	20.6	19.7	0.9	0.15
9723	3.68	1	270	60.5	20.0	15.9	4.1	0.65	9625	17.27	1	600	105	28.6	27.8	0.8	0.12

*Примечание: Здесь используется оценка удельной активности графита  $2.5 \cdot 10^7$  Бк·кг<sup>-1</sup>·с*

## ВЫВОДЫ

- Практическое использование радиоуглеродного метода для ретроспективного восстановления аварийных выбросов радиоактивности является перспективным благодаря его широкому развитию и достаточно высокой его чувствительности.
- Оценка суммарного выброса газообразного  $^{14}\text{C}$  за период аварии на ЧАЭС, полученная по данным измерений и математического моделирования составляет 50 ТБк.
- Показано, что сочетание результатов натуральных измерений содержания радиоуглерода аварийного происхождения в древесине 1986 года в деревьях в ближней зоне ЧАЭС с методом математического моделирования атмосферного переноса может служить материалом для реконструкции динамики радиоактивного загрязнения воздуха в начальный период аварии высоколетучими радиологически опасными радионуклидами, прямые данные измерений которых отсутствуют.
- Экспериментальные данные распределения  $\Delta^{14}\text{C}$ , усвоенного в годовых кольцах деревьев, дают достаточно подробное описание накопления газообразного  $^{14}\text{C}$  аварийного выброса в ближней зоне ЧАЭС - источника выброса, и могут служить материалом для реконструкции динамики радиоактивного загрязнения воздуха в начальный период аварии высоколетучими радиологически опасными радионуклидами, прямые данные измерения которых отсутствуют.
- Распределение графита между слоями лесной подстилки и почвы, полученное для каждого пункта отбора образцов, кроме точного определения величины удельного выпадения графита указывает на дальнейшую судьбу графита аварийного выброса ЧАЭС.
- Изучение действия разнообразных факторов природного происхождения и тех, которые являются проявлением жизнедеятельности человека, могут открыть особенности фиксации, переноса и дальнейшей судьбы графита аварийного происхождения в окружающей среде, так же, как и детального обоснования возможности использования лесной подстилки для реконструкции аэрозольного переноса радиоактивности аварийного происхождения.
- С целью уточнения баланса  $^{14}\text{C}$  аварийного происхождения следует охватить радиоуглеродными исследованиями верхние слои почвы.
- Графит аварийного реактора ЧАЭС, который был выброшен в форме пыли, может использоваться как маркер при ретроспективном восстановлении закономерностей аварийного переноса и распределения аэрозолей в окружающей среде. Максимальное значение плотности его выпадений обнаруженное по исследованиям лесной подстилки составляет  $52.6 \cdot 10^{-3} \text{ г} \cdot \text{м}^{-2}$  на расстоянии около 9 км от ЧАЭС.

АКАДЕМИЯ МЕДИЦИНСКИХ НАУК  
НАУЧНЫЙ ЦЕНТР РАДИАЦИОННОЙ МЕДИЦИНЫ

Сборник "Методы жидкостно-сцинтилляционного счета в радиоэкологии", 1999. Вып.3.

Деп. в ГНТБ Украины

ШТАТНІ ВИКИДИ РАДІОВУГЛЕЦЮ ЧОРНОБИЛЬСЬКОЇ АЕС.

Бузинний М.Г., Талерко М.М.

Науковий центр радіаційної медицини АМН України

254050, Україна, Київ, вул. Мельникова, 53, E-mail: [Buzinny@BigFoot.com](mailto:Buzinny@BigFoot.com)

**Реферат.** Проведене визначення рівнів штатних викидів радіовуглецю Чорнобильської АЕС на основі методу визначення його вмісту в річних кільцях дерева (сосни) за час роботи ЧАЕС. Мова йде про викиди в формі  $\text{CO}_2$ . Визначення надлишкового  $^{14}\text{C}$  проводилось за традиційним методом - синтезу бензолу та рідинного сцинтиляційного лічення зразків. На основі одержаних даних проведені інтегральні оцінки штатних викидів  $^{14}\text{C}$  за допомогою стандартної гаусової моделі атмосферного переносу на основі даних про "розу вітрів" в районі ЧАЕС. Інтервал коливання величини штатних викидів ЧАЕС складає від декількох одиниць до 90 Кі на рік. Оцінка сумарного викиду за час роботи станції (по 1996 рік включно) склала 563 Кі. Проведено порівняння штатних викидів з рівнями газових аварійних викидів ЧАЕС та штатними викидами Запорізької АЕС.

**ВСТУП**

В наших попередніх дослідженнях ми розглядали аварійні викиди газоподібного  $^{14}\text{C}$  ( $\text{CO}_2$ ) та проблеми відповідного переносу [22, 23, 24, 25, 26, 27]. Для розуміння особливостей переносу та розподілу в навколишньому середовищі  $^{14}\text{C}$  аварійного походження вкрай необхідним є дослідження фонових рівнів - рівнів штатних викидів  $^{14}\text{C}$ . Займаючись розв'язанням ретроспективної задачі, ми вважаємо доцільним визначення рівня штатних викидів  $^{14}\text{C}$ , оскільки вплив аварійних ми розглядаємо на фоні штатних викидів. З цією метою ми досліджуємо річні кільця дерев за весь час роботи ЧАЕС, тобто з 1978 р. Слід зауважити, що річні кільця дерев несуть інформацію про інтегральний вплив штатних викидів, усереднений за вегетаційний період дерев. На відміну від аварійних викидів, які зумовлені  $^{14}\text{C}$ , що був "напрацьованим" в графіті, штатні викиди  $^{14}\text{C}$  зумовлені радіовуглецем, що був "напрацьованим" за рядом інших реакцій в повітрі та деяких інших середовищах енергоблоку і виходив у навколишнє середовище відразу з газовими викидами.

## ВИМІРЮВАННЯ ВМІСТУ $^{14}\text{C}$ В ДЕРЕВИНІ

Для підготовки зразків до визначення вмісту  $^{14}\text{C}$  використані сучасні методи, що описані в літературі та ті, що застосовувались нами раніше. Лічильна форма (зразок, що вимірюється) готувалась у вигляді бензолу. Зразки деревини сосни розділялись на річні кільця. Бензол був синтезований з целюлози, очищеної від органічних домішок. Екстракція органічних речовин із зразків деревини проводилась в апараті Сокслета в спиртово - бензольній суміші в співвідношенні (2:1) протягом 24 годин. Вимірювання проводились на низько фоновому рідинному - сцинтиляційному спектрометрі Quantulus 1220<sup>TM</sup> фірми Wallac, Фінляндія. Розрахунки питомої активності зразків виконані з урахуванням ступеню розбавлення зразків та з корекцією ізотопного фракціонування. Абсолютне калібрування приладу виконана на основі стандарту, що містить 5-кратну відносно сучасного рівня концентрацію  $^{14}\text{C}$  (500% Modern). Крива «гасіння» знята в стандартних алюміній -тефлонових віалах на органічному стандарті (C-14-O) активністю 100000 DPM. Місця відбору зразків для визначення штатних викидів радіовуглецю показано на рисунку 1. Для кращого уявлення про місця, де були відібрані зразки для досліджень штатних викидів на рисунку 2 приводимо картину просторового розподілу надлишкового  $^{14}\text{C}$  аварійного походження.

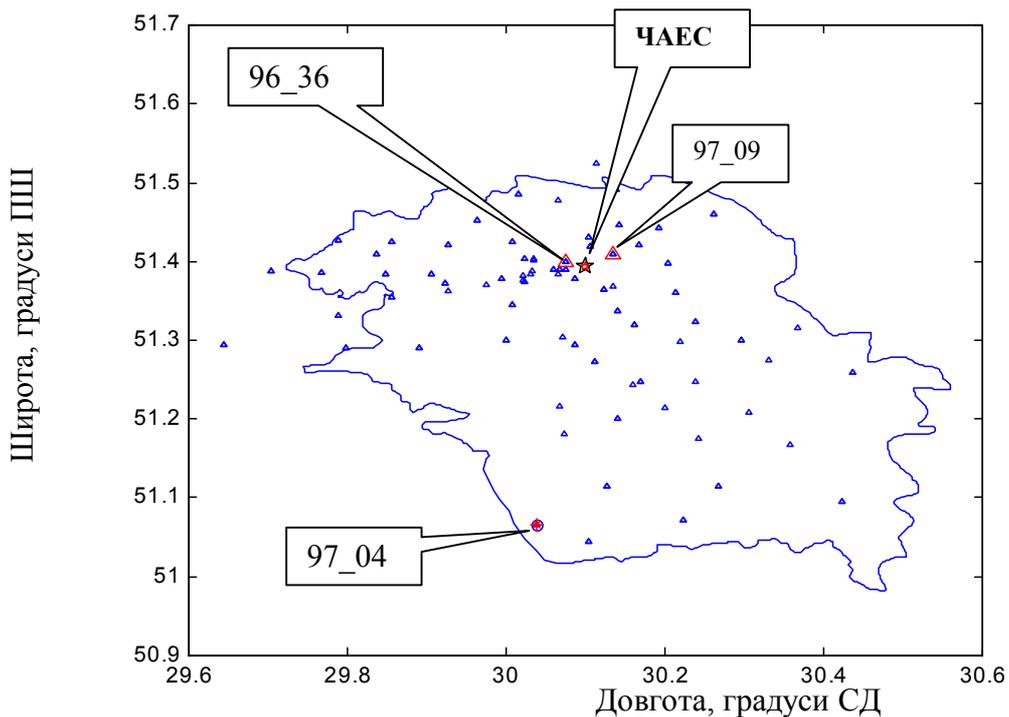
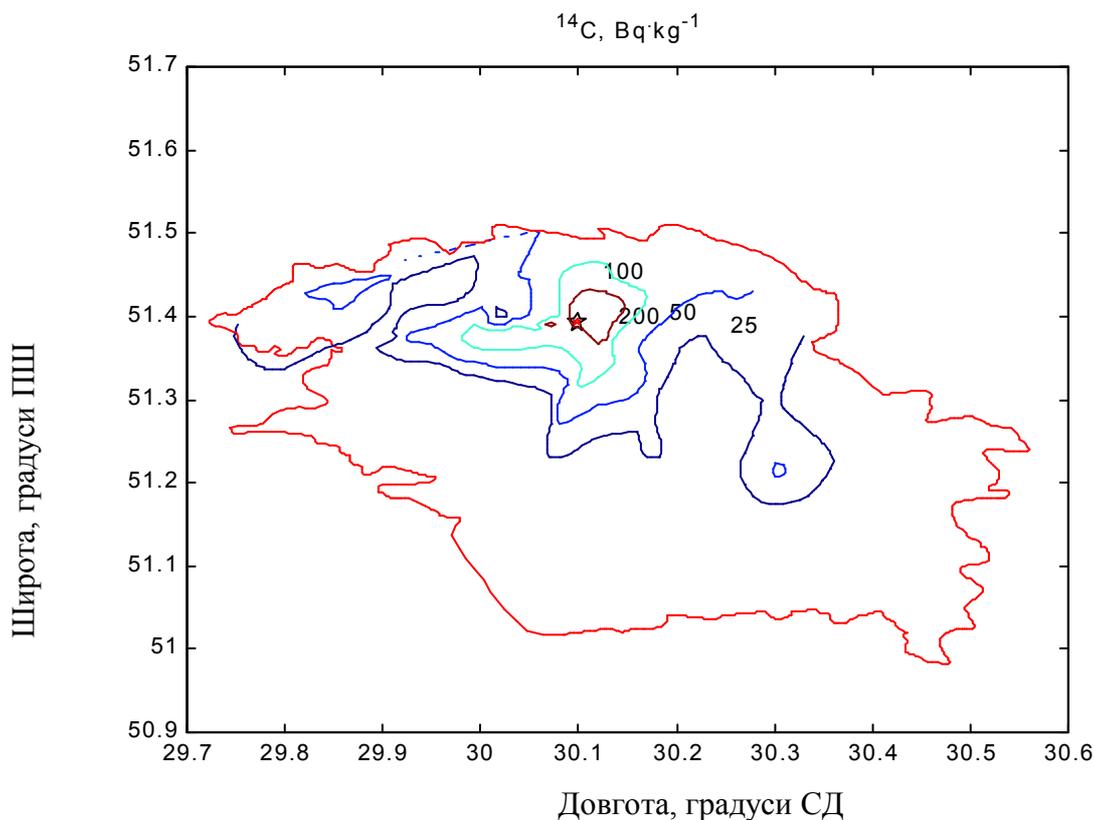


Рисунок 1. Схема відбору зразків дерев навколо ЧАЕС, лінія показує границі колишнього Чорнобильського району. Окремо відзначено місця відбору зразків, які були використані для визначення рівня штатних викидів  $^{14}\text{C}$ .

Таблиця 1. Координати місць відбору зразків деревини

Проба	°	'	"	°	'	"	Пункт
97_04	30	2	20	51	3	58	Фоновий
97_09	30	8	5	51	24	35	Біля мосту
96_36	30	4	30	51	24	0	Нафтобаза
94_01 <sup>3</sup>							м. Тараща, Київської обл.

Рисунок 2. Схема просторового розподілу надлишкового  $\Delta^{14}\text{C}$  аварійного походження в річних кільцях дерев навколо Чорнобильської АЕС, ізолінії ( $\text{Bq kg}^{-1}\text{C}$ ).

### РОЗРАХУНКИ ВЕЛИЧИНИ ШТАТНИХ ВИКИДІВ РАДІОВУГЛЕЦЮ З ЧАЕС НА ОСНОВІ РІШЕННЯ ЗВОРотної ЗАДАЧІ АТМОСФЕРНОГО ПЕРЕНОСУ

Рівні надлишкового радіовуглецю, накопиченого в річних кільцях деревини використовувались для оцінки сумарних за рік викидів  $^{14}\text{C}$  при роботі Чорнобильської АЕС. З цією метою були проведені розрахунки розповсюдження газового викиду в межах ближньої зони станції за допомогою стандартної гаусової моделі атмосферного переносу [28]. Вхідна метеорологічна інформація для моделі - стандартні дані спостережень на метеостанції, по яким визначалась швидкість і напрямок приземного вітру та клас

<sup>3</sup> Координати точки відбору не визначались

стійкості нижнього шару атмосфери за Пасквіллом. Для розрахунків розповсюдження викидів ЧАЕС були використані дані спостережень метеорологічної станції Держкомгідромету України, розміщеної в м. Чорнобиль, за період з 1988 по 1995 рр. За вказаний період для кожного терміну спостережень (8 вимірювань протягом кожної доби) була оцінена величина категорії стійкості атмосфери по значенню вимірної швидкості вітру та якісної оцінки інсоляції в денний час і хмарності в нічний період. На основі таких оцінок і даних спостережень були розраховані значення трьохвимірної матриці повторюваності метеорологічних ситуацій  $\square_{ijk}$ , де  $i$  – номер категорії швидкості вітру,  $j$  – номер категорії напрямку вітру,  $k$  – номер категорії стійкості атмосфери.

Згідно до моделі, середньорічна концентрація домішки  $c$  (Бк м<sup>-3</sup>) для стаціонарного висотного джерела з інтенсивністю  $Q$  (Бк сек<sup>-1</sup>) визначається за формулою

$$c(x, y, z) = \frac{Q}{\sqrt{2\pi}\Theta} \sum \frac{\omega_{ijk}}{\sigma_{z,k} u_i} \left\{ \exp\left[-\frac{(z-h)^2}{2\sigma_{z,r}^2}\right] + \exp\left[-\frac{(z+h)^2}{2\sigma_{z,r}^2}\right] \right\}, \quad (4.)$$

де,  $x, y, z$  - координати точки в просторі,

$\square_{ijk}$  - трьох вимірна матриця повторюваності метеорологічної ситуації,

$u_i$  - значення швидкості вітру (м·сек<sup>-1</sup>),

$$\Theta = \frac{2\pi}{n},$$

$n$  - кількість азимутальних секторів, що розглядаються в розрахунках напрямків вітру,

$h$  - ефективна висота викиду (м), значення якої в даних розрахунках приймалось рівним 120 м,

$\square_x \square_z$  - горизонтальна і вертикальна дисперсії координат частинок домішки (м).

За наявними даними вимірювань концентрації надлишкового <sup>14</sup>C в деревині 30-кілометрової зони Чорнобильської АЕС, зумовленої викидами із працюючих енергоблоків станції, була проведена оцінка сумарних за рік штатних викидів радіовуглецю. З цією метою за допомогою викладеної моделі була розв'язана зворотна задача атмосферного переносу домішки від висотного точкового джерела. Розрахунки проводились для однієї просторової точки за номером 97\_09, розміщеної в північно-східному напрямку від ЧАЕС ( $x=2,41$  км,  $y=2,01$  км в системі координат з джерелом в центрі). За даними вмісту <sup>14</sup>C в деревині (Табл.2) було оцінено значення середньорічної концентрації радіовуглецю в приземному шарі повітря в указаній точці для кожного року із наявного ряду вимірювань за період з 1980 по 1996 рр. Далі за формулою (1) були розраховані середньорічні концентрації домішок в повітрі для вказаної точки для умовного одиничного

стаціонарного джерела і по цим значенням відновлені значення динаміки середньорічного викиду  $^{14}\text{C}$  (табл. 2 та рисунок 6).

## РЕЗУЛЬТАТИ

На рисунку 3 наведені рівні питомої активності  $^{14}\text{C}$  в річних кільцях дерев (в процентах від сучасного рівня) для деревини проби 97\_09. Серед річних коливань відносно невеликого діапазону ясно вирізняється максимум, обумовлений аварійним викидом 1986 року. Більш наглядною залежність вмісту радіоцезію в річних кільцях дерев відібраних проб, обумовлена саме штатними викидами, показана на рисунку 4. За цими даними були обчислені рівні активності надлишкового  $^{14}\text{C}$  в річних кільцях деревини проби 97\_09 (Рис. 5). При аналізі результатів треба мати на увазі, що вміст радіовуглецю, обумовлений штатними викидами, які є фоном для аварійного викиду 1986 р., в свою чергу повинен порівнюватись з його природним рівнем в деревині. Тому для знаходження внеску штатних викидів обчислювалось перевищення концентрації вуглецю у даній пробі для кожного року над відповідним фоновим рівнем, за який приймалась концентрація  $^{14}\text{C}$  у деревині проб 94\_01 та 97\_04 що розташовані на відстанях 200 і 35 км, де впливом штатних викидів ЧАЕС можна знехтувати. Відповідні результати вимірювань надлишкової концентрації  $^{14}\text{C}$  та оцінки річних викидів  $^{14}\text{C}$ , отримані по цим даним за допомогою моделювання атмосферного переносу, наведені в табл. 2.

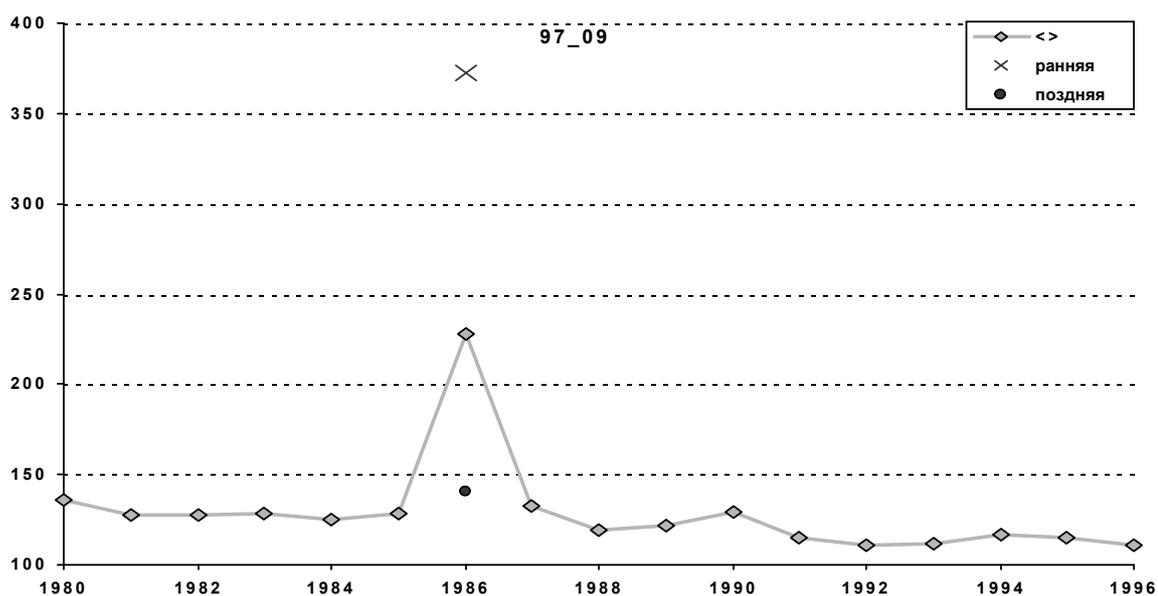


Рисунок 3. Рівні питомої активності  $^{14}\text{C}$  в річних кільцях дерев (проценти від сучасного рівня) для дерев ближньої зони ЧАЕС (проба 97\_09). Для деревини 1986 року проаналізовано окремо зразки ранньої та пізньої деревини.

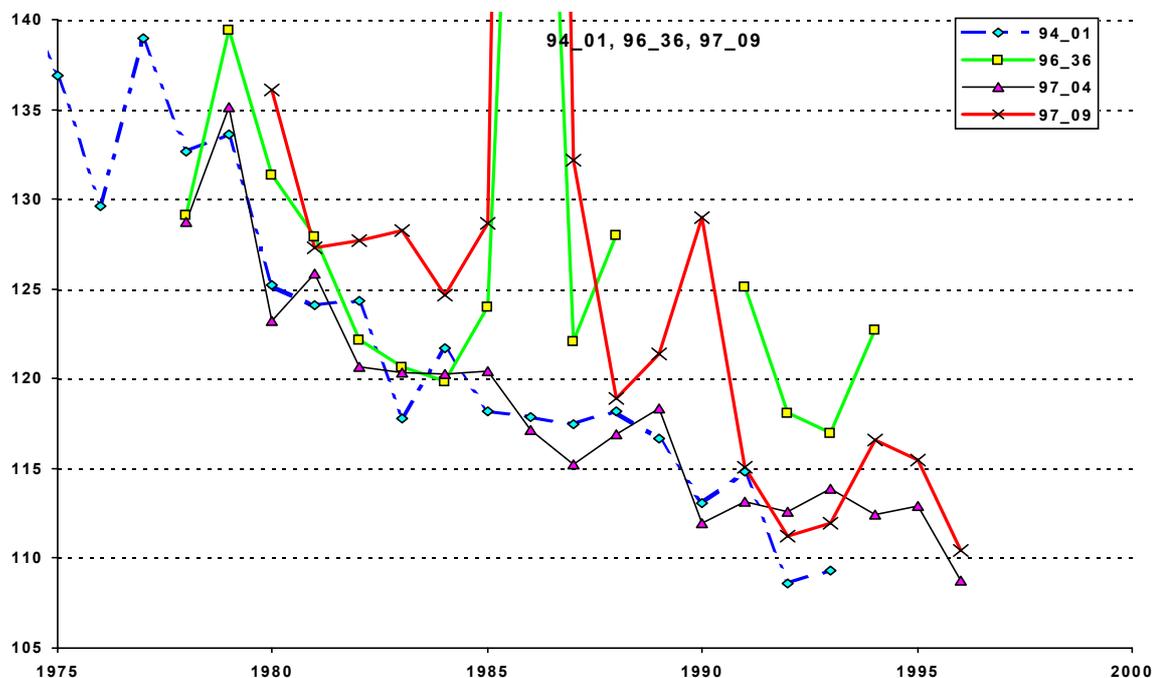


Рисунок 4. Рівні питомої активності  $^{14}\text{C}$  в річних кільцях дерев (проценти від сучасного рівня) для визначення штатних викидів: фонові - 94\_01, 97\_04 та дерев ближньої зони ЧАЕС-96\_36 та 97\_09. (Див. Рисунок 4 та таблицю 2). Використано масштаб, при якому в поле зору не попадають рівні аварійних викидів, та такий, що є зручним для розгляду саме штатних викидів.

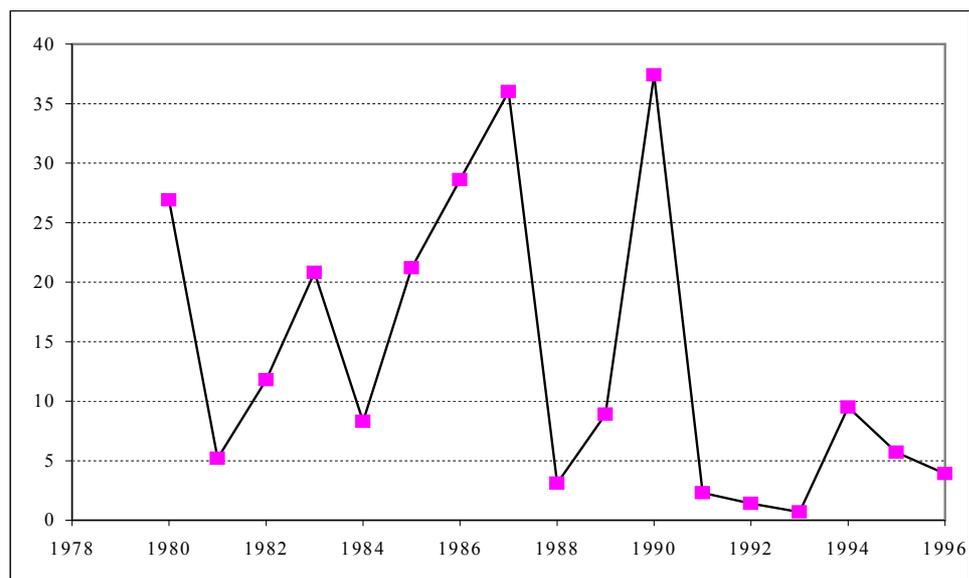


Рисунок 5. Рівні активності надлишкового  $^{14}\text{C}$  в річних кільцях дерев ( $\text{Bq kg}^{-1}$ ), що відповідають штатним викидам: для дерев ближньої зони ЧАЕС (проба 97\_09).

Таблиця 2. Рівні  $^{14}\text{C}$  в зразках річних кілець дерев (рМС) та відповідні рівні надлишкового  $^{14}\text{C}$  (Бк кг $^{-1}$ )

Рік	Рівні $^{14}\text{C}$ , Фон (рМС)	Рівні $^{14}\text{C}$ , 97_09 (рМС)	Концентрація $\Delta^{14}\text{C}$ в деревині зразка 97_09 (Бк кг $^{-1}$ С)	Оцінка викиду $^{14}\text{C}$ (Кі)
1980	124.2	136.1	26.9	65.3
1981	125.0	127.3	5.2	12.6
1982	122.5	127.7	11.8	28.5
1983	119.1	128.2	20.8	50.6
1984	121.0	124.7	8.3	20.2
1985	119.3	128.6	21.2	51.5
1986	117.5	259.0	28.6	69.5
1987	116.3	132.2	36.0	87.5
1988	117.5	118.9	3.1	7.5
1989	117.5	121.4	8.9	21.7
1990	112.5	129.0	37.4	90.9
1991	114.0	115.0	2.3	5.6
1992	110.6	111.2	1.4	3.5
1993	111.6	111.9	0.7	1.8
1994	112.4	116.6	9.5	23.0
1995	112.9	115.5	5.7	13.9
1996	108.7	110.5	3.9	9.5
			Всього	563

100 рМС=227 Бк кг $^{-1}$ С

Як видно з отриманих результатів, значення сумарних за рік штатних викидів радіовуглецю на Чорнобильській АЕС за період роботи станції коливається від декількох одиниць до декількох десятків кюрі за рік. Для порівняння вкажемо, що оцінка штатних викидів  $^{14}\text{C}$  із 5-ти блоків Запорізької АЕС, обладнаних реакторами ВВЕР-1000, отримана за прямими вимірами в вентиляційній трубі, складає 60 Кі [29]. Для газової компоненти викиду радіовуглецю, обумовленого аварією на ЧАЕС в 1986 р., оцінка викиду складає 1350 Кі [3]. Згідно одержаних результатів за період роботи Чорнобильської АЕС з 1980 по 1996 рр. Сумарний викид газоподібного  $^{14}\text{C}$  (без урахування аварії 1986 р.) склав 563 Кі.

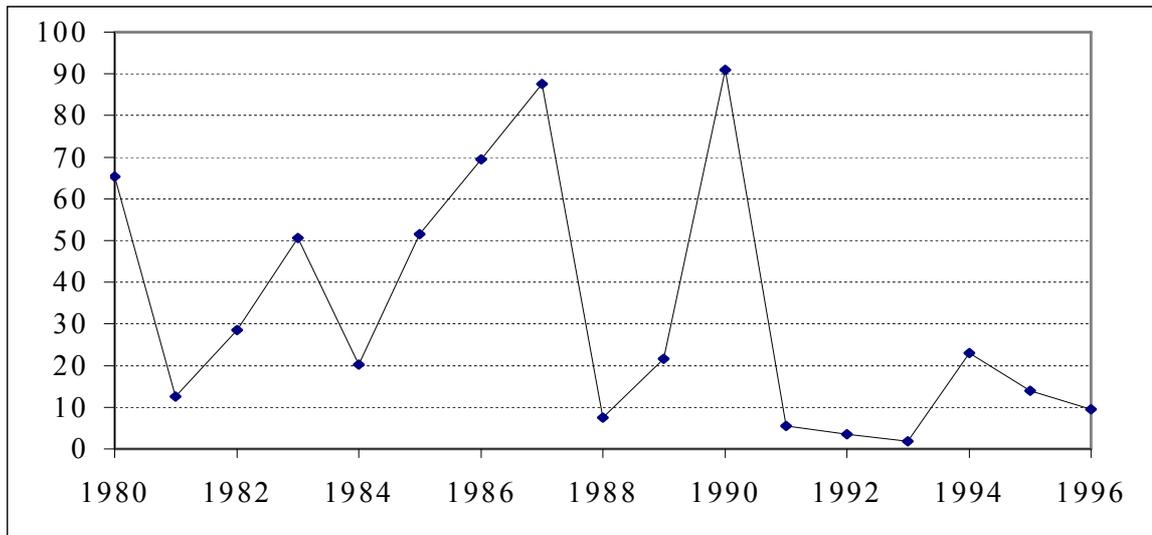


Рисунок 6. Оцінка штатних щорічних викидів  $^{14}\text{C}$  Чорнобильської АЕС (Кі рік $^{-1}$ ), обрахована за даними вимірювань надлишкової активності радіовуглецю в деревині (проба 97\_09) за допомогою моделі атмосферного переносу.

## ВИСНОВКИ

- Як видно за результатами проведених вимірювань, концентрація радіовуглецю у кожному з річних кілець проби, що досліджувалась, перевищує відповідні рівні для “фонових” проб (досить віддалених від ЧАЕС). Це свідчить про достатньо високу здатність методу вимірювань визначати вміст саме надлишкового радіовуглецю, обумовленого штатними викидами ЧАЕС.
- Коливання викидів радіовуглецю за нашими оцінками складають величину від декількох до дев'яносто одного кюрі за рік.
- Порівняння штатних викидів радіовуглецю з викидами Запорізької АЕС вказують на те, що вони складають величини одного порядку.
- Оцінка сумарного викиду за час роботи станції (по 1996 рік включно) склала 563 Кі.
- Виконана робота повинна розглядатися як попередня спроба проведення оцінок впливу штатних викидів на вміст радіовуглецю у деревині ближньої зони ЧАЕС. Для більш надійного визначення відповідних величин потрібне проведення відповідних вимірювань та розрахунків у більших обсягах.

АКАДЕМИЯ МЕДИЦИНСКИХ НАУК  
НАУЧНЫЙ ЦЕНТР РАДИАЦИОННОЙ МЕДИЦИНЫ

Сборник “Методы жидкостно-сцинтилляционного счета в радиоэкологии”, 1999. Вып.3.  
Деп. в ГНТБ Украины

ИЗМЕРЕНИЯ УДЕЛЬНОЙ АКТИВНОСТИ ТРИТИЯ МЕТОДОМ  
ЖИДКОСТНО-СЦИНТИЛЛЯЦИОННОГО СЧЕТА В ПРОБАХ ВОДЫ  
ПЕРЕВЕДЕННЫХ В БЕНЗОЛ.

Бузынный М.Г.

Научный центр радиационной медицины АМН Украины  
254050, Украина, Киев, ул. Мельникова, 53,

E-mail: [Buzinny@BigFoot.com](mailto:Buzinny@BigFoot.com), URL: <http://BigFoot.com/~Buzinny>

Реферат. Статья посвящена обоснованию выбора и описанию особенностей применения метода определения удельной активности трития в пробах воды на основе синтеза бензола и последующего жидкостно-сцинтилляционного счета. Описанные методы дают возможность проводить исследования удельной активности трития в воде в широком интервале ее величины, что составляет уровень выше  $1.5 \text{ Бк л}^{-1}$  при работе с водой и выше  $0.3 \text{ Бк л}^{-1}$  при работе бензольным методом. Применение бензольного метода для определения трития дает существенное улучшение параметра качества измерений (FOM) в 4-8 раз при использовании тефлоновой посуды. Прогрессивным есть применение барботирования образцов бензола аргоном, что обеспечивает очистку от радона снизить его уровень в 20-30 раз при незначительной потере массы образца  $<5\%$ . Для наиболее ответственных измерений следует использовать либо одноразовую посуду или для измерения образца и фона использовать ту-же посуду.

ВВЕДЕНИЕ.

При решении задач гидрогеологического мониторинга используют прежде всего тритий как маркер переноса водных масс. Тритий ( $T_{1/2}=12.35$  года) мягкий бета излучатель, который имеет граничную энергию 18 КэВ, имеет ограниченное число методов, которые могут применяться для его регистрации. Это, прежде всего, методы на основе газопотоочного и жидкостно-сцинтилляционного счета. С учетом того, что тритий в воде ведет себя аналогично с другими изотопами водорода наиболее удобно использовать именно воду для подготовки образцов ( $H_2O$ ). Низкие уровни удельной активности трития: десятые доли и единицы  $\text{Бк л}^{-1}$ , с которыми приходится иметь дело, в настоящее время, при решении гидрогеологических задач требуют применения современного сверхчувствительного оборудования и методов концентрирования активности –

электролиза и др. При необходимости измерения низких уровней часто приходится делать предварительное концентрирование трития методом электролитического обогащения. Наиболее часто используемым коэффициентом обогащения составляет 20-50 раз. При этом воспроизводимость точного значения коэффициента обогащения зависит от целого ряда технических параметров используемого оборудования, состава образца и часто желает лучшего. При работе с водой часто нужна многоступенчатая очистка - дистилляция образцов во избежание влияния других радиоактивных компонентов загрязненного образца. Оптимизация: качество анализа - его стоимость при измерениях низких уровней на современном оборудовании часто приводит к необходимости проводить измерения без изотопного обогащения исходя из условий требуемой достоверности [30].

Широкое применение методов электролитического обогащения не является абсолютно безальтернативным, тем более, что оно не застраховано от определенных недостатков. Определенной альтернативой, а в некоторых случаях дополнением в смысле интенсификации подготовки и проведения измерений образцов и повышения чувствительности анализа есть перевод образца в форму бензола и последующего жидкостно-сцинтилляционного счета. Ссылки на бензольный метод можно найти в литературе опубликованной достаточно давно [31], а последующая модификация открыла его применение для достаточно низких уровней удельной активности [32]. Современное видение проблемы измерений  $^3\text{H}$  и  $^{14}\text{C}$  в форме бензола и конкретные подходы детально описаны *Stan De Filippis* [33]. Критические замечания относительно современного электролитического обогащения образцов воды можно увидеть у *Stencel и др.* [34]. Проблемы воспроизводимости коэффициента электролитического обогащения образцов дискутирует *Michael P. Neary* в его недавней работе [30]. В виде замечания отметим еще один путь совершенствования методов определения трития - это собственно оптимизация метода измерения (конфигурирование спектрометра, которая позволяет оптимизировать фон и эффективность счета). Подсказку на этот путь предоставил *Claude Taylor* [35]. Реально оценивая такие возможности можно надеяться на относительное улучшение чувствительности на 30-60%.

#### Определение трития методом жидкостно-сцинтилляционного счета в пробах воды переведенных в форму бензола.

Известно, что эффективность регистрации трития, низкоэнергетического бета - излучателя, существенно выше в органическом образце. Альтернативой есть именно бензол ( $\text{C}_6\text{H}_6$ ). При этом, в отличие от ЖСС регистрации радиоуглерода, для которого

подготовка образцов включает такие процессы как синтез карбида (лития), синтез ацетилену, синтез бензола ( $Li + C > Li_2C + H_2O > LiOH + C_2H_2 > C_6H_6$ ), в случае реализации метода для измерений трития в технологии может использоваться готовый карбид, который изготавливается промышленно, а именно в том случае, когда его технические характеристики удовлетворяют соответствующим требованиям, а именно ( $Ca_2C + H_2O > Ca(OH)_2 + C_2H_2 > C_6H_6$ ). В этом случае из работы исключается блок высоко-температурного синтеза карбида ( $Li_2C$ ), а использование карбида кальция есть более надежным и его гидролиз проводится без избытка воды. Кроме затрат труда и относительной сложности процессов синтеза бензола, следует отметить как недостаток изотопное фракционирование (обеднение образцов), которое за данными литературы достигает 25% [31].

#### Посуда и сцинтилляторы.

Для измерений трития в форме воды используются пластиковые бутылочки (виали) и жидкие сцинтилляционные (ЖС) коктейли с высокой емкостью воды: *Optiphase Hisafe 3*. Далее для сравнения характеристик реализации метода на основе бензола приводим характеристики метода на основе измерений воды в *Optiphase Hisafe 3*, См. Таблица 1. Там же приводим характеристики, для измерений бензола, которые мы получили для ряда наличных виал: 0.8мл, 2.5мл, 3мл, 7мл и 20мл, а также так называемых V3 и V7 (масса образца для каждого типа виалы указана в таблице 1) изготовленных из тефлона.

#### Измерения образцов.

При измерении образцов применяем оптимизацию процесса измерения рекомендованную *Claude Taylor* [35]. Оптимизация сводится к тому, что устанавливается следующая конфигурация измерения: порог дискриминации низкий (L), компаратор амплитуды (РАС=256), компаратор длительности (PSA=15). Такая конфигурация приводит к тому, что происходит очень существенное подавление высокоэнергетического излучения в интересующем окне при незначительном ослаблении мягкого излучения (трития), что очень наглядно видно на спектрах калибровки, фона и контрастной пробы (См. Рисунок 1, Рисунок 2, Рисунок 3)

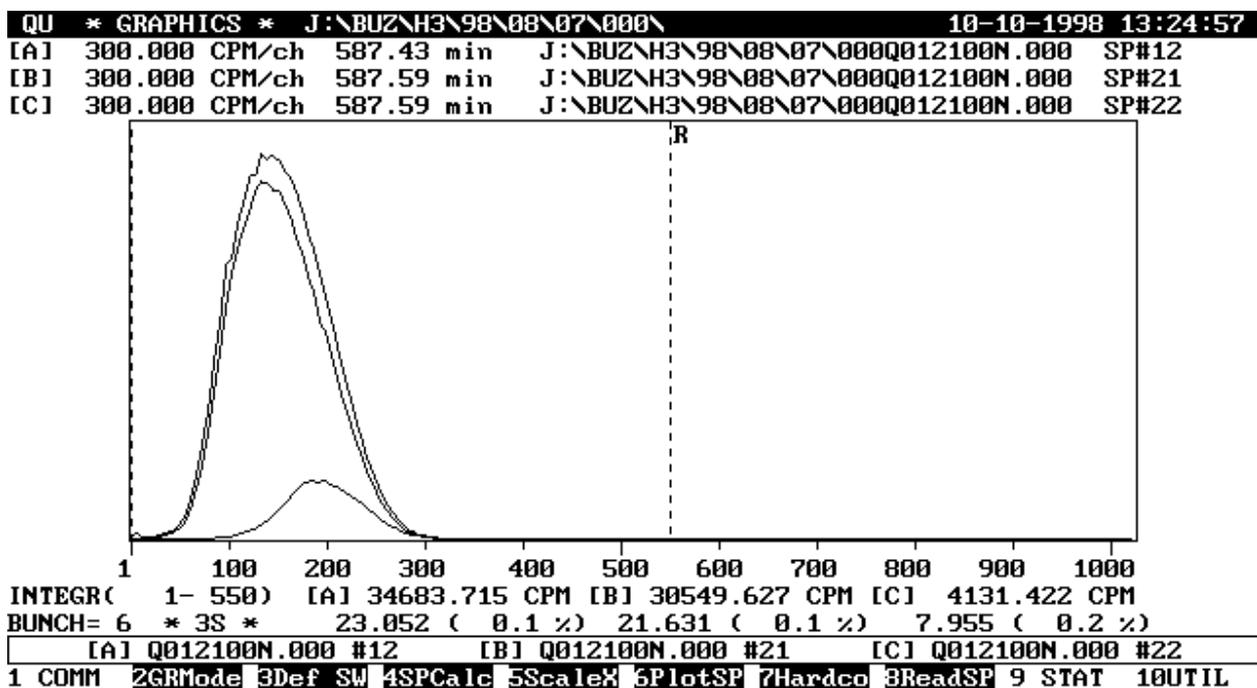


Рисунок 1. Спектры калибровочного образца (Оптимизация регистрации трития).

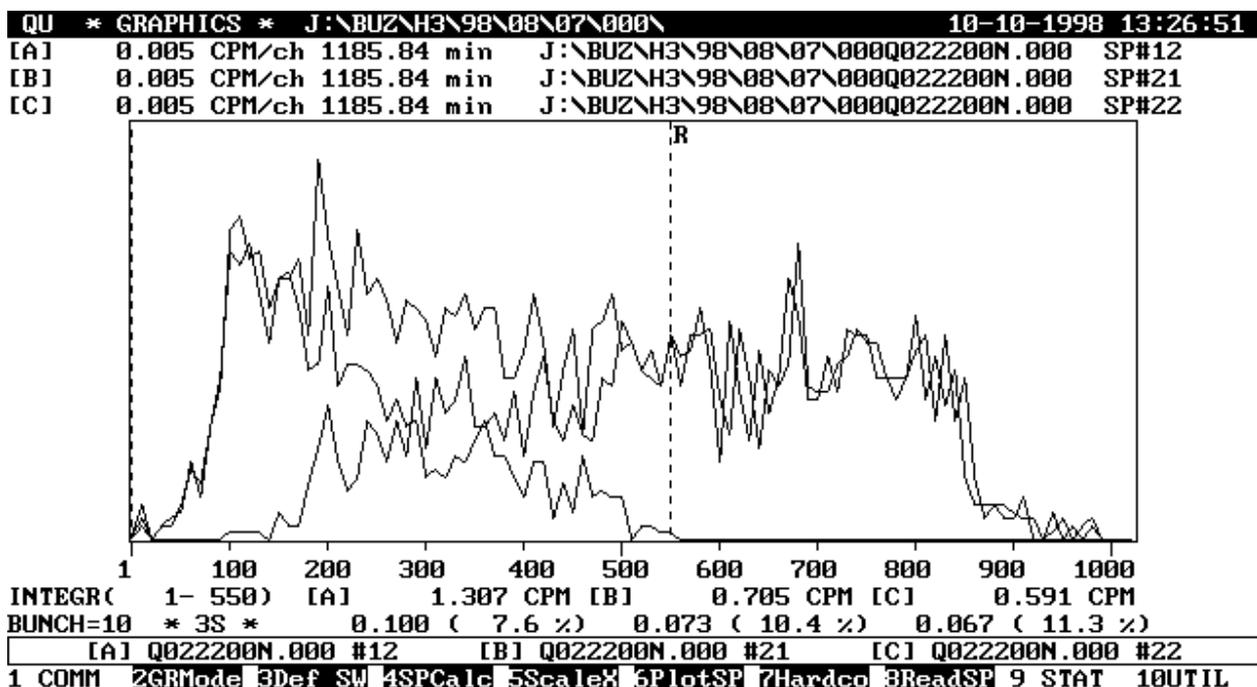


Рисунок 2. Спектры фонового образца (Оптимизация регистрации трития).

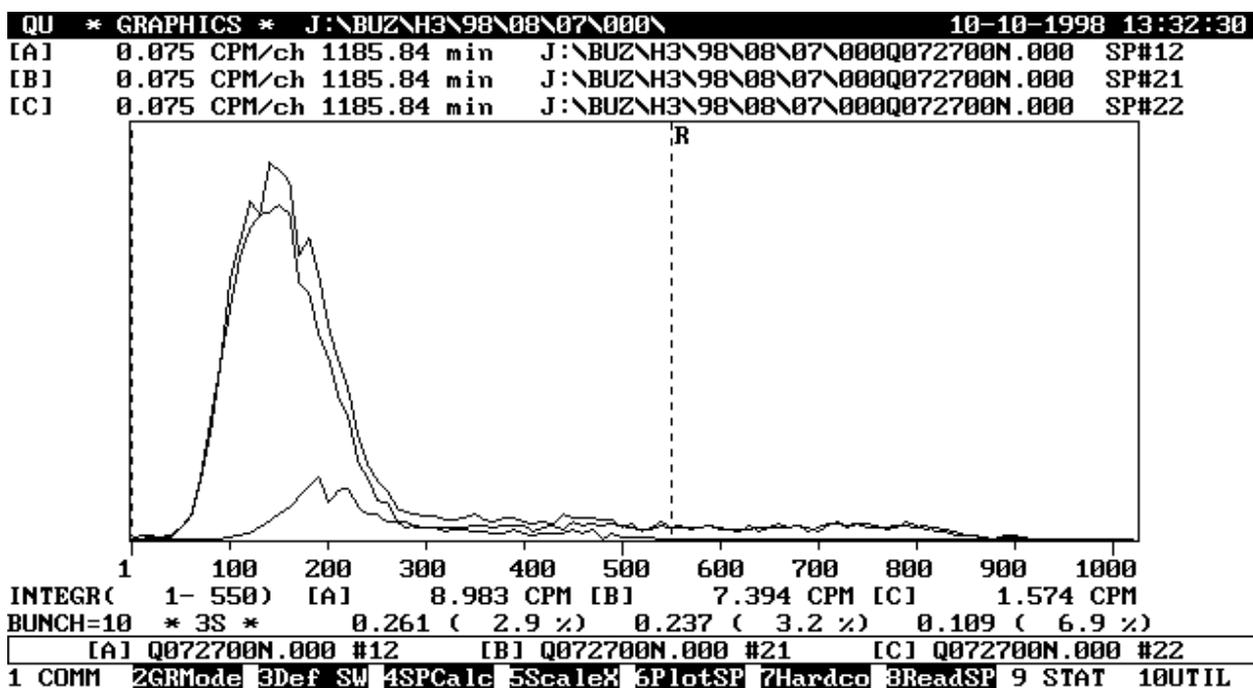


Рисунок 3. Спектры контрастного образца (Оптимизация регистрации трития).

#### Калибровка образцов.

Эффективность регистрации определяем по методу внутреннего стандарта, с применением соответствующих образцов: *H3-O* и *H3-W* производства *Wallac Oy*. Для определения величины изотопного эффекта проводим измерения образца воды и образца бензола, синтезированного из той-же воды. Показатель качества измерений (FOM - figure of merit) есть одной из наиболее важных характеристик качества измерений и по нему наиболее оптимальны виалы V3 и V7, однако поскольку нас интересуют более всего МДА для определения низких уровней трития то наиболее перспективным есть применение 20 мл виал, которые имеют максимальный объем образца (См. Таблица 1). Насколько существенна роль массы образца видно из зависимости МДА от времени измерения (См. Рисунок 4 и Рисунок 5). Мы видим, что чувствительность метода увеличивается почти на порядок при переходе между группами виал: 1) 3V, 3ml; 2) 7V, 7ml; 3) 20ml. При этом соотношение чувствительности змерений в различных виалах зависеть именно от их объема. Принципиальным есть то, что только 20ml виалы дают преимущество в чувствительности над методом, в котором проводится прямое измерение воды. Однако, из соображения решения других возможных задач по измерению трития в образцах, которые загрязнены другими радионуклидами, использование 7V и 7ml виал может быть целесообразно, в этом случае следует обратить внимание на удельную активность трития в образцах и сопоставлять ее с уровнем достижимой МДА (См. Рисунок 4 и Рисунок 5).

Таблица 1. Характеристики методов измерений трития.

Видла	Образец, Масса,г	<b>Кислород</b>	Водород	Соотношение	водорода	Эффектив-	ность,Е	Фон, имп.мин. <sup>-1</sup>	Показатель	качества, FOM	Эффективный	объем воды
	<u>Вода</u>	<b>O<sub>2</sub></b>										
<b>20ml</b>	8	7.11	0.89	1	0.197	0.75	517	8				
	<u>Бензол</u>	<b>C</b>										
<b>V3</b>	2.11	1.95	0.16	0.18	0.39	0.42	<b>3550</b>	0.39				
<b>3</b>	2.69	2.48	0.21	0.23	0.22	0.27	1731	0.63				
<b>V7</b>	5.2	4.8	0.4	0.45	0.40	0.40	<b>3916</b>	2.34				
<b>7</b>	6.3	5.82	0.48	0.55	0.34	0.45	2579	3.43				
<b>20</b>	15	13.85	1.15	1.30	0.37	0.86	1568	19.47				

Видла	Время измерен ия (мин)			Время измерен ия (мин)		
	500	1000	2500	500	1000	2500
		МДА	Бк л <sup>-1</sup>		МДА	Бк л <sup>-1</sup>
<b>20ml</b>	1.23	0.87	0.55	10.40	7.35	4.65
<b>V3</b>	53.34	37.72	23.86	451.46	319.23	201.90
<b>3</b>	36.87	26.07	16.49	312.02	220.63	139.54
<b>V7</b>	3.39	2.40	1.52	28.72	20.31	12.84
<b>7</b>	2.35	1.66	1.05	19.90	14.07	8.90
<b>20</b>	<b>0.22</b>	<b>0.16</b>	<b>0.10</b>	<b>1.89</b>	<b>1.34</b>	<b>0.85</b>

А)

Б)

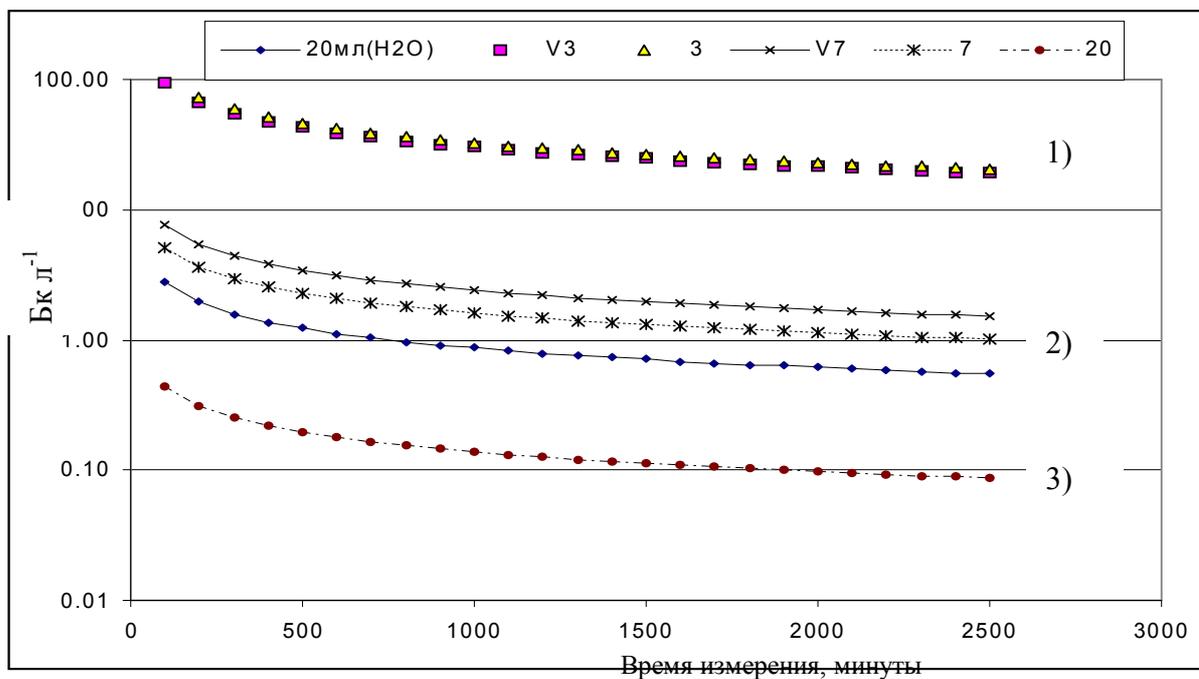


Рисунок 4. Зависимость минимальной детектированной активности (МДА)  $\text{Бк л}^{-1}$  для различных методов измерений (См. Таблица ).

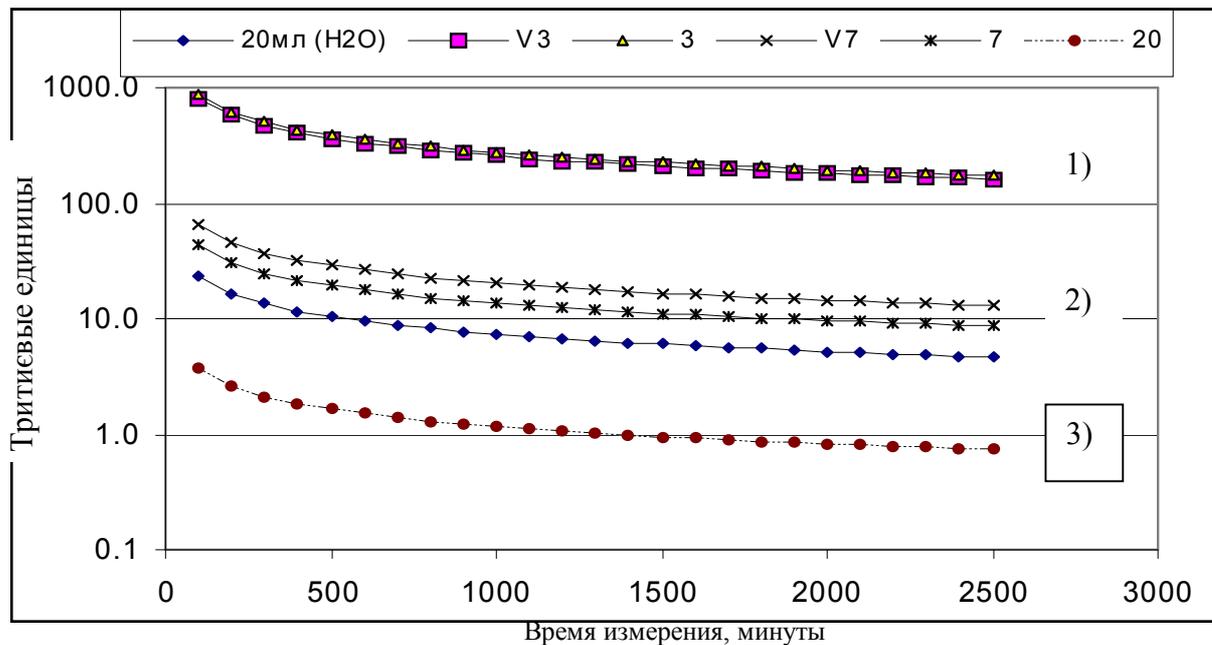


Рисунок 5. Зависимость минимальной детектированной активности (МДА, тритиевые единицы) для различных методов измерений (См. Таблица 1).

#### Подготовка образцов воды.

Традиционное измерение содержания трития в воде использует стандартную конфигурацию ЖС спектрометра Quantulus 1220™. Образцы готовятся на основе сцинтилляционной смеси Optifase Hisave 3, при соотношении "проба-сцинтиллятор",

равном 8:12. Калибровка чувствительности проводилась при помощи стандартного раствора на основе тритиевой воды с погрешностью определения удельной активности не больше 3%. Гасителем использовали четырех-хлористый углерод.

#### Подготовка образцов в форме бензола.

Для подготовки образцов на основе бензола используем оборудование, которое традиционно используется для синтеза бензола в радиоуглеродных исследованиях, изготовленное В.В. Скрипкиным [36, 37, 38]. При исследованиях трития нецелесообразно использовать синтез карбида лития - это лишняя операция, которая накладывает жесткие условия на качество лития и углерода (графита) которые нужны для синтеза карбида, исходя из условий воспроизводимости результатов. Поэтому мы используем карбид, изготавливаемый промышленно: его паспортная производительность по ацетилену составляет 300-310 л кг<sup>-1</sup>.



#### Оптимизация синтеза образцов бензола.

Исходя из общих положений измерения низких уровней радиоактивности и приведенных выше данных (См. Таблица 1), наиболее существенным есть выигрыш от использования бензольного метода для исследований трития тот, когда используется (помещается в измерительную виалу) максимальное количество водорода (трития). Мы проводили исследования характеристик виал - с одной стороны (величина образца, эффективность и фон регистрации), так же как определяли возможность системы к синтезу до изготовления образцов максимальной массы. Установлено, что в случае использования карбида кальция оптимально проводить синтез с использованием 30 грамм карбида и 50 грамм воды (образец), при этом за день получаем два образца. Такая процедура дает до 7.5-8.0 грамм бензола, что достаточно для образца, который должен измеряться в так называемой 7 мл виале. Использовать 60 грамм карбида для системы много для одного синтеза, а поэтому, при необходимости использования большей массы водорода следует выполнить два синтеза с одной и той же пробы воды, а измерения проводить в 20 мл виалах.

#### Проблемы "памяти".

Одной из проблем с которыми приходится иметь дело, когда проводится синтез бензола это проблема "памяти" - переноса части активности предыдущей пробы в

последующую. Величину "памяти" следует сравнивать с величиной удельной активности образца, ее величину следует знать, ее следует опасаться (учитывать), а кроме того делать шаги к возможному ее снижению.

В нашем случае мы отказались от системы очистки ацетиллена в результате чего "память" определяемая за двумя последовательными синтезами при использовании алюмо-силикатного ванадиевого катализатора (многократное использование) составляет 5%. Поскольку мы ориентируемся на два синтеза на каждый образец в этом случае "память" составляет около 2.5%. При использовании хромового катализатора "память" между двумя последовательными синтезами не превышает 1%.

#### Проблемы изотопного фракционирования.

Как известно ряд процессов (физических и химических) ведут к изотопному фракционированию элементов, которое всегда следует учитывать. В нашем случае этот фактор, кроме того что он есть, и того, что его следует учитывать имеет одну отрицательную черту - он имеет отрицательный знак - то есть в процессе синтеза бензола происходит обеднение трития в пробе. Так в процессе синтеза с карбида кальция фракционирования достигая 25 % [31]. При попытках вести синтез из карбида лития на нашей системе для синтеза бензола мы получили коэффициент фракционирования 43-45%, а для карбида кальция 34-35%. Поскольку мы достоверно не знаем, что может влиять на фракционирование далее проводим синтез при постоянных условиях 30 грамм карбида и 50 грамм воды.

#### Проблемы радона в пробах бензола.

Метод определения удельной активности трития или радиоуглерода на основе жидкостно-сцинтилляционного счета образцов из бензола широко используется. Целесообразность использования бензольного метода неоспорима. Появление в образцах радона обусловлена наличием в образцах радия и его высокой растворимостью в бензоле. Практически всегда [39] и, прежде всего в случае трития возникают проблемы, связанные со вкладом в регистрацию бета-излучения дочерних продуктов распада радона. Во избежание длительной выдержки образцов и сокращение времени обращения посуды проведено исследование возможности, а затем, оценена эффективность очистки образцов от радона путем пропускания через бензол аргона. Традиционно аргон применяется для существенного влияния на эффективность счета образцов [40]. Нами проведены оценки на модельных образцах (10-100 Бк на образец), и, затем на синтезированных образцах.

Очистка 20-30 раз достигается за 3, 5, 7 минут для образцов массой 3, 7, 15 грамм соответственно. Установлено, что интенсивность очистки, при всех прочих условиях пропорциональна потерям бензола. Оптимальная степень очистки достигается при потерях бензола около 5%.

Сравнение результатов определения удельной активности трития различными методами.

Для демонстрации возможностей метода измерения трития на основе синтеза бензола и последующего ЖС счета образцов проведены измерения образцов воды известной удельной активности и проведено сравнение двух методов на контрастных образцах (См. Таблица 2 и Таблица 3).

*Сравнение образцов международной программы МАГАТЕ-95.*

(См. Таблица 2)

Таблица 2. Результаты проведения определения содержания трития в образцах воды программы МАГАТЕ-95.

№ п/п	Описание образца	Рекомендованное содержание тритию, тритиевые единицы	Синтез и анализ бензола	Погрешность
1	IAEA 71A	0	<1	100%
2	IAEA 71B	1	1.5	50%
3	IAEA 71C	5	7	40%
4	IAEA 71D	19	23	21%

*Образцы воды трех полигонов.*

(См. Таблица 3)

Таблица 3. Результаты проведения определения содержания трития в образцах воды для трех полигонов.

№ п/п	Місце відбору	Прямі дослідження води	Синтез та аналіз бензолу
9169	Свердловина 171А-1	<b>3.60</b>	<b>3.37</b>
9170	Свердловина 171А-2	<b>0.87 (&lt;1.5)</b>	<b>2.03</b>
9171	Свердловина 171А-3	<b>1.16 (&lt;1.5)</b>	<b>&lt;0.1</b>
9172	Свердловина 171А-5	<b>1.22 (&lt;1.5)</b>	<b>&lt;0.1</b>
9173	Свердловина 175А-1	<b>3.48</b>	<b>0.46</b>

№ п/п	Місце відбору	Прямі дослідження води	Синтез та аналіз бензолу
9194	Свердловина 175А-2	<b>2.66</b>	<b>0.56</b>
9175	Свердловина 175А-3	( <b>&lt;1.5</b> )	<b>&lt;0.1</b>
9176	Свердловина 175А-5	<b>0.91 (&lt;1.5)</b>	<b>&lt;0.1</b>
9177	Свердловина 188А-1	<b>2.31</b>	<b>0.87</b>
9178	Свердловина 188А-2	<b>2.94</b>	<b>1.50</b>
9179	Свердловина 188А-3	<b>1.26 (&lt;1.5)</b>	<b>0.4</b>
9180	Свердловина 188А-5	<b>3.08</b>	<b>0.11</b>

*Измерение проб морской воды.*

Таблица 4. Результаты определения удельной активности трития в пробах морской воды.

№ п/п	Место отбора	Прямые измерения воды	Синтез та аналіз бензола
9118	Одесса	<b>3.22±20%</b>	<b>1.96±20%</b>
9119	Севастополь	<b>2.13±25%</b>	<b>1.58±25%</b>
9120	Керчь	<b>2.52±25%</b>	<b>2.33±25%</b>

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Как видно по приведенным данным (результатам) описанные методы дают возможность проводить исследования удельной активности трития в воде в широком интервале ее величины, что составляет уровень выше 1.5 Бк л<sup>-1</sup> при работе с водой и выше 0.3 Бк л<sup>-1</sup> при работе бензольным методом.

Некоторый маневр, при необходимости, дает увеличение времени измерения, хотя при измерении достаточно малых величин появляются другие проблемы - нестабильность "фона" и/или чистота посуда. То есть для наиболее ответственных измерений следует использовать либо одноразовую посуду или для измерения образца и фона использовать ту-же посуду.

Применение бензольного метода для определения трития дает существенное улучшение параметра качества измерений (FOM) в 4-8 раз при использовании тефлоновой посуды. Наиболее значим шаг в направлении повышения чувствительности (снижение

величины МДА) есть использование бензольного метода - с двумя синтезами и измерение в 20 мл тефлоновой виале.

Прогрессивным фрагментом в подготовке бензольных образцов есть применение барботирования аргоном, что обеспечивает очистку от радона снизить его уровень в 20-30 раз при незначительной потере массы образца <5%.

## ЛИТЕРАТУРА.

- 
1. М.И.Балонов. Дозиметрия и нормирование трития. - М.: Энергоатомиздат, 1983.,152 с.
  2. United Nations. Sources and Effects of Ionising Radiation. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation 1977 report to the General Assembly, with annexes. United Nations sales publication no.E.77.IX.I. New York,1977.
  3. Е.В.Санин, И.П.Лось, М.Г.Бузынный. Мониторинг трития на Украине.//Актуальные проблемы ликвидации медицинских последствий аварии на Чернобыльской АЭС: Тезисы докладов Украинской научно - практической конференции, Киев, 21-23 апреля 1992 г. - Киев: М.З. Украины, АН Украины, Украинский научный центр радиационной медицины, 1992.- С.195.
  4. Behavior of Tritium in the Environment. Proceedings of a Symposium San Francisco, 16 - 20 October, 1978 y. - Vienna, IAEA, 1979. - 711 p.
  5. И.Ю. Катрич. Тритий в природных водах после аварии на Чернобыльской атомной электростанции. Метеорология и гидрология, 1990, N5, с.92-97.
  6. В.И.Гришмановский. Тритий. М.: Атомиздат, 1985.,243 с.
  7. И.П.Лось, М.Г.Бузынный, А.В.Зеленский. Содержание трития в воде открытых водоемов и в источниках питьевого водоснабжения в некоторых областях УССР. Вестник академии медицинских наук СССР. М. 1991. Вып.8. с.54-56.
  8. В.Ф.Маркелова, Н.П.Мазюкевич. Контроль за содержанием трития в сбросных водах и объектах окружающей среды некоторых АЭС СССР. Гигиена и санитария. 1990. 2. с. 42-45.
  9. Е.В.Санин, И.П.Лось, М.Г.Бузынный. Мониторинг трития на Украине. // Актуальные проблемы ликвидации медицинских последствий аварии на Чернобыльской АЭС: Тезисы докладов Украинской научно-практической конференции, Киев, 21-23 апреля 1992 г.- Киев: М.З.Украины, АН Украины, Украинский научный центр радиационной медицины, 1992.- С.195.
  10. И.П.Лось, М.Г., Бузынный, А.В.Зеленский. Содержание трития в воде открытых водоемов и в источниках питьевого водоснабжения в некоторых областях УССР. Вестник Акад.мед. наук СССР. – М. : Медицина, 1991. -N8., 1991 - С. 54-56
  11. Тритий в осадках на Украине в 1990-1995 г.г. / Бузынный М.Г., Лось И.П., Скуднова Л.В.// Методы жидкостно-сцинтилляционного счета в радиоэкологии, 1995. Вып.1. Сб.

- 
- / Науч. центр радиац. медицины АМН Украины.- Киев, 1995. С.39-43. Рус. - Деп. в ГНТБ Украины 22.01.96, №341 -УкУк96
12. IAEA/WMO (1998). Global Network for Isotopes in Precipitation. The GNIP Database. Release 2 May 1998. URL: <http://www.iaea.org/programs/ri/gnip/gnipmain.htm>
  13. Michael Buzinny, Nikolay Kovalyukh, Ilja Likhtarev, Ivan Los', Valerij Nesvetajlo. M. F. Pazdur, Emlen Sobotovich, Vadim Skripkin. Ecological chronology of nuclear fuel cycle sites. In Proceedings of 15th International Radiocarbon 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.
  14. Michael Buzinny I. Likhtarjov, I. Los', Nikolay Talerko and Nikolay Tsigankov. Radiocarbon Analysis of Annual tree rings from the Vicinity of the Chernobyl NPP. Proceedings of the 16<sup>th</sup> International Radiocarbon Conference, edited by W.G. Mook and J. Van der Plicht. RADIOCARBON, Vol. 40, No.1 1998, P.373-380.
  15. Буйков М. В., Гаргер Е. К., Талерко Н.Н. Исследование пятнистой структуры радиоактивных выпадений с помощью лагранжево-эйлеровой диффузионной модели. Метеорология и гидрология, 1992, №12, 33 - 45.
  16. Borzilov V.A. and Klepikova N.V. Effect of meteorological conditions and release composition on radionuclide deposition after the Chernobyl accident. *The Chernobyl papers. Vol.1. Doses to the Soviet population and early health effects studies.* Washington, REPS, 1993, 47-70.
  17. Отчет по теме НИР «Состояние ядерной, радиационной и экологической безопасности объекта "Укрытие"». РНЦ "Курчатовский институт " (Ответственный исполнитель А.А.Боровой), М., 1995.
  18. Бегичев С.Н., Боровой А.А., Бурлаков Е.В. и др. Топливо 4-го энергоблока ЧАЭС. (Краткий справочник). – М., 1990 г., 21 с. – (Препр. / Ин-т атомной энергии; 5268/3).
  19. Salonen L. Carbon-14 and Tritium in Air in Finland after the Chernobyl Accident // *Radiochimica Acta.* – 1987. – №41. – P. 145-148.
  - 20 М.Г. Бузынный, А.В. Зеленский, Н.Н. Ковалюх, В.В. Скрипкин, Е.В. Санин. / Ретроспективное восстановление уровня аварийного выброса <sup>14</sup>С а атмосферу вследствие аварии на Чернобыльской АЭС. // Материалы научной конференции "Актуальные вопросы ретроспективной, текущей и прогнозной дозиметрии облучения в результате Чернобыльской аварии" Киев, 27-29 октября 1992 г. - Киев. 1993. С. 118-124.

- 
21. V. Skripkin, N. Kovalyukh. Direct Production of Lithium Carbide from Organic Samples for LSC Combined with Chemisorption of Gaseous Products by Lithium Alloy for  $^{14}\text{C}$  LSA. Abstract. Book of abstracts. 16<sup>th</sup> international Radiocarbon conference. June 16-20 1997. Groningen.
  22. М.Г. Бузынный, А.В. Зеленский, Н.Н. Ковалюх, В.В. Скрипкин, Е.В. Санин. / Ретроспективное восстановление уровня аварийного выброса  $^{14}\text{C}$  в атмосферу вследствие аварии на Чернобыльской АЭС. // Материалы научной конференции "Актуальные вопросы ретроспективной, текущей и прогнозной дозиметрии облучения в результате Чернобыльской аварии" Киев, 27-29 октября 1992 г. - Киев. 1993. С. 118-124.
  23. Buzinny M.G., Likhtarev I.A., Los' I.P., Tsigankov N.Ja. Radiocarbon dating for annual tree rings around Chernobyl NPP. Abstract. Book of abstracts of 16<sup>th</sup> international Radiocarbon conference. June 16-20 1997. Groningen. Netherlands.
  24. Buzinny M.G., Likhtarev I.A., Los' I.P., Talerko N.N., Tsigankov N.Ja. Radiocarbon dating for annual tree rings around Chernobyl NPP. RADIOCARBON Proceedings of the 16<sup>th</sup> International Radiocarbon Conference, edited by W.G. Mook and J. Van der Plicht. RADIOCARBON, Vol. 40, No.1.1998, P.373-380.
  25. Бузынный М.Г., Лось И.П., Зеленский А.В., Ковалюх Н.Н., Скрипкин В.В. / О возможной корреляции уровней  $^{14}\text{C}$  в растительности с  $^{131}\text{I}$  в щитовидной железе после аварии на ЧАЭС. // Актуальные проблемы ликвидации медицинских последствий аварии на Чернобыльской АЭС: Тезисы докладов Украинской научно-практической конференции, Киев, 20-22 апреля 1993 г. - Киев: Часть I. М.З. Украины, Украинский научный центр радиационной медицины, 1993. -С. 48-49.
  26. Michael Buzinny, Nikolay Kovalyukh, Ilja Likhtarev, Ivan Los', Valerij Nesvetajlo. Mieczyslaw Pazdur, Emlen Sobotovich, Vadim Skripkin. Ecological chronology of nuclear fuel cycle sites. In Proceedings of 15<sup>th</sup> International  $^{14}\text{C}$  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.
  27. Бузынный М.Г. Аварийный выброс радиоуглерода в результате аварии на Чернобыльской АЭС и связанные с ним проблемы. Проблеми зони відчуження. Науково-технічний збірник. Київ, Мінчорнобыль України. 1996. - С. 91-95.
  28. Гусев Н.Г., Беляев В.А. Радиоактивные выбросы в биосфере. М., Энергоатомиздат, 1991, 256 с.

- 
29. Buzinny M., Kovalyukh N., Los' I., Skripkin V. Radiocarbon releases of Zaporozhe NPP. Conference on geochronology and dendrochronology of old town's and radiocarbon dating of archaeological findings, Lithuania, Vilnius, Oct. 31 – Nov. 4, 1994, 7-12.
  30. Michael P. Neary. Tritium Enrichment- To Enrich or Not to Enrich? Radioactivity & Radiochemistry. Volume 8, NO. 4, 1997. P23-35.
  31. M.A.Tamers and B.Bibron, "Benzene Method Measurement Tritium in Rain Without Isotope Enrichment," Nucleonics, June, 90-94, (1963).
  32. James D. Spaulding, John E. Noakes, Russell A.Mellon and David A. McCuzdy. Routing Analysis of Ambient Tritium Levels in Environmental Water Samples. 1980.
  33. Converting Samples to Benzene for Measurement of Environmental Levels of  $^3\text{H}$  and  $^{14}\text{C}$  Using Liquid-Scintillation Counting. Stan De Filippis. Radioactivity & Radiochemistry. Vol.2.No.3.P.12-20.
  34. Practical Aspects of Environmental Analysis for Tritium Using Enrichment by Electrolysis. J. R. Stencil, O. A. Griesbach, G. Ascione, S. M. Elwood, R. A. Frankenfield. Radioactivity & Radiochemistry. Vol.6.No.2.1995, P.40-49.
  35. Claude Taylor. Персональне повідомлення авторам. E-mail: [C.Taylor@gns.cri.nz](mailto:C.Taylor@gns.cri.nz).
  36. Kovalyukh N.N., Skripkin V.V. (1992) Chemical sample preparation for radioecological determination of radiocarbon. In Radioisotopes in ecological investigations. - Kiev: "Naukova Dumka":-1992.-160 P. (In Russian)
  37. Skripkin V., Kovalyukh N. An (1994) Universal Technology for Oxidation of Carbon Containing Materials for Radiocarbon Dating. 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
  38. V.Skripkin, N.Kovalyukh. Direct Production of Lithium Carbide from Organic Samples for LSC Combined with Chemisorption of Gaseous Products by Lithium Alloy for  $^{14}\text{C}$  LSA. Abstract. Book of abstracts. 16<sup>th</sup> international Radiocarbon conference. June 16-20 1997. Groningen.
  39. Sushil K. Gupta, Henry A. Polach. Radiocarbon Dating Practices at ANU. Handbook. Radiocarbon laboratory, Research School of Pacific Studies. ANU, Canberra, 1985. - 174 p.
  40. W. Jack McDowell. REVIEW PAPER. Photon/Electron-Rejecting Alpha Liquid Scintillation (PERALS ®) Spectrometry: A Review ETRAC (East Tennessee Radiometric/Analytical Chemicals), Inc. Radioactivity & Radiochemistry. Vol. 3, No. 2, 1992. P.26- 54.