

АКАДЕМИЯ МЕДИЦИНСКИХ НАУК УКРАИНЫ
УКРАИНСКИЙ НАУЧНЫЙ ЦЕНТР
РАДИАЦИОННОЙ МЕДИЦИНЫ

на правах рукописи

УДК 539.1.074:577.4:614.7

БУЗЫННЫЙ МИХАИЛ ГЕОРГИЕВИЧ

МОНИТОРИНГ ОСНОВНЫХ В-ИЗЛУЧАЮЩИХ РАДИОНУКЛИДОВ В
ОБЪЕКТАХ ОКРУЖАЮЩЕЙ СРЕДЫ.

специальность - “Охрана окружающей среды”

Д и с с е р т а ц и я

на соискание ученой степени

кандидата технических наук

Научные руководители:

доктор биологических наук,

И.П.ЛОСЬ

доктор физико-математических наук,

профессор И.А.ЛИХТАРЕВ

Киев-1994

СОДЕРЖАНИЕ

<i>СОДЕРЖАНИЕ</i>	2
<i>ПЕРЕЧЕНЬ УСЛОВНЫХ ОБОЗНАЧЕНИЙ, СИМВОЛОВ, ЕДИНИЦ И ТЕРМИНОВ</i>	4
<i>ВВЕДЕНИЕ</i>	5
<i>РАЗДЕЛ 1. АНАЛИТИЧЕСКИЙ ОБЗОР ЛИТЕРАТУРЫ</i>	12
<i>Глава 1. НАИБОЛЕЕ ВАЖНЫЕ БЕТА-ИЗЛУЧАЮЩИЕ РАДИО-НУКЛИДЫ В ОКРУЖАЮЩЕЙ СРЕДЕ (^3H, ^{14}C, ^{90}Sr И ^{241}Pu)</i>	12
1.1. Распределение и радиобиологическая значимость.	12
1.1.1 Тритий	12
1.1.2 Радиоуглерод	15
1.1.3. Стронций-90	17
1.1.4. Плутоний-241	18
1.2 Методы регистрации β -излучения	20
1.2.1 Жидкостно-сцинтилляционный счет	20
1.2.2 Черенковский счет	27
1.2.3 Пропорциональные счетчики	31
1.2.4 Измерения поверхностно-барьерным детектором	32
1.2.5 Измерения кристаллическим сцинтилляционным детектором	32
1.3 Методы подготовки образцов для измерений	33
1.3.1 Тритий.	33
1.3.2 Радиоуглерод	34
1.3.3 Стронций-90	37
1.3.4 Плутоний-241	44
<i>2. РЕЗУЛЬТАТЫ СОБСТВЕННЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ</i>	48
<i>Глава 2. ПРОГРАММА, ОБЪЕКТЫ, МЕТОДЫ ИССЛЕДОВАНИЯ</i>	48
2.1. Программа исследований	48
2.2. Методы отбора проб	49
2.3. Методические особенности поиска и изучения радиэкологических аспектов "горячих" частиц	50
2.4. Определение содержания гамма-излучающих радионуклидов	50
2.5. Альфа - спектрометрический метод определения изотопов $^{238,239,240}\text{Pu}$ в пробах окружающей среды	51
2.6. Жидкостно-сцинтилляционный α - и β -счет	52
2.6.1. Оборудование	54
2.6.2. Определение трития	58
2.6.3. Радиоуглеродные исследования	61
2.6.4. Определение стронция-90	62
2.6.5. Определение плутония-241	96

2.7. Технические и экономические показатели традиционных и предлагаемых методов определения активности радионуклидов _____	102
<i>Глава 3. МОНИТОРИНГ ТРИТИЯ</i> _____	104
3.1 Источники питьевого водоснабжения _____	104
3.2 Мониторинг выбросов АЭС _____	105
3.3 Тритий в осадках _____	114
<i>Глава 4. РЕТРОСПЕКТИВНОЕ ВОССТАНОВЛЕНИЕ УРОВНЯ АВАРИЙНОГО ВЫБРОСА ^{14}C ВСЛЕДСТВИЕ АВАРИИ НА ЧЕРНОБЫЛЬСКОЙ АЭС</i> _____	121
4.1. Одногодичная растительность _____	122
4.2. Годичные кольца деревьев _____	124
4.3. Оценка выброса _____	128
Выводы _____	128
<i>Глава 5. МОНИТОРИНГ ^{90}Sr В ОБЪЕКТАХ ОКРУЖАЮЩЕЙ СРЕДЫ</i> _____	131
5.1 Фракционирование ^{90}Sr в кисломолочных продуктах _____	131
5.2 Содержание ^{90}Sr в пробах молока _____	132
5.3 Измерение ^{90}Sr в "горячих частицах" _____	134
5.4 Мониторинг ^{90}Sr в воде _____	135
<i>Глава 6. ЗАКОНОМЕРНОСТИ РАСПРЕДЕЛЕНИЯ ^{241}Pu В ОБЪЕКТАХ ОКРУЖАЮЩЕЙ СРЕДЫ</i> _____	146
6.1 Соотношение активностей изотопов плутония в различных пробах окружающей среды _____	146
6.2 Содержание ^{241}Pu в пробах почвы _____	148
6.2.1. Уровни ^{241}Pu в почвах _____	148
6.2.2. Прогноз накопления ^{241}Am _____	149
ЗАКЛЮЧЕНИЕ _____	155
ВЫВОДЫ И ПРЕДЛОЖЕНИЯ _____	<i>Ошибка! Закладка не определена.</i>
СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ _____	<i>Ошибка! Закладка не определена.</i>

ПЕРЕЧЕНЬ УСЛОВНЫХ ОБОЗНАЧЕНИЙ, СИМВОЛОВ, ЕДИНИЦ И ТЕРМИНОВ

ЖС	Жидкость сцинтилляционная
ЖСС	Жидкостно-сцинтилляционный счет (счетчик)
МАГАТЭ	Международное агенство по действию атомной
МДА	Минимальная детектируемая активность
МКРЗ	Международная комиссия по радиационной защите
МЭД	Мощность экспозиционной дозы
НКДАР ООН	Научный комитет по действию атомной радиации при ООН
ПДК	Предельно допустимая концентрация
ПДС	Предельно допустимое содержание
ОРР	Образцовый радиоактивный раствор
$T_{1/2}$	Период полураспада
ФЭУ	Фотоэлектронный умножитель
РРО	2,5-diphenyloxazole;
РОРОР	1,4-bis-2-(5-phenyloxazolyl)benzene
butil-PBD	2-(4-t-butylphenyl)-5-(biphenylyl)-1,3,4-oxadiazole
ТР	p-terphenyl
СРМ	Скорость счета пробы, имп/мин ⁻¹
СРМ(External)	Скорость счета пробы при измерении спектра внешнего стандарта, имп/мин ⁻¹
СРМ(External)	Метод стандартизации Черенковского счета
DPM	Активность стандарта (распады за минуту)
МТФ (виалы)	Медно-тефлоновые (виалы)
SQP(E)	Спектральный параметр гашения (внешний стандарт)
PWR	Pressurised water reactor (ВВР-советский аналог)
BWR	Boiling water reactor
HWR	Heavy water reactor
ТВЭЛ	Тепло-выделяющий элемент
Счетная форма	Форма в которой проводятся измерения образца
$\Delta^{14}\text{C}$	Избыточный радиоуглерод накопленных в годичном кольце дерева или растительности за вычетом фона

ВВЕДЕНИЕ

Актуальность темы исследования. По данным литературы [Jelly, J.V., 1958; Дементьев В.А., 1967; Peng С.Т., 1975; Ровинский Ф.Я., Йохельсон С.Б., Юшкан Е.И., 1976; Балонов М.И., 1983; Rolf-Diter Wilken and Sewak R. Joshi, 90] известно, что мониторинг β -излучателей в объектах окружающей среды обычно связан с радиохимической подготовкой образцов и основан прежде всего на применении газопоточного, сцинтилляционного и жидкостно-сцинтилляционного методов регистрации β -излучателей. Это касается и мониторинга в объектах окружающей среды наиболее важных бета-излучающих радионуклидов: ^3H , ^{14}C , ^{90}Sr и ^{241}Pu . Эти радионуклиды существенно отличаются по энергии излучения: ^3H и ^{241}Pu - мягкие излучатели с граничной энергией (E_m), равной 18.6 и 20.4 кэВ соответственно; ^{14}C - со средним по значению $E_m=156$ keV и жесткие β -излучатели $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$ с E_m 0.5 и 2.3 MeV соответственно. Регистрация β -излучения всех указанных радиоизотопов наиболее эффективна при помощи жидкостно-сцинтилляционного счета. Применение Черенковского счета, распространяется только на ^{90}Sr или смесь $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$ в силу указанного отличия граничных энергий и возможности вести эффективную регистрацию ^{90}Y .

Приведенные радионуклиды существенно различаются по их метаболизму и доступности, в связи с чем представляют различную биологическую опасность: тритий - как изотоп водорода в составе воды и всевозможных биологически важных соединений, радиоуглерод - в составе биологических соединений, ^{90}Sr - как аналог кальция депонирующийся в скелете с последующим воздействием на костный мозг и ^{241}Pu - отчасти сам по себе, но, в гораздо большей степени, после распада в дочерний ^{241}Am , более подвижный и более опасный биологически.

Мониторинг радиоактивных загрязнений объектов окружающей среды приобретает все большую актуальность в связи с растущим вкладом техногенных выбросов целого ряда радионуклидов. К причинам техногенных выбросов радиоактивности прежде всего относятся: технологические утечки,

аварийная разгерметизация энергетических установок, испытания оружия и разрушение источников ионизирующего излучения, используемых в технике. Каждому типу выбросов соответствует смесь определенного набора радионуклидов. Выполнение мониторинга γ -излучателей легко выполнимо, поскольку основано на использовании неразрушающих методов, а техника γ -спектрометрии разработана и широко внедрена во многих лабораториях. Однако весьма существенная часть выбросов реализуется в виде α - и β -излучателей.

В предлагаемой работе рассматриваются проблемы связанные с постановкой, реализацией и проведением мониторинга β -излучателей, проводится анализ и представляются некоторые результаты мониторинга наиболее важных долгоживущих β -излучающих радионуклидов: трития, ^{90}Sr , ^{14}C и ^{241}Pu .

Летучесть трития делает его потенциальным источником формирования повышенных индивидуальных и коллективных доз для густонаселенных районов, особенно в местах размещения АЭС и других техногенных источников его выброса [Балонов, 1983; Гришмановский, 1985; IAEA, 1979]. Химические особенности элемента обуславливают прежде всего загрязнение воды, источников водоснабжения. Поэтому наиболее чувствительным методом радиационного мониторинга окружающей среды в районах размещения АЭС является контроль содержания трития в воде. С другой стороны, влияние процессов глобальной миграции водорода, отражается прежде всего на содержании трития в осадках и в поверхностной воде, следовательно результаты мониторинга трития в осадках дают исчерпывающее представление о процессах природного водообмена.

Радиоуглерод имеет двойную природу образования: - как естественный радионуклид, нарабатываемый в окружающей среде под действием космического излучения по ряду реакций, находящегося в относительном равновесии, что соответствует удельной активности 0.227 Бк на грамм углерода и изменяющийся в атмосфере в небольших пределах под действием колебаний солнечной активности и др. глобальных процессов [ООН, Gupta and Polach,

1985; Арсланов, 1987]; и как техногенный, поступивший в окружающую среду в процессе испытаний ядерного оружия, а также в результате технологических и аварийных выбросов АЭС [McCartney M. and Baxter, 1988]. Наиболее существенные изменения в содержании ^{14}C в окружающей среде произошли за последние 100 лет. Кроме названных причин выбросов ^{14}C эти изменения вызваны вовлечением в биосферу углерода, практически лишённого ^{14}C , поступающего при добыче и широком применении угля и нефти [Suess, 1954]. Колебания глобального ^{14}C хорошо изучены и дают возможность применять их путем определения степени распада, выбывшего из биологического циклирования ^{14}C после фиксирования его в образцах для датирования (установления хронологической связи) различных процессов и событий. Таким образом, ^{14}C используется как индикатор в геохронологии и археологии, при изучении солнечной активности и при выявлении других причин, включающих на изменение скорости его генерации. Развитая техника радиоуглеродного датирования может применяться с тем же успехом для изучения влияния техногенных источников выброса ^{14}C .

Стронций-90, попадая в окружающую среду в процессе глобальных испытаний и аварийных выбросов, составил одну из наиболее важных радиобиологических проблем. Биологический аналог кальция, легкодоступный и опасный он занимает второе место после цезия-137 по вкладу в текущие дозы облучения населения в результате воздействия ионизирующих излучений техногенного происхождения / 1 /.

Плутоний-241 с одной стороны, представляет опасность, как носитель максимальной активности плутония, выброшенной в окружающую среду, а с другой, как родоначальник одного из наиболее опасных α -излучающих радионуклидов - ^{241}Am , накапливающегося в окружающей среде с его распадом. При этом количество ^{241}Pu в выбросах как при глобальных испытаниях ядерного оружия, так и в результате аварии на ЧАЭС в десятки раз больше суммы альфа-излучающих изотопов плутония. При максимальном накоплении ^{241}Am это влечет за собой активность в несколько раз большую суммарной активности альфа-излучающих изотопов плутония / 1 /.

Разработка комплекса методических и аппаратурных приемов оценки содержания β -излучателей является основным содержанием данной работы. При этом основное внимание уделяется разработке новых методов определения содержания радионуклидов в пробах окружающей среды, автоматизации и стандартизации всех процедур, связанных с измерением, анализом и обработкой β -спектров, обработке полученных результатов и созданию программного обеспечения для их практической реализации.

Цель и задачи исследования. Разработка комплекса, отвечающих требованиям системы радиационного качества окружающей среды по точности, оперативности и стоимости методов определения наиболее значимых β -загрязнителей окружающей среды ^3H , ^{14}C , ^{90}Sr и ^{241}Pu в различных объектах.

Для достижения этой цели было необходимо решить следующие задачи:

1. Разработать комплекс методических подходов и аппаратурных решений для определения содержания ^3H , ^{14}C , ^{90}Sr и ^{241}Pu в объектах окружающей среды;
2. Изучить содержание трития в окружающей среде (вода и атмосферные осадки) по всей территории Украины. Определить диапазоны его колебания в зависимости от географических, метеорологических и других причин, обосновать требования к мониторингу трития в окружающей среде на территории Украины;
3. Провести ретроспективное определение уровней аварийного выброса радиоуглерода в окружающую среду, определить уровни его накопления в растительности в результате штатной работы и аварийного выброса Чернобыльской АЭС;
4. Обеспечить мониторинг аварийного выброса ^{90}Sr в основном источнике питьевого водоснабжения Украины р.Днепр в реальном масштабе времени;
5. Определить уровни загрязнения почвы Украины ^{241}Pu , оценить прогнозные уровни максимального накопления ^{241}Am в окружающей среде.

Этапы выполнения работы.

1. Анализ и тестирование существующих методов проведения мониторинга β -излучателей.

2. Выполнение калибровки жидкостно-сцинтилляционного спектрометра: оптимизация схемы измерений- виала, сцинтиллятор и объем пробы; подготовка и аттестация калибровочных образцов; снятие “кривых гашения” для проведения измерений ^3H , ^{14}C , ^{90}Sr и ^{241}Pu в различных пробах окружающей среды.
3. Тестирование, разработка и модификация методов подготовки образцов.
4. Разработка методов мониторинга ^{90}Sr в реальном масштабе времени: метод стандартизации Черенковского счета; современный β -спектрометрический жидкостно-сцинтилляционный метод определения ^{90}Sr .
5. Выполнение мониторинга ^3H , ^{14}C , ^{90}Sr и ^{241}Pu .
6. Разработка средств информационной поддержки (алгоритмов и программных средств) для проведения автоматизированного анализа и обработки спектров, сбора, накопления и верификации результатов.
7. Анализ и представление результатов мониторинга. Оценка доз.

Материалы и методы исследований. Исследования проведены на территории Украины. Отобрано и проведено радиометрических и спектрометрических измерений более 7000 проб окружающей среды (воды, молока, почвы, растительности и др.).

Методы:

- пробоотбор воды, молока, растительности и др. проб;
- β -радиометрические и β -спектрометрические,
- Черенковский счет;
- радиохимические;
- информационные: математические, компьютерные.

Научная новизна результатов исследования. На основе жидкостно-сцинтилляционного счета, в том числе и методов определения содержания ^{90}Sr в пробах окружающей среды (включая методы позволяющие вести мониторинг ^{90}Sr в реальном масштабе времени) впервые разработан комплекс технических и информационных методов для реализации мониторинга ряда наиболее важных β -излучателей в различных объектах окружающей среды;

- современный β -спектрометрический метод определения ^{90}Sr и на его основе реализован мониторинг ^{90}Sr в воде в реальном масштабе времени;

- метод стандартизации Черенковского счета и на его основе реализован мониторинг ^{90}Sr в воде в реальном масштабе времени;
- впервые получены оценки величины выброса радиоуглерода в результате аварии на ЧАЭС;
- предложена идея использования данных об избыточном накоплении радиоуглерода в годичных кольцах деревьев для ретроспективной оценки (на базе корреляционных связей) уровня газообразного аварийного выброса других радионуклидов;
- впервые получены результаты по уровням загрязнения почвы Украины плутонием-241;
- На основе данных мониторинга проведена оценка доз внутреннего облучения населения Украины за счет ^3H и ^{14}C .

Практическое значение результатов работы. На основе жидкостно-сцинтилляционного и Черенковского счета разработан комплекс наиболее чувствительных и эффективных методов мониторинга β -излучателей, позволяющий быстро, эффективно и точно определять уровни загрязнения объектов окружающей среды, а именно обеспечить непрерывный контроль уровня загрязнения питьевой воды ^{90}Sr , вести мониторинг трития в районах размещения АЭС, в осадках и в источниках водоснабжения, определить уровни аварийного выброса радиоуглерода в окружающую среду в результате аварии на ЧАЭС, определять уровни загрязнения почв Украины ^{241}Pu , выполнять прогноз накопления ^{241}Am в почве Украины.

На защиту выносятся следующие основные положения, являющиеся следствием выполненного комплекса методических разработок, экспериментальных и теоретических исследований: Разработка методов определения содержания ^{90}Sr в реальном масштабе времени: разработка и стандартизация метода регистрации жестких β -излучателей на основе Черенковского счета; разработка и стандартизация спектрометрического метода определения компонент смеси β -излучателей на основе ЖСС; разработка и внедрение тефлоновых виал для выполнения β -измерений как части

инструментария; оптимизация выбора метода определения ^{241}Pu в пробах окружающей среды; результаты мониторинга ^3H , ^{14}C , ^{90}Sr и ^{241}Pu в объектах окружающей среды (тритий в источниках питьевого водоснабжения и в осадках, в аспекте мониторинга АЭС, ретроспективная оценка выбросов ^{14}C в результате аварии на ЧАЭС, мониторинг стронция в воде р.Днепр и в молоке, мониторинг ^{241}Pu в почве Украины).

Апробация работы. Основные положения работы доложены на:

1. Научной конференции "Актуальные вопросы радиационной медицины": (Киев, 1989);
2. Научно-практической конференции "Актуальные проблемы ликвидации медицинских последствий аварии на Чернобыльской АЭС" (Киев, 1992 апрель);
3. Научной конференции. Зеленый Мыс. Май 1992г.
4. Международной научной конференции "Достижения в жидкостно-сцинтилляционной спектрометрии" LSC-92 (Вена, 1992, сентябрь);
5. Научной конференции "Актуальные вопросы ретроспективной, текущей и прогнозной дозиметрии облучения в результате Чернобыльской аварии". (Киев, 1992, октябрь);
6. Научной конференции "Актуальные проблемы ликвидации медицинских последствий аварии на Чернобыльской АЭС (Киев, 1993, апрель);
7. Межлабораторное совещание 17 декабря 1993 года.
8. Международной научной конференции "Достижения в жидкостно-сцинтилляционной спектрометрии" LSC-92 (Глазго, 1994, август);
9. 15-й международной радиоуглеродной конференции (Глазго, 1994, август).

Публикация результатов исследования. По теме диссертации опубликовано 22 работы, в том числе: в международных изданиях - 5, в отечественных изданиях - 17.

Структура диссертации. Введение, обзор литературы, 5 глав собственных исследований, выводы, список литературы.

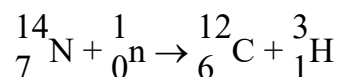
РАЗДЕЛ 1. АНАЛИТИЧЕСКИЙ ОБЗОР ЛИТЕРАТУРЫ

Глава 1. НАИБОЛЕЕ ВАЖНЫЕ БЕТА-ИЗЛУЧАЮЩИЕ РАДИО-НУКЛИДЫ В ОКРУЖАЮЩЕЙ СРЕДЕ (^3H , ^{14}C , ^{90}Sr И ^{241}Pu)

1.1. Распределение и радиобиологическая значимость.

1.1.1 Тритий

Тритий, являясь радиоактивным изотопом водорода с периодом полураспада 12.35 года, в процессе распада превращается в гелий, излучает бета-частицы со средней энергией $5.68 \cdot 10^{-3}$ МэВ·Бк $^{-1}$ ·с $^{-1}$. Соединяясь с кислородом, он образует оксиды НТО и Т₂О. Тритий всегда существовал в природе. Образуется в верхних слоях атмосферы в результате воздействия нейтронов вторичного космического излучения с ядрами атомов азота:



В год образуется около $(5.55-11.1) \cdot 10^{10}$ МБк космогенного трития, а общее содержание его на планете - $(92.5-185.0) \cdot 10^{10}$ МБк / 1 /. При этом около 65% его содержится в воде океанов, составляя среднюю активность поверхностного слоя воды 0.12 Бк·л $^{-1}$ / 2 /. Среднее содержание трития в континентальных поверхностных водах было 0.24-1.2 Бк·л $^{-1}$ / 2, 3, 4/. Основная форма содержания трития в природе - это вода. В водах океана около 800 г, в континентальных водах - 9 г, во влаге атмосферы планеты - 18 г / 1 /.

Миграционные процессы глобального обмена воды и естественный распад существенно понизили к настоящему времени удельную активность этой компоненты трития в окружающей среде.

Так как тритий образуется и в ядерных технологиях (на атомных станциях, при испытаниях ядерного оружия и т.д.), то в послевоенный период уровень его в окружающей среде увеличивается, общий выброс трития в окружающую среду за счет испытания ядерного оружия составил около $1.5 \cdot 10^{20}$ Бк, что обусловило повышение его удельной активности во время выбросов в осадках и

в воде до уровней в несколько тысяч Бк·л⁻¹ / 4, 5, 6 /. А в настоящее время в континентальных водах, например, она составляет 2.0-7.0 Бк·л⁻¹ / 5, 6 /.

Основным источником поступления техногенной части трития в окружающую среду в настоящее время являются АЭС (см. Таблица 1.). По данным ООН и МАГАТЭ выбросы за счет предприятий ядерной энергетики в 1978 году составляли более $1.5 \cdot 10^{18}$ Бк / 4, 7 /.

Таблица 1.

Нормированная скорость выброса трития в окружающую среду реакторами различного типа в 1978 году (ТБк·ГВт⁻¹·год⁻¹) / 8 /

Тип реактора	Атмосфера	Гидросфера	Всего
PWR	7.8	38	45.8
BWR	3.4	1.4	4.8
HWR	11	25	36
GCR	540	350	890
РБМК-1000			
за 1-й год	4.1	1.0	5.1
за 5-й год	1.5	0.8	2.3
за весь срок	0.7	0.3	1.0

Примечание: Величина выброса реакторов РБМК-1000 существенно изменяется по сроку эксплуатации реактора

Тритий может поступать в организм через пищу (воду) со вдыхаемым воздухом (его парами) и через кожу. Через легкие всасывается до 89-99% вдыхаемого пара НТО и выдыхается до 1-2% активности НТО / 1 /. Всасывание через ЖКТ происходит вначале в желудке и в основном в тонком кишечнике и практически завершается через 40-45 минут после заглатывания / 1 /.

Попавший в организм тритий равномерно распределяется по органам и тканям и находится в двух формах: свободного, в виде НТО (90%) и органически связанный (около 10%). Эффективный биологический период полувыведения $T_{эфф}$ для свободной компоненты составляет 9.7 суток, а

органически связанный имеет два периода полувыведения: $T_{\text{эфф}} = 30$ сут. и $T_{\text{эфф}} = 450$ сут. / 1, 9 /.

Исследования, касающиеся метаболизма трития, свидетельствуют о его преимущественном накоплении в тканях, а соотношение удельной активности трития в структуре клеток к тритию в воде организма колеблется от 1.0 до нескольких единиц / 4, 7, 12 /. Этот факт рекомендуется учитывать при корректном расчете дозовых нагрузок / 12, 13 /.

Облучая органы и ткани организма, тритий вызывает неблагоприятные эффекты, типичные для радиационного воздействия / 9 /. В связи с этим существуют соответствующие гигиенические регламенты - допустимая концентрация трития в атмосферном воздухе 11.1 и в воде $14.8 \cdot 10^4$ Бк·л⁻¹ /14 /.

Однако, учитывая то, что водородные связи способствуют ферментам ускорять некоторые реакции в биологических системах, точному копированию молекулы ДНК, передающей из поколения в поколение всю генетическую информацию и т.д., есть основания считать, что неблагоприятная роль трития в организме связана не только с его дозообразующей способностью. Он может изменять генетический код, влиять на ход некоторых биологических процессов / 1 / что говорит о возможном изменении действующих регламентов в сторону их ужесточения. Но даже в аспекте действующих нормативов проблема трития, как глобального загрязнителя, стоит очень остро. Главной проблемой является обеспечение мониторинга трития как по территории всей страны, так и в районах основных источников его выброса - АЭС. Последнее особенно значимо для Украины, где сегодня действует 11 блоков типа ВВЭР с повышенным выбросом трития в окружающую среду.

Однако, измерение трития в пробах окружающей среды связано с определенными трудностями, типичными для всех бета-излучателей: с необходимостью радиохимического выделения. Это длительные и дорогие исследования, не позволяющие обеспечить мониторинг в реальном масштабе времени. К тому же тритий является мягким излучателем, что требует

применения особого класса приборов и методов отбора проб. Эти проблемы явились предметом исследования в рамках данной работы.

1.1.2 Радиоуглерод

Радиоактивный изотоп углерода ^{14}C является одним из основных дозообразующих радиоактивных элементов. Баланс его содержания в окружающей среде до конца прошлого века определялся процессами естественной генерации по основным реакциям:



некоторым второстепенным, а также его естественным распадом. Скорость естественной генерации ^{14}C в окружающей среде оценивалась $(1.0-1.5)10^{15}$ Бк за год / 1, 26 /, а общее количество космогенного радиоуглерода в биосфере оценивалось 8.5 ЭБк.

Промышленная добыча и использование угля и нефти, практически лишенных ^{14}C , привели к снижению удельного содержания ^{14}C в воздухе за период с 1890 по 1954 годы примерно на 2% / 16 / и ведут к разбавлению нарабатываемого техногенного ^{14}C .

Основными техногенными источниками поступления являются воздушные выбросы и сточные воды АЭС, а также предприятий по переработке ядерного горючего. Выброс из АЭС с графитовым замедлителем оценивается в 100 ГБк·(Мвт·год) / 17 /. Отметим существенное отличие распределения ^{14}C по различным формам выбросов для различных типов АЭС: BWR - 95% CO_2 , 2.5% CO и 2.5% гидрокарбонаты; PWR - 80% CH_4 и C_2H_6 , 5% CO_2 и CO / 1 /. Широко нарастающее использование ядерно-энергетических установок приводит к росту выброса радиоуглерода в окружающую среду. Об этом свидетельствуют оценки МАГАТЭ / 18 / (см. Таблица 2.). К 2050 году по оценкам McCartney and Baxter / 19, 20 / удельная активность ^{14}C в воздухе должна составить от 200 до 250 $\text{Бк}\cdot\text{кг}^{-1}$ углерода. Испытания ядерного оружия по оценкам ООН к 1972 году привели к выбросам в атмосферу до $2.1\cdot 10^{15}$ Бк, что дало увеличение содержания ^{14}C в воздухе в 3-4 раза / 4 /. Этот избыточный радиоуглерод

включался в процессы биологического обмена, а это привело к снижению содержания ^{14}C в воздухе / 16 /.

Таблица 2.

Оценочные глобальные выбросы радиоуглерода и трития из АЭС на 1980 год / 26 /

Тип реактора	Количество реакторов	Емкость MW(e)	Производительность /Бк на MW(e)/	Доля выброса ^{14}C (%)	Оценка выброса ^{14}C (Бк)	Оценка выброса ^3H (Бк)
PWR	96	64239	$7.0 \cdot 10^8$	30	$8.0 \cdot 10^{12}$	$3.0 \cdot 10^{15}$
BWR	62	35170	$7.0 \cdot 10^8$	50	$7.0 \cdot 10^{12}$	$1.69 \cdot 10^{14}$
HWR	14	5963	$1.6 \cdot 10^{10}$	70	$4.0 \cdot 10^{13}$	$2.15 \cdot 10^{14}$
GCR	36	7086	$9.0 \cdot 10^9$	5	$2.0 \cdot 10^{12}$	$6.31 \cdot 10^{15}$
Другие	33	12527	-	-	-	
Всего	241	124985			$5.7 \cdot 10^{13}$	

В процессе фотосинтеза ^{14}C накапливается в растениях, что обуславливает преимущественное пероральное поступление радиоуглерода в организм человека. Ингаляционное поступление составляет только около 1% / 1 /. Коэффициент перехода атмосфера-растения равен единице. Равновесие устанавливается за 2-3 месяца. Радиоуглеродные исследования годичных колец деревьев и другой растительности, проводимые во всем мире, позволяют решать не только задачи археологии, геохронологии, но и задачи оценки степени локализации выбросов, их влияние на окружающую среду, величину глобальных выбросов ^{14}C .

Поступление в организм человека большинства органических соединений ^{14}C характеризуется высокой резорбцией (90-100%), причем скорость этого процесса зависит от степени растворимости соединения и составляет 0.25-24 часа. Обменные процессы зависят от возраста организма. Хроническое поступление приводит к тому, что обменное количество ^{14}C зависит от содержания углерода в теле. Организм человека содержит около 4 кБк ^{14}C .

1.1.3. Стронций-90

Основные радиоактивные изотопы стронция ^{89}Sr ($T_{1/2}=50$ суток) и ^{90}Sr ($T_{1/2}=29.2$ года) представляют собой чистые бета-излучатели, имеющие граничные энергии ($E_{\text{гр}}$) 1492 и 546 KeV соответственно. Появление в биосфере радиоактивного стронция обусловлено техногенными выбросами. При этом имеется в виду прежде всего ^{90}Sr - наиболее важный и значимый радиоактивный изотоп стронция. ^{89}Sr имеет относительно небольшой период полураспада и его контроль актуален только при "свежих" выбросах и выпадениях. В силу этого измерения данных двух радионуклидов в пробах окружающей среды получили значительный интерес. Основная масса выбросов обусловлена глобальными испытаниями ядерного оружия, причем выход ^{90}Sr составляет до 3.5% / 1 /. Другие источники поступления ^{90}Sr в окружающую среду - это технологические выбросы АЭС за счет разгерметизации ТВЭЛов (незначительные) и в случае аварийной разгерметизации активной зоны реакторов (значительные).

Стронций, является, по своим химическим свойствам, аналогом кальция, активно участвует в обмене веществ у растений. Выпадая, он может проникать внутрь растений при непосредственном загрязнении листьев или через корневую систему после проникновения в землю. Для зерновых и бобовых растений характерно существенное накопление стронция в плодах. В силу значительного периода полураспада роль стронция среди продуктов распада урана со временем увеличивается.

Уровни всасывания ^{90}Sr через ЖКТ колеблются от 5 до 100% и зависят от растворимости его соединений. Всасывание ^{90}Sr через легкие весьма значительное: за сутки в легких остается менее 0.5%. Через кожу за 12 часов всасывается до 4% ^{90}Sr / 1 /. На процессы усвоения стронция существенно влияние диеты, возраста и других биологических факторов, которые могут усиливать или ослаблять эти процессы в несколько раз. Независимо от пути и режима поступления ^{90}Sr , он избирательно накапливается в скелете. Это обуславливает его избирательное действие на костный мозг т.е. на кроветворную функцию организма. Изучение проблем ^{90}Sr рассматривается

неразрывно от его дочернего продукта ^{90}Y ($T_{1/2}=64$ часа) $E_{\text{гр}}=2279$ КеВ как при рассмотрении биологического действия, так и при решении проблем мониторинга.

1.1.4. Плутоний-241

^{241}Pu относится к числу долгоживущих радиоизотопов искусственного происхождения, которые к настоящему времени оказывают влияние на формирование доз облучения населения. Основными источниками поступления изотопов плутония в окружающую среду являются испытания ядерного оружия, некоторые этапы топливного цикла и технологические аварии, связанные с разгерметизацией энергетических систем. За период ядерных испытаний в атмосферу поступило наряду с 13 ТБк $^{239,240}\text{Pu}$, около 360 ТБк ^{241}Pu . ^{241}Pu является мягким β -излучателем ($E_{\text{max}}=20.8$ кеВ, $T_{1/2}=14.4$ лет), и в процессе распада переходит в ^{241}Am ($T_{1/2}=432\text{г}$), относительное содержание которого в глобальных выпадениях по отношению к $^{239,240}\text{Pu}$ составляет в настоящее время около 25% и увеличится за ближайшие 50 лет в два раза. Активность глобального ^{241}Am в окружающей среде постоянно увеличивается в связи с распадом ^{241}Pu / 1 /. Глобальное загрязнение почв умеренной полосы северного полушария составляет величину 0.02 Ки на км² (760 Бк на метр²) составляя β/α соотношение 12.5, современные (1993) исследования для Ирландии дают величину загрязнения в диапазоне 200-800 Бк на метр при среднем значении β/α соотношения $4.8\pm 0.6 / 149$ /.

Ниже приведены усредненные расчетные значения для содержания некоторых долгоживущих радионуклидов в активной зоне реактора 4-го энергоблока ЧАЭС на момент аварии (см. Таблица 3) / **Ошибка! Закладка не определена.** /. Откуда видно, что дополнительное поступление ^{241}Am в окружающую среду в результате аварии на ЧАЭС было относительно небольшим, но за счет распада выпавшего ^{241}Pu , в перспективе, станет более существенным и в максимуме составит около 3% от первоначального выпавшей активности ^{241}Pu (см. Рисунок 1.). Таким образом, через 50 лет после аварии на ЧАЭС активность ^{241}Am в окружающей среде, накопившегося в результате распада ^{241}Pu , будет в несколько раз выше активности $^{239}\text{Pu}+^{240}\text{Pu}$ при том, что

^{241}Am является более доступным и, следовательно, более опасным радионуклидом / 1 /. В настоящее время основная масса плутония находится в составе поверхностного слоя почвы и донных отложениях, причем в почве в зависимости от ее состава и источника поступления может быть до 10% плутония растворимого, т.е. доступного для усвоения растениями.

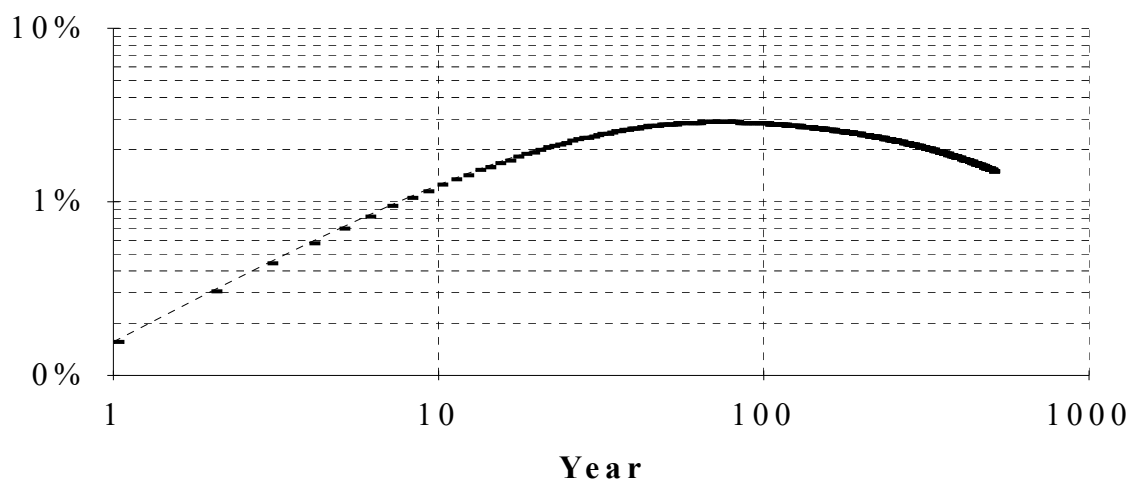


Рисунок 1. Относительное изменение активности ^{241}Am вследствие распада ^{241}Pu . По вертикали проценты, по горизонтали - годы.

Таблица 3.

Удельная активность долгоживущих биологически значимых радионуклидов в активной зоне реактора 4-го блока ЧАЭС на момент аварии / **Ошибка! Закладка не определена.** /

Радионуклид	Активность, Бк	Радионуклид	Активность, Бк
^{238}Pu	$9.4 \cdot 10^{14}$	^{241}Am	$1.37 \cdot 10^{14}$
^{239}Pu	$9.6 \cdot 10^{14}$	^{137}Cs	$2.6 \cdot 10^{17}$
^{240}Pu	$1.5 \cdot 10^{15}$	^{134}Cs	$1.5 \cdot 10^{17}$
^{241}Pu	$1.9 \cdot 10^{17}$	^{90}Sr	$2.2 \cdot 10^{17}$
^{242}Pu	$2.0 \cdot 10^{12}$		

Примечание: Соотношение активностей ^{241}Pu к сумме $^{238}\text{Pu} + ^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu}$ составляет около 59.

Метаболизм плутония в теле человека очень сложен и имеет целый ряд особенностей в зависимости от форм, пути и интенсивности его поступления / 1 /. Наиболее сложным является поведение плутония при ингаляционном

поступлении, причем очень существенно влияние размера вдыхаемых частиц / 22 /. Органами вторичного депонирования являются скелет, печень и почки, а химическая форма существенно влияет на коэффициенты распределения. Наиболее важной задачей изучения влияния изотопов плутония является оценка его пространственного распределения в поверхностном слое почвы.

Выводы

Выбросы в окружающую среду наиболее важных β -излучающих радионуклидов носят глобальный характер. Для обеспечения мониторинга чистых β -излучающих радионуклидов, какими являются тритий, ^{14}C , ^{90}Sr и ^{241}Pu , необходимо решение ряда общих задач регистрации β -излучения: радиохимическое выделение, регистрация в широком энергетическом диапазоне; снижение потерь энергии регистрируемого излучения за счет оптимизации измерения - 2π и 4π -геометрии; увеличение объема исследуемого образца путем концентрирования или других аналитических химических процессов, что соответствует подготовке исследуемых образцов, снижение уровня регистрации фона. Требуют решения также другие специфичные задачи: анализ сложных β -спектров, регистрация активности, осажденной на металлические подложки.

1.2 Методы регистрации β -излучения

1.2.1 Жидкостно-сцинтилляционный счет

Жидкостно-сцинтилляционный счет (ЖСС) представляет собой регистрацию ионизирующего излучения при помощи жидких сцинтилляторов (ЖС). Весьма существенным и наиболее важным достоинством ЖСС является 4π -геометрия измерения в силу того, что измеряемый образец и ЖС представляют собой одно целое, являясь частью детектора. Первоначально ЖСС использовался исключительно для измерения мягких β -излучателей, таких как тритий и ^{14}C . В дальнейшем были проведены исследования по анализу ^{90}Sr , ^{89}Sr и целого ряда изотопов Pu, Th, U, Ra, а также других α - и β -излучающих радионуклидов, что позволило расширить область применения метода. Обычный ЖСС имеет недостатки, которые делают его не очень

удобным для контроля объектов окружающей среды: относительно высокий фон, низкое энергетическое разрешение для α - и β -частиц, ограниченный объем образцов. Серьезную проблему может иногда представлять гашение сцинтилляций образцов.

Основные принципы работы ЖС.

В основе работы ЖС по определению С.Т.Пенг лежат следующие процессы / 39 /:

- поглощение кинетической энергии, выделяемой в ЖС при радиоактивном распаде;
- формирование возбужденного состояния в растворителе;
- передача энергии из растворителя в сцинтиллятор;
- эмиссия флуоресценции сцинтиллятора.

Механизм перехода энергии между молекулами растворителя и сцинтиллятора может быть описан моделями Birks-Conte / 40, 41 / и Voltz / 42, 43 /. Анализ этих моделей указывает направления для оптимизации работы ЖС, каждой компоненты ЖС. При этом, наиболее оптимальна организация излучения света в два этапа: первичный сцинтиллятор получает кинетическую энергию, излучает ее в виде света, а затем вторичный сцинтиллятор поглощает этот свет и переизлучает его в другом частотном диапазоне, наиболее оптимальном для регистрации фотоэлектронным усилителем (ФЭУ). При этом целесообразно использование высокоэффективных и низкошумящих ФЭУ. Проведены исследования огромного числа сцинтилляторов / 39 /. Наиболее широкое применение в качестве компонент ЖС нашли:

PPO	2,5-diphenyloxazole;
POPOP	1,4-bis-2-(5-phenyloxazolyl)benzene;
butil-PBD	2-(4-t-butylphenyl)-5-(biphenylyl)-1,3,4-oxadiazole;
TP	p-terphenyl.

Так, к примеру, при измерениях ^{14}C в бензоле обычно используются PPO и POPOP в качестве первичного и вторичного сцинтиллятора соответственно, хотя не менее эффективным является использование butil-PBD.

Многокомпонентные смеси позволяют достигать максимальной эффективности при измерениях как в органических, так и в водных смесях. При этом для подготовки ЖС используются различные растворители, что позволяет готовить жидкие, гелеобразные и многофазные образцы, а также регистрировать излучение непосредственно из фильтров, металлических дисков и т.п. В качестве растворителей используются толуол, бензол, диоксан, спирты и целый ряд других веществ.

На применение техники ЖСС рассчитаны и другие (нежидкие) сцинтилляторы. Так, недавно разработаны термопластичные сцинтилляторы / 44 /, которые изменяют свое физическое состояние, переходя в жидкое состояние при кратковременной температурной обработке, а затем снова становятся твердыми. Такие сцинтилляторы имеют высокую эффективность, хорошее энергетическое разрешение и, кроме этого, позволяют проводить α/β -разделение спектра / 45 /. Эти сцинтилляторы позволяют проводить измерения различных проб, в том числе мазков и твердых образцов (пыль, почва и т.п.), а также газов, например, радона / 46, 47 /.

Для некоторых целей, таких исследование спектров β -излучения горячих частиц, применимо использование твердых (кристалл или пластик) сцинтилляторов, выполненных в форме одного или двух цилиндров, помещаемых в стандартную измерительную вилу и измеряемых при помощи стандартной техники ЖСС / 48 /.

Гашение. Гашение образцов связано с тем, что проба и детектор представляют собой одно целое, а присутствие в ЖС как самой пробы так и различных примесей приводит к изменению условий регистрации спектра излучения. Природа примесного гашения: цветовая окраска и химическое воздействие примесей на работу ЖС.

Разработаны и используются следующие методы стандартизации образцов, которые позволяют проводить коррекцию эффекта гашения: метод внутреннего стандарта, метод внешнего стандарта, метод отношения каналов и метод двойного соотношения. Наиболее широкое распространение нашли два первых.

Метод внутреннего стандарта заключается в том, что исследуемый образец измеряется повторно, причем для второго измерения в образец вносится фиксированная активность измеряемого радионуклида для калибровки, которая намного выше измеряемой активности, что позволяет не учитывать измеряемую активность при калибровке. Этот метод наиболее прост, точен и эффективен, но он требует большого расхода калибровочного раствора и не позволяет проводить многократные измерения одних и тех же образцов. При этом предполагается, что внесение активности стандарта не изменяет состояния сцинтиллятора.

Метод внешнего стандарта заключается в том, что кроме регистрации спектра образца проводится регистрация спектра комптоновского излучения, регистрируемого в образце, при его облучении источником жесткого γ - или рентгеновского излучения / 49 /, называемом внешним стандартом. При этом спектр внешнего стандарта получается посредством двух измерений, как разница спектра пробы, облучаемой внешним стандартом, и спектра самой пробы. Метод внешнего стандарта разработан в 1962г. независимо Higashimura et al. и Fleishman and Glasunov / 50, 51 /. Анализ спектра внешнего стандарта позволяет формализовать процедуру определения степени гашения образца, что дает возможность проводить коррекцию гашения как в автоматическом режиме, так и записывать значение параметра гашения для последующего его использования при внешней коррекции. Как внутренняя (режим: СРМ/ДРМ, реализованный в большинстве жидкостно-сцинтилляционных счетчиков), так и внешняя коррекция осуществляется по т.н. "кривой гашения".

К недостаткам этого метода следует отнести зависимость регистрации комптоновского излучения от объема образца, толщины стенок вials и др. факторов. Тем не менее, при соблюдении требований по стандартизации образцов, этот метод позволяет проводить приемлемую коррекцию гашения. Очевидные преимущества метода внешнего стандарта послужили его детальной разработке и широкому внедрению в промышленных жидкостно-сцинтилляционных счетчиках.

Вызывает интерес возможность использовать для мониторинга гашения положение и форму пика в спектре космического мюонного излучения,

регистрируемого в приборе Quantulus 1220™ в режиме измерения радиоуглерода / 52 /. Достоинством такого метода является его продолжительность т.е., мониторинг уровня гашения осуществляется одновременно и в течении всего времени измерения пробы. Относительно невысокая скорость счета в пике мюонного излучения не имеет особого значения и не является недостатком, поскольку обычное время (несколько часов), применяемое для измерения радиоуглеродных образцов, вполне достаточно для набора статистически значимого пика.

Выбор счетной виалы.

Выбор счетной виалы играет очень важную роль, поскольку материал стенки виалы определяет эффективность перехода светового потока, скорость счета фона, а также является источником фото- и тормозных электронов в результате воздействия γ -излучения внешнего стандарта. По этой причине для проведения измерений, и в особенности рутинных, важно иметь идентичные оптические свойства и скорость счета фона используемых виал. Счетные виалы изготавливают из стекла, полиэтилена, нейлона, кварца и тефлона.

Стеклянные виалы достаточно практичны, но имеют относительно высокий фон за счет высокого содержания ^{40}K в стенках и невысокое энергетическое разрешение. Пластиковые - практичные, дешевые, имеют лучшие фоновые характеристики, но не являются достаточно герметичными и подвержены абсорбции некоторых реагентов. Кварцевые и тефлоновые виалы имеют самые лучшие характеристики, но при этом они и наиболее дорогие. Поэтому для рутинных исследований наиболее широко используются пластиковые, нейлоновые и стеклянные виалы с пониженным содержанием ^{40}K . Для проведения низкофоновых измерений, таких как измерения трития и ^{14}C , а также при регистрации Черенковского излучения, предпочтительно использование тефлоновых виал. Это же касается проведения низкофоновых α - и α/β -измерений. Наибольшее развитие получила разработка виал из тефлона для измерений ^{14}C . Линейная зависимость собственного фона виал от их объема обусловила разработку медно-тефлоновых (МТФ) виал объемом 20, 15,

7, 3мл / 53 /. В последнее время этот ряд дополнен милливиалами емкостью 0.3 мл, которые незаменимы для счета образцов малого объема / 54, 55 /.

Развитие ЖСС.

Реальное продвижение в применении ЖСС для контроля объектов окружающей среды может быть достигнуто только при совершенном оборудовании. Наиболее важный момент: использование в приборах как пассивной так и активной защиты, что дает возможность существенно снизить фон.

Другое направление совершенствования ЖСС - использование амплитудного анализа спектра вместо использования "слепых" заранее выбранных окон. Следующим шагом стало использование α/β -дискриминации, дающей, с одной стороны - возможность одновременной и независимой регистрации α и β -излучения, а с другой- позволяющей существенно снизить фон для регистрации α -излучения. Это возможно в силу того, что фоновое излучение дает при регистрации импульсы, аналогичные по форме β -излучению.

Таким образом, современные ЖСС обеспечивают возможность регистрации α - и β -излучения в широком энергетическом диапазоне с приемлемым низким фоном при возможности анализа спектра. При этом собственно α -спектрометр может иметь незначительные размеры, тогда как размеры β - или α/β -спектрометра определяются требованиями, предъявляемыми к низкофоновому β -спектрометру, т.е. эффективностью и размерами пассивной и активной защиты. Спектр излучения наиболее важных β -излучателей занимает энергетический интервал от единиц кэВ до нескольких МэВ. Поэтому прибор для регистрации β -спектров должен иметь либо легко осуществляемую поддиапазонную перестройку, либо логарифмирующий аналого-цифровой преобразователь, позволяющий регистрировать и отображать широкий диапазон энергий излучения. Второй вариант более предпочтителен, поскольку позволяет отображать и анализировать весь спектр одновременно.

В 1984 году появился ультранизкофоновый жидкостно - сцинтилляционный α/β -спектрометр Quantulus 1220™ фирмы Wallac. Достаточно дорогой, он включает в себя вышеперечисленные свойства современных комбинированных приборов / 53 /. Примерно в то-же время стали доступны близкие по классу приборы других фирм. Для таких часто проводимых типов измерений, как, например, определение возраста по ^{14}C , или измерение трития, была существенно увеличена точность измерения и снижен уровень МДА / 56 /. Многочисленные применения ЖСС для определения, например, ^{226}Ra , ^{222}Rn , и других естественных радионуклидов а также ^{90}Sr , ^{85}Kr , ^{99}Tc и др. ядерных продуктов, представляют все больший интерес. Как уже было отмечено выше, реализовать прибор только для α -спектрометрии значительно проще. Классическим примером жидкостно-сцинтилляционного α -спектрометра можно назвать **PERALS™** спектрометр, модель 8100AB фирмы ORDELLA, Inc. США / 57 /. Обладая небольшими размерами, он позволяет реализовать измерения α -излучателей в небольшом объеме пробы, около 1мл. Подготовка проб, ориентированная на экстракционные методы, способствовала разработке целого ряда специальных сцинтилляторов.

Следует отметить, что использование техники ЖСС для рутинного β -счета, а следовательно, и ее развитие, связано, прежде всего, с необходимостью измерения одного радионуклида или в крайнем случае двух, но существенно отличающихся по энергии. При этом практически в тени остается одно из направлений развития ЖСС, а именно анализ сложных β -спектров. Сами же задачи измерения нескольких β -излучателей в одной пробе обычно решаются путем усложнения радиохимических процедур и только для некоторых смесей провордилось прямое решение этой задачи / 58 /. В этом плане важным является развитие и применение β -спектрометрических методов определения смеси чистых β -излучателей, прежде всего: $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$ в присутствии ^{89}Sr , а также $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$ в присутствии других β - и гамма-излучателей / 59, 60 /, что всегда встречается в практике радиационного контроля.

Таким образом, по техническим характеристикам жидкостно-сцинтилляционный спектрометр Quantulus 1220™ является наиболее приемлемым для проведения анализа низких уровней β -загрязнения объектов окружающей среды.

Однако, в мировой практике остается нерешенной проблема измерения отдельного β -излучателя в присутствии других радионуклидов без применения специальных методов их радиохимического разделения. Эта проблема является предметом исследования применительно к указанным β -излучающим радионуклидам в рамках данной работы.

1.2.2 Черенковский счет

Принципы. Заряженная частица способна излучать электромагнитное излучение, известное как излучение Черенкова, когда она движется через прозрачную среду со скоростью V меньшей, чем предельная скорость света C в вакууме, но большей, чем ее фазовая скорость C/n в этой среде (n -показатель преломления среды) / 61, 62, 63, 64, 65 /. Поскольку скорость частицы больше, чем скорость передачи электромагнитных волн в окружающей среде, образуется волна эмиссии. Характерно, что конус эмиссии, сонаправлен с волнами данной частоты, излучаемыми под определенным углом в направлении движения заряженной частицы. Эти волны подобны волнам Маха, излучаемым сверхзвуковым самолетом или реактивным снарядом, или волнам, образующимися при движении корабля по воде. Противолежащий угол 2Θ конуса эмиссии является функцией энергии заряженной частицы и свойств среды и описывается выражением:

$$\Theta = \arccos(1/n\beta), \quad (1)$$

где, n -показатель преломления среды,

β -отношение скорости частицы к скорости света в вакууме.

Конус излучения Черенкова сжимается по мере снижения скорости движения заряженной частицы через вещество и исчезает в момент, когда скорость частицы становится равной фазовой скорости света в диэлектрической

среде. Условие, при котором происходит эмиссия Черенкова, определяется отношением $nb > 1$, из которого можно получить граничную энергию, зависящую от показателя преломления среды. К примеру, значения граничной энергии регистрации для воды, глицерина, насыщенного водного раствора NaI и Perspex, имеющих показатели преломления (n_D^{20}): 1.330; 1.449; 1.490 и 1.50, составляют соответственно 0.264; 0.195; 0.178 и 0.177 MeV / 63, 66 /. Таким образом, электроны β -излучающих радионуклидов, фотоэлектроны и электроны Комптона, получаемые при регистрации γ -излучающих нуклидов и имеющие энергию выше пороговой энергии для данной среды, можно измерить путем регистрации их Черенковского излучения / 39 /.

Ross / 67 / рассчитал выход фотонов Черенковского излучения в воде. Количество фотонов в данном спектральном диапазоне, обусловленное эффектом Черенкова, является относительно низким. Амплитуда оптических импульсов от излучения Черенкова сравнима с амплитудой импульсов от трития, но форма спектра зависит от энергии β -частицы и параметров прибора, таких как усиление, уровень дискриминатора, ширина окна и др.

Поскольку Черенковское излучение является ударной волной, содержащей компоненты всех частот с потоком энергии большим по направлению к фиолетовой области, то при использовании жидкостно-сцинтилляционных спектрометров для регистрации излучения Черенкова в целях получения высокой эффективности предпочтение отдается фотоэлектронным умножителям (ФЭУ) с кварцевыми окошками из-за их большей чувствительности к ультрафиолетовой части спектра. Фактически, фотокатоды стандартных ФЭУ при покрытии их слоем сцинтиллирующего материала могут увеличить эмиссию фотоэлектронов излучения Черенкова приблизительно в 3-4 раза / 68 /. Кроме энергии изотопа, показателя преломления и плотности дисперсии среды на эффективность влияют такие факторы, как материал виалы, размер образца и т.д.

Практические аспекты. Регистрация Черенковского излучения является дополнительной функцией жидкостно-сцинтилляционных спектрометров и

легко реализуема на современных жидкостно-сцинтилляционных спектрометрах. Для регистрации жестких β -излучателей в растворе этот метод имеет следующие преимущества / 69 /:

- высокую эффективность регистрации;
- относительно большой объем образца, до 22 мл;
- достижение низкого фона за счет использование схем совпадений и антисовпадений;
- подготовка образцов для бесцветных растворов;
- высокая концентрация кислот, щелочей и солей не отражается на работе;
- образец не изменяется при счете и может быть использован в других целях;
- относительно низкая стоимость.

Зависимость "объем-эффективность". Общее количество фотонов, даваемое Черенковским излучением, возрастает с увеличением длины пробега электрона в прозрачной диэлектрической среде. Большой объем или меньшая плотность среды дают лучшие результаты регистрации. При увеличении объема образца переход света может ухудшиться из-за наличия оптических загрязнителей в среде или ее низкой прозрачности. Харбер / 70 / получил максимальную эффективность в полиэтиленовых виалах при размере образца приблизительно 15 мл, но при больших объемах эффективность падала лишь незначительно, тогда как в стеклянных виалах наблюдалось большее уменьшение эффективности. С другой стороны, Francois / 69 / показал, что максимальная эффективность была получена в полиэтиленовых виалах с объемами 8-10 мл и 12-14 мл в зависимости от энергии излучения β -частиц измеряемых изотопов. Kampl and Blanchard / 71 / показали, что как соотношение каналов, так и внешнее стандартное соотношение каналов, применяемые для стандартизации, зависят от объема, но эффект изменения объема будет меньше, если объемы образцов будут относительно большими и приблизительно постоянными. Согласно утверждению этих авторов, образцы следует делать объемом 10 мл и выше, так

как образцы низкого объема показывают более значимые колебания эффективности от объема, что отрицательно сказывается на возможности выполнения стандартизации.

Выбор счетной виалы. Виалы для Черенковского счета выбираются по соображениям оптимизации объема пробы, преобразования света и уровня фона. Naviland and Bieber, / 72 / получили достаточно высокую эффективность счета ^{32}P при использовании полиэтиленовых виал. Пластиковые материалы обеспечивают большую диффузию света, что значительно уменьшает эффект поляризации излучения Черенкова и являются оптически более прозрачными в ультрафиолетовой области, чем стекло. Увеличение эффективности при использовании пластика происходит приблизительно в два раза и зависит от природы дисперсионной среды / 72, 73 /. Haberger / 69 / наблюдал, что пластиковые виалы дают линейное соотношение между скоростью счета образца и объемом. Это соотношение для стеклянных виал только приближается к линейному. Полиэтиленовые виалы, при прочих равных условиях, могут содержать большее количество исследуемого вещества, чем стеклянные, а кроме этого, дают более низкие значения для фона из-за отсутствия ^{40}K в стенках. Lauchli / 73 / получил самую высокую эффективность в нейлоновых виалах, но считает, что их неудобно использовать вторично из-за сложностей очистки. Для повышения точности счета расхождение между индивидуальными виалами должно быть минимальным. Эти требования особенно важны для Черенковского счета. Таким образом, пластиковые виалы являются наиболее подходящими для реализации измерения активности образцов методом Черенковского счета среди относительно дешевых виал.

Сдвиг длины волны. Черенковское излучение распространяется в среде в направлении движения электрона. Эффект направления вызывает различную реакцию в 2-х регистрирующих ФЭУ, расположенных в жидком сцинтилляционном спектрометре под углом 180° один к другому. Это явление можно исправить с помощью смесителя длины волны, который наносится на фотокатод ФЭУ. Он поглощает излучение Черенкова, а затем снова излучает

его в другом диапазоне / **Ошибка! Закладка не определена.**, 75 /. Использование вещества, сдвигающее длину волны, вызывает сдвиг всех спектров, включая спектр фона, который должен быть учтен при вычислениях. Предпочтительно использование жидких смесителей длины волны, вносимых в образец, которые поглощают свет и переизлучают его с большей длиной волны, увеличивая эффективность регистрации. Для этой же цели предложена технология использования специальных двухстенных виал, в которых, во внешней полости, применяют высокоэффективный жидкий наполнитель "wave shifter". Проба заливается во внутреннюю полость / 76 /. Смеситель используется многократно. Смесители длины волны дают различный эффект для излучения различной интенсивности: Черенковское излучение от низкоэнергетического β -излучения "удаётся" смещать в большей степени, чем высокоэнергетическое / 39 /.

Конкретное применение техники Черенковского счета развивалось прежде всего в направлении регистрации стронция-90+иттрия-90, стронция-89 / 77 /.

1.2.3 Пропорциональные счетчики

Это самый старый и хорошо испытанный метод измерений, используемый для анализа многих радионуклидов. Его популярность основывается на широком и давнем развитии, относительной простоте инструментария с приемлемыми параметрами. Эффективность регистрации β -частиц составляет около 40%, относительная защищенность от потенциального влияния слабых γ и α -излучателей, присутствующих в пробе. Современные низкоуровневые газопоточные пропорциональные счетчики имеют высокую электронную стабильность, низкий фон, составляющий около 1 имп/мин.⁻¹ / 58 /. Это позволяет проводить последовательное измерение большого числа проб с минимальной детектируемой активностью около 20 мБк при продолжительности измерения 100 мин. Их основные недостатки определяются невозможностью дискриминации между β -частицами различных энергий.

1.2.4 Измерения поверхностно-барьерным детектором

Полупроводниковый детектор, такой как кремниевый поверхностно-барьерный детектор, можно использовать для регистрации спектра β -частиц. Mink / **Ошибка! Закладка не определена.** / исследовал потенциальные возможности такого метода для измерения низких уровней активности, в том числе и для β -спектрометрии. Полученные результаты и выводы согласуются с данными предыдущих известных исследований, заключающихся в том, что метод позволяет получить высокое энергетическое разрешение, а предел детектирования может быть достаточно низким, т.к. типичный поверхностно-барьерный детектор имеет фон в несколько импульсов в день по сравнению с 1 импульсом за минуту, типичного для пропорциональных и других современных счетчиков. Однако этот метод имеет существенно меньшую эффективность по сравнению с другими рассмотренными. β -спектрометрия, использующая поверхностно-барьерные детекторы, имеет лучшие шансы, поскольку включает систему с практически нулевым фоном и очень высокой электронной стабильностью, свободную от других посторонних факторов, таких как эффекты гашения в ЖС. Слабым местом остается стандартизация подготовки образцов, зависимость от толщины слоя регистрации, точности измерений и т. д. / 79, 80 /.

1.2.5 Измерения кристаллическим сцинтилляционным детектором

При использовании тонких кристаллических детекторов (NaI, CsI и др.) в силу их различной чувствительности к β - и γ -излучению можно достичь приемлемого соотношения между эффективностью регистрации β - и γ -излучения в пользу β -излучения. При этом, в особенности, если применить систему защиты от фона, можно достичь относительно высокой чувствительности. Такая измерительная система может быть использована для реализации β -спектрометрического определения содержания компонент пробы, имеющей сложный состав β -излучателей. Аналогичным по применению является комбинированный детектор т.н. "фосфич", состоящий из нескольких

слоев кристаллического сцинтиллятора, работающих на один ФЭУ. Измерительные системы на основе таких детекторов используются для одновременных измерений α -, β - и γ -активности образцов / 81, 82, 83 /. Такие детекторы позволяют реализовать комбинированные системы широкого назначения, имеющие целый ряд возможностей, но в силу их универсальности не позволяют достигать максимальных значений эффективности и энергетического разрешения, свести к минимуму собственный фон.

1.3 Методы подготовки образцов для измерений

1.3.1 Тритий.

Поскольку тритий является мягким β -излучателем, его регистрация в объектах окружающей среды без предварительной подготовки обычно затруднена.

Для обеспечения оптимального измерения проб, содержащих тритий, они предварительно преобразуются и измеряются в форме воды НТО, Т₂О.

Пробы воды дистиллируются с добавлением слабого раствора марганцовокислого калия. Биологические и другие образцы сжигаются с конденсированием влаги. Указанные процедуры рассматриваются как обязательные для измерений трития. Природные уровни содержания трития в воде, как и в других объектах, обычно невысокие и за исключением выбросов, обусловленных испытаниями оружия и авариями на ядерно-энергетических установках, находятся на уровне, не превышающем $0.1 - 1.0 \text{ Бк}\cdot\text{л}^{-1}$. Для проведения измерений на таком уровне и в особенности при помощи обычной техники ЖСС, необходимо электролитическое обогащение пробы тритием. Обычно для этой цели используются многоступенчатые электролизеры.

В биологических образцах представляет интерес определение содержания трития в двух фазах: тритий, содержащийся в воде и тритий в составе органических соединений. Эти компоненты по разному влияют на формирование доз облучения. При возникновении задач отдельного измерения

указанных компонент метод подготовки проб сводится к вымораживанию влаги и последующему сжиганию обезвлажненного остатка.

Что же касается образцов воды поверхностных источников, Schonhofer / 88 / отмечал, что при современных уровнях содержания трития 2.0-10.0 Бк·л⁻¹ и выше, при использовании сверхнизкофоновое современного оборудования типа Quantulus 1220™ результаты по образцам, не дистиллируемым перед анализом, практически не отличаются от результатов по дистиллированным образцам. В этом случае погрешность составляет обычно - 2%, и не превышает - 5%, что дает возможность измерять образцы из окружающей среды очень быстро, практически без подготовки.

Для мониторинга трития в предлагаемой работе необходимо было решить следующие задачи: выбрать оптимальный вариант подготовки образцов, провести калибровку, позволяющую охватить возможный диапазон колебания гашения образцов, выполнить процедуры оптимизации сбора и обработки результатов измерений для расчета удельной активности проб.

1.3.2 Радиоуглерод

Область широкого применения радиоуглеродных исследований (датирования) дала возможность развивать как методы измерений, так и методы подготовки образцов. Анализ техники подготовки образцов проведен детально у Gupta and Polach Н., а также Арсланова Х. / 26, **Ошибка! Закладка не определена.** /. Становление современной технологии подготовки проб для радиоуглеродных исследований подробно анализируется у Арсланова / **Ошибка! Закладка не определена.** / и приводится ниже конспективно.

Подготовка образцов ориентирована на базовые методы измерений ¹⁴C: газопоточный счет и жидкостно-сцинтилляционный счет. Счетной формой для этих методов являются: двуокись углерода и бензол соответственно. Технологический процесс подготовки проб зависит от типа исходной пробы, ее количества и счетной формы. Сцинтилляционный метод предложили для счета естественного ¹⁴C Hayes и Arnold / 89, 90 /, что позволило существенно

расширить пределы датирования. Но настоящее широкое использование метод ЖСС для радиоуглеродного датирования получил после развития и совершенствования технологии синтеза из образцов соединений, наиболее пригодных для введения в состав ЖС. Речь идет о возможности получения бензола и этилбензола, являющихся хорошими растворителями сцинтилляторов / 91, 92, 93, **Ошибка! Закладка не определена.**, 95 /.

Счетная форма для регистрации ^{14}C должна удовлетворять следующим требованиям (Арсланов / **Ошибка! Закладка не определена.** /):

- иметь эффективный растворитель для ЖС;
- содержать в молекуле максимальное число атомов углерода из вещества;
- ее синтез должен проходить по простой методике с высоким выходом.

Применение таких разбавителей ЖС, как эфиры, спирты, парафины и др. углеводороды в качестве счетной формы, не нашло своего развития и широкого применения для датирования из-за сложности и трудоемкости получения, а также из-за низкого выхода процессов генерации. Весьма ограниченное количество этих веществ может быть введено в счетную пробу - до 30% без существенного понижения эффективности регистрации.

Максимальная чувствительность метода ЖСС достигается в случае, когда для подготовки ЖС используется растворитель, образованный полностью из углерода образца. Прежде всего речь идет о бензоле. В процессе подготовки бензола используется ацетилен. Развитию технологии синтеза ацетилена способствовало использование его для счета как в газопоточном счете, так и в ЖСС / **Ошибка! Закладка не определена.**, 16 /. В основе метода Зюсса лежит цепочка преобразований:



Высокоэффективные процессы (90-100%) не лишены недостатка изотопного фракционирования - $\delta^{13}\text{C}$, которое, однако, при соблюдении технологии и для однотипных образцов, воспроизводится и легко учитывается. Barker / **Ошибка! Закладка не определена.** / предложил метод на основе

карбида лития. Метод дает едва заметное фракционирование, которое для нескольких образцов древесины составило -23.5% -24.5% / 97 /. Предложен ряд других методов, адаптированных и ориентированных, в частности, на различные типы образцов / 98 /. Следует обращать особое внимание на материалы используемого оборудования и возможные эффекты его загрязнения. Обнаружены "эффекты памяти, состоящие в переносе остаточного количества ^{14}C из предыдущей (высокоактивной) пробы в последующую (низкоактивную) / 99, 100 /. Решение этой проблемы заключается либо в использовании титана в качестве материала камеры, либо в специальной обработке камеры - так называемое удревнение памяти / 99 /.

Процессы получения бензола из ацетиллена развивались от пиролиза Протопопов и Бутомо / 101 / и Тамерс / 102 / с выходом 5-10%, что при оптимизации позволяло довести выход до 30% / **Ошибка! Залка не определена.** /. Применение метода Реппе / 104 / позволило довести выход бензола до 50%, что позволило широко использовать ЖСС метод для радиоуглеродных исследований. Lutz / 105 / предложил для совершенствования методов получения бензола использование металлоорганических катализаторов. Арсланову / 106 / удалось усовершенствовать метод, увеличив скорость процесса тримеризации ацетиллена ($30-40 \text{ л}\cdot\text{час}^{-1}$) и выход до 80%. Исследования свойств катализаторов дали возможность вести дальнейшую модификацию и усовершенствование методов получения бензола с выходом до 95% / 107 /, а также выходом до 95-98% / 108, 109 / с достаточно низким количеством примесей, которое не превышает 0.03% / 110 /. Использование катализаторов практически не изменяет изотопического фракционирования / 111, 112 /.

Дальнейшие технологические операции по получению бензола сводятся к улавливанию его в охлаждаемой жидким азотом ловушке, а затем, после размораживания, сушке над металлическим натрием с последующей перегонкой методом вакуумной сублимации.

Для проведения радиоуглеродных исследований в предлагаемой работе необходимо было решить следующие задачи: разработать и изготовить несколько типов тефлон-алюминиевых виал: 0,8, 3 и 7 мл; провести калибровку для измерений во всех типах виал, охватывающую возможный диапазон колебания гашения образцов, подготовить процедуры для оптимизации сбора и обработки результатов измерений для расчета удельной активности проб.

1.3.3 Стронций-90

Широко используемые методы ориентированы на определение стронция в концентрациях $1-50 \text{ Бк}\cdot\text{кг}^{-1}$ в различных объектах, но они требуют около трех недель для полного лабораторного анализа / 56, 113 /.

В основе метода лежит разрушение образца посредством мокрого или сухого озоления твердых проб, выпаривание жидкостей и растворение матрицы пробы в кислоте и т.д. Пробы воды не требуют разрушения. Время на эту операцию зависит от количества пробы и типа матрицы. Меньшие пробы обычно растворяются относительно быстрее, большие пробы, с другой стороны, увеличивают порог обнаружения и требуют меньшего времени набора.

Определения обычно проводятся на основе химического выделения с последующим измерением ^{89}Sr , ^{90}Sr и ^{90}Y , каждого в отдельности. Анализы чаще всего выполняются по "нитратному методу", который по традиции реализуем во многих радиохимических лабораториях / 114 /. Он основан на различной растворимости Ca и Sr в концентрированной азотной кислоте. Метод имеет некоторые серьезные недостатки: для многочисленных стадий очистки проб требуется большое количество концентрированной азотной кислоты, влияющей на здоровье персонала и оборудование; следует выполнить ряд действий по осаждению, фильтрации и центрифугированию, что снижает производительность определения; надо использовать низкоуровневые газовые счетчики, что вызывает необходимость поправок на самопоглощение. Высокая стоимость одного анализа с перечисленными основными недостатками привели к попыткам разработки других методов определения стронция.

Для контроля химического выхода используют введение γ -эмиттера ^{85}Sr в качестве метки, увеличивая таким образом потенциальную ошибку измерений / 67, 115 /. Однако эта ошибка может быть уменьшена подстройкой параметров прибора с небольшим уменьшением эффективности счета ^{89}Sr и ^{90}Sr , т.о. использование ^{85}Sr допустимо для измерения очень низких уровней / 116 /. Вместо этого выход можно измерить с помощью нерадиометрических методов, таких как атомно-абсорбционный спектрометр, или простым гравитационным анализом, где также используется стабильный Sr в качестве носителя / 117 /. Попытки упростить процедуры приготовления образца делал Butler / 118, 119 /.

Varatta и Reavey / 120 / использовали трибутилфосфат (ТБФ) для экстракции ^{90}Y из некоторых проб окружающей среды для определения концентраций ^{90}Sr . В более поздних попытках Borcharding и Nies / 121 / непосредственно экстрагировали ^{90}Y из морской воды с помощью HDEHP в гексане. При для удаления ^{234}Th этом требуется выделение при помощи ионно-обменной смолы или соосаждение при помощи фосфата циркония. Метод также требует отсутствия других короткоживущих трехвалентных искусственные радионуклидов.

Suomela и Wallberg / 115 / использовали катион-обменную смолу (Dowex-50 Wx8) для непосредственного концентрирования нужных катионов в пробах молока, фракция стронция была очищена с помощью HDEHP-HCl экстракции и удалением ^{133}Ba с помощью соосаждения с Ba в виде хромата. С помощью этого метода результат для $^{89}\text{Sr}+^{90}\text{Sr}$ может быть получен за один день.

Bunzl и Kracke / 122 / предложили разделять ^{90}Sr от Ca с помощью оксалатного осаждения, когда присутствует избыток Ca в пробе. Ясно, что все типы проб, исключая воду, требуют значительной процедуры подготовки. Даже в случаях, когда экстракция с использованием HDEHP или ТБФ значительно уменьшает это время, данный метод работает успешно только тогда, когда хорошо известно состояние радиоактивного равновесия $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$.

Как сказано выше, для некоторых типов жидких проб можно получить радиохимический чистый ^{90}Sr или ^{90}Y на стадии разрушения пробы или сразу после этого, без использования разработанной схемы выделения. В большинстве же случаев требуется значительная радиоаналитическая работа для уменьшения вероятности какого-либо загрязнения.

Жидкостно-жидкостная экстракция. Harley / 114 / рекомендует в качестве быстрого метода экстракцию ^{90}Sr из водного раствора в ТБФ. Как указано ранее, этот метод, как и HDEHP экстракция, применим только когда ^{90}Y находится в равновесии со ^{90}Sr или точно известно их соотношение.

Может быть выполнена двухступенчатая экстракционная процедура, для чего сначала экстрагируется ^{90}Y как очистительная процедура, а затем, когда прошло достаточно времени для его накопления, реэкстракция для определения концентрации ^{90}Sr . Borus и Kovacs / 123 / и Kramer и Davis / 124 / использовали этот же подход при экстрагировании ^{90}Y с HDEHP в толуоле для определения ^{90}Sr в воде. В западной Германии в государственных лабораториях отдано предпочтение поглощению ^{90}Y на фильтрах, пропитанных HDEHP для анализа ^{90}Sr в поверхностных водах / 125 /.

Указанные методы используют только там, где требуется определение ^{90}Sr . Последующие методы позволяют выполнять одновременную экстракцию таких радионуклидов, как ^{137}Cs и химически-подобных элементов, таких, как Ba и Ca. Koprda и др. / 126 / экстрагировали ^{90}Sr и ^{137}Cs из золы, используя кобальтовый комплекс с 3,3'-commo- bis (undecahydro- 1,2-dicarbo- 3-closedodecaborate). Выделение ^{90}Sr потом выполняется с помощью полиэтиленгликолем с относительным молекулярным весом 300. Scansar / 127 / также использовал подобный полигедральный комплекс для экстракции Sr из мочи без озоления.

В некоторых публикациях описывалось использование макроциклического кроун-эфира для экстракции Sr. Kimura и др. / 128 /

использовали дициклогексил-18-короун-6 (DC18DC6) в хлороформе для отделения Sr от Ca в золе молока. Blasius и др. / 129 / выделяли Sr из растворов, используя DC18DC6 в 1,1,2,2,-тетрахлорэтаноле. Mikulaj и др. / 130 / использовали кроунэфир как носитель в эмульсии для выделения ^{90}Sr . Они получили коэффициент выделения Sr/Ca около 500 и эффективность стронция достигала 95-98%. Vaneu и др. / 131 / непосредственно выделяли ^{90}Sr из воды, используя DC18DC6 в дихлорэтаноле, выделение из молока требует дополнительного очищения с использованием катионной ионно-обменной смолы. Был получен хороший коэффициент очистки от многих мешающих радионуклидов, исключая ^{133}Ba . Wai и Du / 132 / описали процедуру разделения ^{90}Sr и ^{90}Y на бумаге, пропитанной ионизируемым (карбоксильная кислота) кроун-эфиром. Таким образом, экстракция кроун-эфиром позволяет избежать использования азотной кислоты для совместного выделения Sr и Ca, но она не дает значительной экономии времени, т.к. для удаления Ba требуются другие процедуры.

Твердо-жидкая сепарация. Катионные обменники часто используются для получения разделения между твердыми и жидкими фазами. В одном из ранних материалов Stanley и Kruger / 133 / описали поглощение ^{90}Sr и ^{90}Y на колонке с Dowex-50, где ^{90}Y был отделен от ^{90}Sr с помощью раствора цитрата аммония. Bryant и др. / 133 / использовали α -hydroxyisobutyric кислоту как элюант для дальнейшей очистки ^{90}Y от остальных продуктов в растворе.

Knapstain / 134 / выполнил ионно-обменную сепарацию Ca от Sr и Ba с помощью элюата с лактатом аммония. После необходимого времени накопления ^{90}Y выделяется для радиометрических измерений с помощью осаждения из стронциевой фракции. Позже, Hinzpeter / 135 / оптимизировал этот метод и обсудил возможные ошибки. Le Van So и др. / 136 / описали изучение поглощения некоторых элементов на диоксиде марганца. Успех этого метода зависит от количества других элементов в образцах, которое часто весьма варьируется. Stalbauer и др. / 137 / использовали

ионную хроматографию для очистки Sr от Ca в пробах молока, но перед этим они изменили отношение Ca/Sr к 1/1 с помощью "азотнокислотного" метода поскольку в золе молока соотношение Ca/Sr составляет около 200/1. Они используют прежде всего экстракцию ^{90}Y либо ТБФ, либо HDEHP в толуоле. Райтзамер / 138 / использовал смесь моно и ди-бутил-фосфата в толуоле.

Недостатки применения методов радиохимической подготовки образцов для исследования содержания стронция в пробах окружающей среды следующие: продолжительность процедур разрушения материала пробы, необходимость многократного повторения основных процедур, необходимость применения дорогостоящих и опасных реактивов для пробоподготовки, неизбежные задержки при подготовке образцов обусловленные распадом-накоплением иттрия-90.

Бета-спектрометрические методы анализа загрязнений окружающей среды. Измерение содержания ^{90}Sr - чистого β -излучателя в объектах окружающей среды связано с необходимостью химического выделения его от других β -излучающих радионуклидов. В подавляющем большинстве случаев для этого применяются радиохимические методы. Необходимость достижения равновесия с дочерним продуктом ^{90}Y удлиняет процесс подготовки проб до 2-х недель. Это затрудняет применение радиохимических методов для ведения мониторинга ^{90}Sr в реальном масштабе времени.

Применение β -спектрометрических методов определения ^{90}Sr , основанных на использовании принципа суперпозиции β -спектров компонент в спектре смеси, позволяет избежать процедуры радиохимической подготовки образцов, а следовательно существенно сократить время на их подготовку.

Следует особо выделить задачу совместного определения ^{90}Sr и ^{89}Sr , чему уделено внимание большого числа публикаций.

Использование кристаллических детекторов для β -спектрометрии ^{90}Sr . Применение метода описано в ранней литературе Дементьев / 34 /, Лукьянов /138/, Силантьев /138/ для оценки содержания ^{90}Sr в технологических

процессах и для объектов окружающей среды после аварии на Чернобыльской АЭС, Лось и др. / 36 /, V.A.Knat'ko et all. / 139 /, Vapirev and Hristova / 141 /, Palazzolo / 140 / для измерения $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$, в том числе в присутствии $^{144}\text{Ce}+^{144}\text{Pr}$, $^{106}\text{Ru}+^{106}\text{Rh}$, что прежде всего соответствовало измерению образцов почвы с МДА около 1-5 Бк на пробу. Это позволило вести измерения относительно высоких уровней загрязнения почвы ^{90}Sr в 30-км зоне и прилежащих районах. Так же успешно указанный метод был использован для концентрированных образцов (золы продуктов питания и растительности) - определение $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$ в присутствии $^{137}\text{Cs}+^{134}\text{Cs}$ и ^{40}K / 138 /. В настоящее время в Беларуси выпускается серийный прибор для определения содержания ^{90}Sr спектрометрическим методом.

Недостатком метода бета-спектрометрии является то, что применяемые детекторы неидеальны. Существуют искажения спектра и низкая эффективность регистрации, относительно высокий фон - космическое и гамма-излучение строительных материалов, принципиальная невозможность разложения сложного спектра на компоненты в случае из подобия, невозможность разложения спектров на компоненты при большой контрастности соотношения компонент. Приведенные принципы особенно важны для реализации бета-спектрометрических методов на основе жидкостно-сцинтилляционного и Черенковского счета.

Бета-спектрометрические измерения ^{90}Sr на основе техники ЖСС.

Упоминание о возможности использования ЖСС для β -спектрометрии ^{90}Sr можно найти у Дементьева / 34 /, правда при этом не приводится описания ни самой измерительной техники, ни значений МДА. Piltingsrud and Stensel / 59 / описали использование программы разложения спектра для анализа смеси $^{90}\text{Y}+^{90}\text{Sr}$ и ^{89}Sr , но ряд причин заставляет усомниться в возможности применимости подобных программ для определения низких уровней без применения низкофонового оборудования.

Спектрометрия Черенковского излучения в ЖСС для регистрации ^{90}Sr .

Randorf / 77 / описал применение техники Черенковского счета при помощи жидкостно-сцинтилляционных спектрометров для измерения смеси трех радионуклидов. Техника основывается на том, что эффективность регистрации ^{90}Sr , имеющего среднюю энергию около 200 keV, значительно ниже по сравнению с ^{89}Sr и ^{90}Y . Поэтому спектр $^{89}\text{Sr}+^{90}\text{Sr}$ в водной смеси почти полностью принадлежит ^{89}Sr . Усовершенствованные методы вычислений, недавно опубликованные Rucker / 143 /, дают лучшие значения МДА, равным $0.25 \text{ Бк}\cdot\text{л}^{-1}$ для ^{90}Sr и $0.35 \text{ Бк}\cdot\text{л}^{-1}$ для ^{89}Sr . Этот метод несколько подобен методу пропорционального счета смеси ^{89}Sr и ^{90}Sr , выделенной от ^{90}Y , где низкая эффективность детектирования ^{90}Sr дополнительно понижается еще более, за счет фильтра-поглотителя β -излучения. При этом требуется коррекция на накопление ^{90}Y .

Как было отмечено выше, жидкостно-сцинтилляционные спектрометры могут быть использованы для записи низкоуровневого Черенковского излучения, что более всего эффективно с применением выравнивания фоточувствительности ФЭУ / 67 /. Randolph / 77 / сначала измерял ^{89}Sr с помощью Черенковского излучения, а потом, с помощью добавления сцинтилляционного раствора в образец для определения уровня содержания ^{90}Sr .

Buchtella и Tschurlovits / 60 / использовали подобную методику, но делали третье измерение, добавив смеситель длины волны (2-лигноинамин-6,8-дисульфоник кислота) для получения лучшего разрешения между ^{89}Sr и ^{90}Y при измерении Черенковского излучения трех радионуклидов.

Regan и Tyler / 144 / сообщали об измерении ^{89}Sr и ^{90}Sr в воде, используя исключительно измерительную технику Черенковского счета. Измерения концентрации ^{90}Sr были основаны на повторном измерении ^{90}Y после достаточного времени накопления. Carmon / 116 / использовал подобный метод для измерения концентраций ^{89}Sr и ^{90}Sr , которые позже были разделены

экстраполяцией с помощью 4-6 измерений через 2 часа после отделения от ^{90}Y . Carmon и German / 145 / использовали такой же метод для измерения ^{90}Sr в присутствии ^{85}Sr , путем измерения Черенковского излучения накопленного ^{90}Y . Suomella и Wallberg / 115 / использовали метод для определения концентраций $^{89}\text{Sr}+^{90}\text{Sr}$ в молоке на уровне $0.2 \text{ Бк}\cdot\text{л}^{-1}$ с фоном $0.8 \text{ Имп}\cdot\text{с}^{-1}$. К сожалению, детали использованной измерительной стратегии неизвестны.

Из проведенных выше обсуждений ясно, что анализ спектров Черенковского излучения не может обеспечить определение концентраций ^{89}Sr и ^{90}Sr в отдельности в пробах, пока не накопится ^{90}Y . Эта ситуация подобна тому, что наблюдается в традиционной технике пропорционального счета. Если исключить меньшую чувствительность техники, регистрация Черенковского излучения имеет небольшое преимущество в том, что ^{89}Sr может быть измерен относительно свободно от накапливающегося ^{90}Y , т.о. не тратится время на осаждение и дальнейшую очистку осадка, как в случае пропорционального счета.

Для выполнения мониторинга стронция-90 в окружающей среде в рамках предлагаемой работы было уделено внимание решению следующих задач: калибровка спектрометра для измерений стронция-90 методом ЖСС и Черенковского счета; проведение стандартизации метода Черенковского счета и на ее основе разработка экспресс метода определения содержания стронция-90 в воде, позволяющего вести мониторинг в реальном масштабе времени. Разработан бета-спектрометрический метод для определения содержания стронция-90 в различных пробах окружающей среды.

1.3.4 Плутоний-241

Для цели определения содержания ^{241}Pu в объектах окружающей среды традиционно использование методов жидкостно-сцинтилляционного счета / 146, 147, 148, 149, 150, 151, 152 /. Находит применение разновидность ЖСС метода измерений α - и β -излучения плутония, основанного на традиционной технологии подготовки образцов для твердотельной α -спектрометрии путем

электроосаждения на стальные подложки с последующей регистрацией непосредственно с подложки при ее погружении в измерительную емкость со сцинтилляционной жидкостью в 2π -геометрии / 149 /. При этом удается проводить достаточно эффективную регистрацию практически незагашенных образцов неразрушающим методом, что позволяет сохранять подложки для последующих повторных исследований. Качество таких измерений зависит прежде всего от качества и воспроизводимости технологии подготовки проб, толщины слоя. Это требует использования высокого качества химреактивов, точности проведения всего подготовительного этапа и, что наиболее важно, большого опыта проведения этих работ.

Выводы.

По данным, изложенным в Главе 1, видно, что наиболее совершенными методами применяемыми для мониторинга бета-излучающих радионуклидов, составляющих загрязнение окружающей среды, являются современные методы на основе жидкостно-сцинтилляционного и Черенковского счета. Применение этих методов определяется конкретной рассматриваемой задачей, особенностями каждого радионуклида: энергией его излучения, химическими соединениями, поведением в окружающей среде, метаболизмом.

Классические методы определения бета-излучателей развивались в расчете на применение примитивных методов бета-счета (радиометрии) и предполагали присутствие в пробе только одного радионуклида или, в крайнем случае, этого радионуклида в паре с дочерним и были направлены на достижение этой цели. При этом измерительная задача сводилась к примитиву. Применение спектрометрии открывает возможности в целом ряде случаев за счет решения более сложной измерительной задачи, упрощать процедуры подготовки проб, а за счет этого уменьшать требуемое время на получение результата, вплоть до возможности вести мониторинг в реальном масштабе времени. Для других случаев применение бета-спектрометрии дает возможность вести более тонкую настройку - выбор участка спектра, контроль примесей, контроль гашения и т.д.

Для обеспечения рассматриваемой задачи мониторинга основных бета-излучателей в объектах окружающей среды на основе применения современного жидкостно-сцинтилляционного счета необходимо решить следующие задачи оптимизации общего порядка:

- использовать имеющиеся современные технологические и методические наработки, включая оптимизированные конфигурации приборов для измерения конкретных радионуклидов: трития, радиоуглерода и других радионуклидов;
- использовать (разработать и внедрить) наиболее оптимальные виалы;
- использовать современные сцинтилляторы, дающие возможность применять для измерения максимальное количество материала пробы, высокую эффективность, стабильность параметров при изменении температуры, воспроизводимость. Использовать современные жидкие сцинтилляторы, не имеющие в своем составе летучих высокотоксичных веществ;
- для измерения всех интересующих радионуклидов важную роль играет учет и коррекция гашения, применением прежде всего различных модификаций метода внешнего стандарта, включающих анализ спектра внешнего стандарта;
- оптимизировать отбор проб;
- оптимизировать процедуры записи и хранения информации, обсчета проб, ведение баз данных.

Кроме этого для применения ЖСС требуется решить ряд задач оптимизации измерений конкретных радионуклидов:

- тритий - выполнение калибровки для всевозможных вариантов использования виала-сцинтиллятор с учетом возможных интервалов гашения образцов, пробоподготовку направить на получение воды из возможных интересующих типов проб для обеспечения измерения трития только в виде воды;
- радиоуглерод - использовать оптимизированный метод подготовки образцов (счетной формы - бензола) для максимальной концентрации радиоуглерода, применение оптимизированной измерительной конфигурации с высоким

нижним энергетическим порогом, использовать низкофоновые медно-тефлоновые и алюминий-тефлоновые виалы;

- стронций-90 - выполнить необходимые калибровки для определения содержания ^{90}Sr в пробах окружающей среды традиционными методами (применение процедур радиохимической очистки при использовании ЖСС и Черенковского счета), разработать процедуры и методы экспресс-анализа на основе использования бета-спектрометрии и стандартизации метода Черенковского счета;
- плутоний-241 - выполнение калибровок для вариантов 4π -измерения в водной фазе при помощи эмульсионного сцинтиллятора, измерение экстрагированной активности проб в органических сцинтилляторах; 2π -измерения с металлических подложек.

Конкретные перечисленные задачи методического обеспечения и оптимизации жидкостно-сцинтилляционного и Черенковского счета являются предметом данной работы.

2. РЕЗУЛЬТАТЫ СОБСТВЕННЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ

Глава 2. ПРОГРАММА, ОБЪЕКТЫ, МЕТОДЫ ИССЛЕДОВАНИЯ

2.1. Программа исследований

На первом этапе исследований потребовалось выяснить возможности различных методов измерения β -излучения с тем, чтобы начать освоение и применение стандартных (простых и наиболее отработанных) методов, что прежде всего касается режима оптимизированного счета в окнах, регистрации всего β -спектра и режима CPM/DPM для жидкостно-сцинтилляционного счета. Это определило всю стратегию работы: пробоотбор, подготовка проб, стандартизация измерений. Выбор в качестве основного современного ЖСС метода продиктован рядом его достоинств: высокая эффективность, производительность, возможность автоматизации и стандартизации процедур / 53 /. Таким образом, стало возможным применение ЖСС метода определения трития в пробах воды, и в частности, без проведения дистилляции пробы / 88 /. Аналогичным является применение ЖСС метода для регистрации ^{14}C , ^{90}Sr и ^{241}Pu , но для определения этих радионуклидов необходимо применение сложных специфичных процедур химической подготовки образцов. В случае определения ^{90}Sr возможно применение вариантов либо Черенковского счета, либо метода β -спектрометрии - т.е. анализа сложного β -спектра / 34, 35, 36 /. Развитию и стандартизации Черенковского счета, а также разработке метода β -спектрометрии ^{90}Sr уделялось внимание на втором этапе работ. Что же касается измерений радиоуглерода, то применение нашла стандартная технология подготовки проб - синтез бензола и последующее измерение спектра с высоким значением нижнего энергетического порога / 153, 154 /. Оптимизация была направлена также на применение нескольких типов тефлоновых виал, что потребовало: изготовления тефлоновых виал: 3, 7, 15 и 20 мл / 53, 54, 55 /, разработки и изготовления 0.8 мл виал. Для проведения

измерений ^{241}Pu опробованы и проанализированы несколько методов регистрации: в водном растворе, в органическом растворе, с металлических подложек, которая включала выбор размера тefлоновых виал / 146, 147, 148, 149, 150, 151, 152 /.

На всех этапах исследований - от применения стандартных методов и разработки виал до разработки новых методов и их внедрения основными требованиями к исследованиям предъявлялись требования точности и надежности. Для обеспечения точности проводилась разработка единых методических подходов, метрологического обеспечения, способов сличения и интерпретации результатов исследований, включая участие в работах по интерсличению результатов исследований в рамках международных проектов / 155, 156, 157 /.

По мере освоения стандартных и разработки новых методов проводилось следующие работы:

- изучение содержания трития в источниках водоснабжения, осадках и в окрестностях АЭС;
- изучение содержания ^{90}Sr в воде и других объектах;
- изучение содержания радиоуглерода в растительности и других объектах;
- изучение содержания ^{241}Pu объектах окружающей среды;
- оценку доз облучения населения от β -излучателей по результатам исследований.

2.2. Методы отбора проб

Вода отбиралась в чистую емкость объемом не менее 1 дм.

Биологические материалы (молоко и моча) отбирались только в стеклянную чистую посуду.

Пробы почвы отбирались традиционным методом "конверта" с усреднением из 5-ти равноудаленных точек, глубина отбора составила 5 см.

Пробы однолетних растений для определения радиоуглерода отбирались в герметичные целофановые пакеты, просушивались естественным образом, после чего поступали на синтез бензола.

Пробы древесины для определения содержания радиоуглерода в годичных кольцах отбирались на небольшом расстоянии от населенных пунктов, на опушке леса или на лугу. Предпочтение отдавалось стволам с развитой кроной, в которых максимальна ширина колец. Проба, соответствующая одному годичному кольцу каждого ствола отдавалась на синтез бензола.

2.3. Методические особенности поиска и изучения радиоэкологических аспектов "горячих" частиц

В ближней зоне на расстоянии до 30 км от Чернобыльской атомной электростанции проводились работы по изучению количественных и качественных характеристик "горячих" частиц, попавших в окружающую среду в результате аварии на четвертом блоке ЧАЭС / 158, 159, 160, 161 /.

"Горячая" частица - это микроскопический объект, удельная активность которого на несколько порядков выше удельной активности почвы, в которой она обнаружена. Программа исследований, связанная с "горячими" частицами, включала два этапа: поиск частиц на обследуемых территориях и определение всех их параметров в лабораторных условиях. Пробоотбор проб почв на нетронутых с момента аварии территориях сопровождался работой по выявлению частиц, их отбору, анализу характеристик, созданию их банка - более 200 штук / 158, 159, 160, 161 /. Собственно частицы привлекались в данной работе для определения содержания ^{90}Sr и других β -излучающих радионуклидов спектрометрическим методом, а также исследования содержания ^{241}Pu и суммы α -излучающих изотопов плутония.

2.4. Определение содержания гамма-излучающих радионуклидов

Используемая стационарная гамма-спектрометрическая установка на базе оборудования фирмы ORTEC включала:

- полупроводниковые детекторы типа GEM-40220;
- спектрометрический буфер на 8192 канала в комплекте с необходимыми блоками;
- персональную ЭВМ типа IBM PC XT;

- пассивную защиту в виде чугунного домика с толщиной стенок 200 мм.

Программное обеспечение гамма-спектрометрической установки состояло из:

- MCA Emulation Software A63-B1 (ORTEC);
- GELIGAM A30-B1 (ORTEC);
- MAESTRO A53-B1 (ORTEC).

Основные параметры гамма-спектрометрической установки:

- диапазон регистрируемых энергий: 40-10000 кэВ;
- эффективность измерения по отношению к детектору NaI (Tl) по линии ^{137}Cs (661.66 кэВ) - 40 %;
- энергетическое разрешение по линии ^{60}Co (1332 кэВ) - 2.0 кэВ ;
- отношение пик/комpton - 55;
- минимально детектируемая активность при измерении в геометрии "Маринелли" объемом 1 дм и времени измерения 60 минут по линии Cs (661.66 кэВ) - 0.3 Бк·кг⁻¹.

Для измерений спектрального состава "горячих" частиц использовался полупроводниковый планарный детектор типа GLP-35360. Основные параметры установки:

- диапазон измеряемых энергий: 3-1000 кэВ;
- эффективность измерения по отношению к детектору NAJ(Tl) по линии ^{137}Cs (661.66 кэВ)- 35 %;
- энергетическое разрешение по линии ^{55}Fe (5.9 кэВ) - 360 эВ.

2.5. Альфа - спектрометрический метод определения изотопов $^{238},^{239},^{240}\text{Pu}$ в пробах окружающей среды

Определение плутония проводилось на основе полного разложения пробы в смеси HN и HNO с введением в качестве индикатора химического выхода ^{242}Pu с последующим концентрированием плутония на осадках фторида и гидроксида ниодима. Отделение плутония от смеси естественных и искусственных радионуклидов производилось ионообменно-

хроматографическим методом с последующим селективным электрохимическим выделением, в соответствии с рекомендациями ПсЯ-6710.

В дальнейшем мишень, на которую в виде монослоя был осажден плутоний, поступала на α -спектрометрию.

Установка для α -спектрометрических исследований включала: блоки фирмы "ORTEC" и "CANBERRA", США в составе: мультиплексор и анализатор фирмы "ORTEC"; линейные усилители; форвакуумные насосы; персональный компьютер и программное обеспечение. Требуемый уровень вакуума в камерах спектрометрических блоков (0.1-0.15 миллиметров ртутного столба) обеспечивался с помощью двух форвакуумных насосов. Необходимость исследования α -спектров низкой интенсивности (десятые-сотые доли Беккереля) предъявляют жесткие требования к значениям фона установки. Суммарная погрешность результата определения удельной активности $^{239,238}\text{Pu}$ зависит от содержания плутония в образце (см. Таблица 4.).

Таблица 4.

Зависимость суммарной погрешности определения $^{239,238}\text{Pu}$ от удельной активности образца

Диапазон определяемых удельных активностей $^{239,240}\text{Pu}$, Бк·кг ⁻¹	Суммарная погрешность, %
0.03 - 0.5	20
0.5 - 5.0	10
5.0 - 50	6

2.6. Жидкостно-сцинтилляционный α - и β -счет

Современный жидкостно-сцинтилляционный спектрометр может быть использован для измерения α - и β -излучателей. Для лучшего представления об использовании метода жидкостно-сцинтилляционного счета для задач регистрации α - и β -излучения представим основные моменты на схеме (см. Рисунок 2. и Таблица 5.).

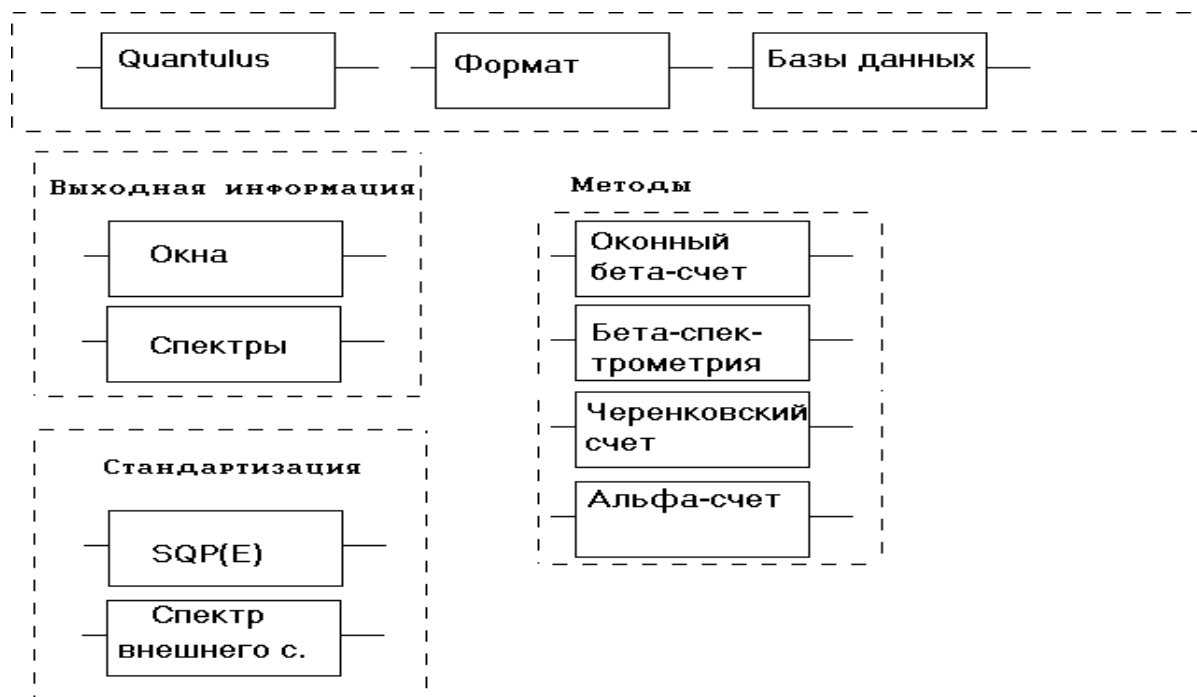


Рисунок 2. Схема использования метода жидкостно-сцинтилляционного счета для задач регистрации α - и β -излучения.

Таблица 5.

Реализация методов регистрации β -излучателей на основе использования ЖСС Quantulus 1220™

Радионуклид	ЖС	Виала	Геометрия	Счетная форма	Метод	Конфигурация	Анализ
^3H	HS3	Р,Т	4л	вода	β -счет	Н-3	Оконный
	LG QS ЖС-84	Р,Т	4л	вода			Оконный
^{14}C	добавк и PPO POPOP	Т 7мл Т 3мл Т 0.8мл	4л	бензол	β -счет	С-14	Оконный
^{90}Sr	HS3	Р,Т	4л	водная, органич.	β -счет Черенковский счет	Полный спектр	Оконный
	----	Р,Т	4л				Спектрометрия Оконный
^{241}Pu	HS2 ЖС-8 ЖС-1	Т 20 мл Т 7мл	4л 2л	водная, органич. мет. диск	β -счет	Н-3 Полный спектр	Оконный Оконный

Примечание:

HS3	- Optiphase Hisafe 3	HS2	- Optiphase Hisafe 2
LG	- Luma Gel	QS	- Quick Scint 400
P	- Пластик	T	- Тефлон

2.6.1. Оборудование

Используемое оборудование. Для проведения мониторинга β -излучателей использован УЖСС Quantulus 1220™, современный жидкостно-сцинтилляционный α -/ β -спектрометр, состоящий из микропроцессорного автономного устройства, контролируемого персональным компьютером, обеспечивающим обсчет образцов в автоматическом режиме по одной из восьми заданных программ, с одновременной загрузкой до 60 образцов. Quantulus 1220™ состоит из наносекундной низкошумящей электроники, содержащей минимальное количество радиоактивных элементов во всех деталях. Схемное решение предусматривает использование пассивной и активной защиты, причем пассивная защита выполнена из особоочистого свинца, а качество активной защиты, как известно, находится в непосредственной связи с временем отклика схемы (наносекунды) / 54 /. В схему прибора включены устройства, позволяющие реализовать селекцию сигналов по их амплитуде и длительности. Прибор имеет несколько оптимизированных стандартных конфигураций, позволяющих наилучшим образом проводить измерения для выбранных радионуклидов: тритий, углерод. Два sdвоенных многоканальных анализатора позволяют проводить регистрацию сигналов с возможностью записи до 5 спектров по каждой пробе, включая спектр внешнего стандарта. Встроенная система контроля гашения проб по внешнему стандарту позволяет определять и записывать параметр гашения проб (Spectrum Quench Parameter (External)) SQP(E). Для системы внешнего стандарта используется герметичная капсула, содержащая источник ^{226}Ra , который на время измерения спектра внешнего стандарта вводится в измерительную камеру / 53 /.

Сцинтилляторы. В качестве сцинтиллятора использовали Quickszint-400 фирмы Zinzer, OptiPhase "Hisafe 2", OptiPhase "Hisafe 3", LUMA GELL, Lipoluma, фирмы LKB Wallac и ЖС-1, ЖС-7, ЖС-8, ЖС-9, ЖС-13, ЖС-82, ЖС-

101, ЖС-107, ЖС-108 отечественного производства. Используются варианты подготовки гомогенных проб. При измерении содержания радиоуглерода в бензоле, бензол использовался в качестве растворителя, а подготовка выполнялась добавлением первичного сцинтиллятора РРО в количестве $4 \text{ г}\cdot\text{л}^{-1}$ и вторичного РОРОР в количестве $0.1 \text{ г}\cdot\text{л}^{-1}$.

Вials. Измерительные сосуды (виалы) играют очень важную роль при проведении измерений. В силу этого для решения задач оптимизации для каждого типа измерений проводилось опробование различных типов виал, с целью найти если не наилучшее, то, во всяком случае, компромисное решение. При проведении широкого мониторинга трития в поверхностных источниках компромисным является применение 20 мл полиэтиленовых виал (ПЭ), при условии их одноразового использования / 88 /.

Радиоуглеродные исследования проводились в МТФ виалах 3 и 7 мл стандарта Wallac, рекомендуемых, несмотря на их относительно высокую стоимость (применение многоразовое) / 26 /. С учетом линейной зависимости величины фона от объема виал для измерения образцов малого объема разработаны и изготовлены тефлоновые милливиалы (объем около 0.8 мл). Милливиалы емкостью 0.8 мл анализировались для 2-х конструкций как виалы, так и держателя (см. Рисунок 2 и Рисунок 3.):

Виала: 1) тефлоновая виала и крышка; 2) тефлоновая виала и пленка, прокладка из резины, гайка и винт.

Держатель виалы: 1) медный держатель и крышка; и 2) медный держатель и крышка + тефлоновый светонакопитель.

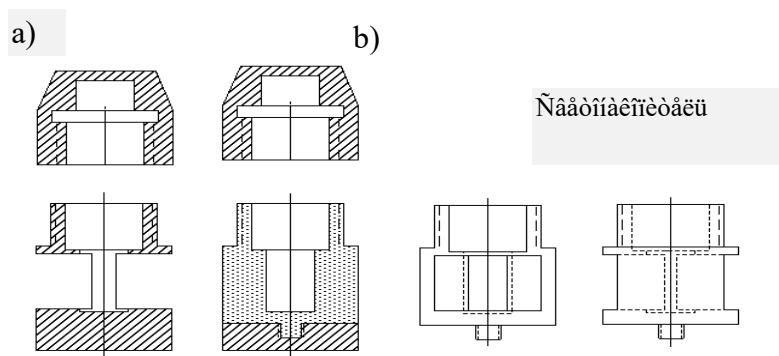


Рисунок 3. Держатель для виалы: а) медный держатель и б) медный держатель и крышка + тефлоновый светонакопитель.

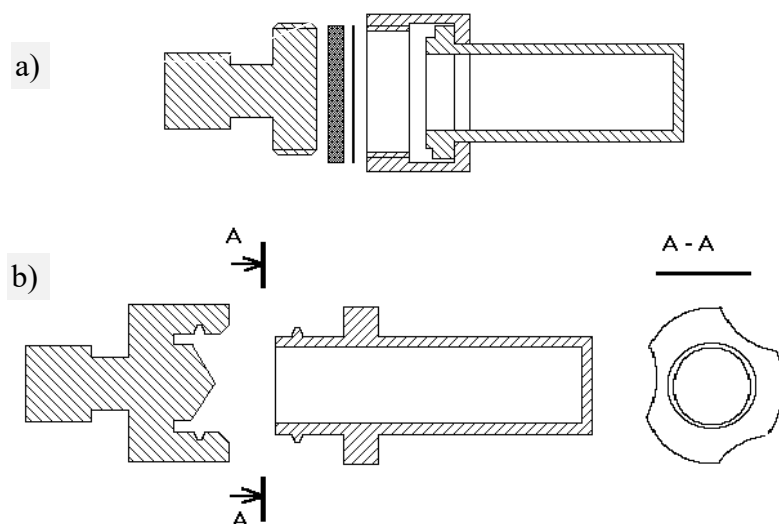


Рисунок 4. Миливиалы: а) тефлоновая виала и пленка, прокладка из резины, гайка и винт; б) тефлоновая виала и крышка.

Для оценки достоинств полученных виал были приготовлены калибровочные образцы и проведены измерения при помощи жидкостно-сцинтилляционного спектрометра Quantulus 1220™. Мы использовали РРО 4 г/л и РОРОР 0.1 г/л в качестве сцинтилляторов. Для всех измерений использован высокий уровень порога дискриминации. Результаты испытаний (см. Таблица 6 и Рисунок 4.) свидетельствуют о том, что параметры для указанных типов виал и держателей практически не отличаются между собой. Кроме этого, основные счетные параметры виал подчинены зависимости, характерной для всего семейства тефлоновых виал (см. Рисунок 4).

Продолжительный контроль массы заполненных виал проведен с целью выяснения величины потери бензола для двух типов виал, причем для имитации рабочего износа для виал первого типа проведена 100 кратная (сборка-разборка) виал и повторные испытания их герметичности в течении 20 дней. Уровень потерь бензола составил для первого типа виал до 0.1 мг в день и для второго типа до 0.5 мг в день, что может быть использовано для радиоуглеродных измерений. Очевидна существенно лучшая герметичность виал первого рода, что составляет уровень потерь ниже 0.5% за 20 дней хранения бензола.

Для измерения удельной активности ^{90}Sr практически во всех вариантах применимо использование ПЭ виал одноразового использования, в особенности при реализации Черенковского счета, хотя применение МТФ виал всегда дает выигрыш.

Таблица 6.

Параметры 0.8 мл тефлоновых виал при использовании ЖСС Quantulus 1220™ фирмы Wallac

Виала* объем (мл)	B** (CPM)	Стандарт N ₀ (CPM)	¹⁴ C эффективно сть (%)	FM [§]	FM [†] (E ² /BG)	t _{max}	t _{min}
0.8	0.10	8.96	82	23.2	67240	4907 2	77

* - использована масса бензола 0.75 г

** - Фон

N₀ - достижимая чистая скорость счета (CPM) для калибровочного образца ¹⁴C, 0.95 щавелевой кислоты

§FM - factor of merit (N₀/√B)

† FM - Figure of Merit (E²/B)

t_{max} - максимальный определяемый возраст (используя 3000-мин счетное время и 2-σ критерий)

t_{min} - минимальный определяемый возраст (используя 3000-мин счетное время и 1-σ критерий)

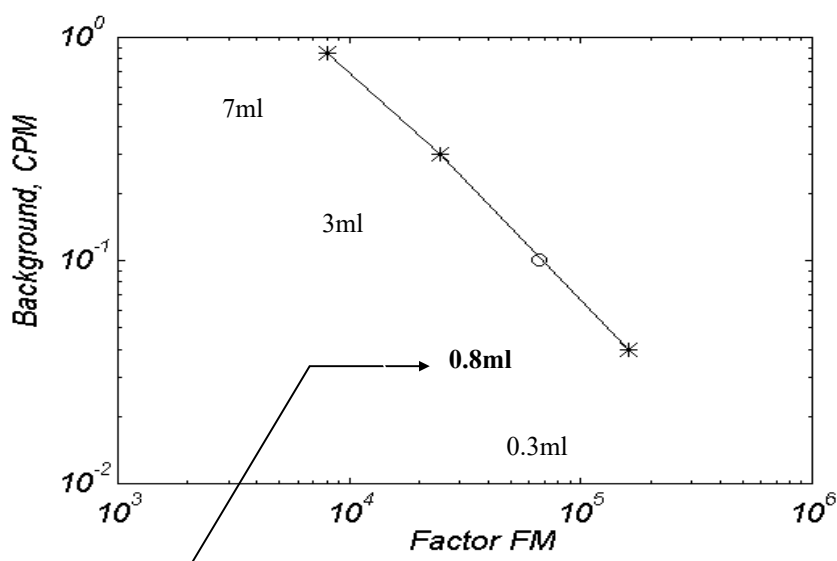


Рисунок 5. Параметры тефлоновых виал для счета радиоуглерода, 0.8 - вновь разработанная и остальные по работе Kaihola / 46 /.

Измерения ^{241}Pu , за исключением горячих частиц, проводилось в МТФ виалах, причем для реализации 2π -геометрии измерений с металлических подложек наиболее применимыми оказались 7мл МТФ виалы / 162, 38 /.

2.6.2. Определение трития

Определение содержания трития в воде проводили при помощи стандартной конфигурации Quantulus 1220™. Образцы готовили на основе сцинтилляционных смесей Quickscint-400 и Optifase Hisave 3, с использованием соотношения "проба-сцинтиллятор", равным 8:12 / 88, 162 /. Для учета степени гашения образцов были сняты зависимости эффективности регистрации излучения трития, а их параметры заведены в расчетную программу. Калибровка чувствительности проводилась при помощи стандартного раствора на основе тритированной воды с погрешностью удельной активности не более 3% и специального калибровочного набора Net-trick фирмы LKB-Wallac с погрешностью не хуже 1%. В качестве гасящей добавки использован четыреххлористый углерод. Обработка результатов в автоматическом режиме проводилась по трем "окнам", что дало возможность выявлять и идентифицировать сбои и ошибки определения. Трехоконный

режим анализа спектров позволяет обнаруживать влияние на регистрацию трития процессов хемилюминесценции, а также наличия в пробе других радионуклидов. Автоматические вычисления производятся с учетом гашения пробы и для наиболее оптимального участка спектра. Подготовлен пакет программ для автоматической обработки результатов измерения проб, реализующий накопление результатов в виде файла базы данных. Минимальная детектируемая активность при измерении трития составляла 5.1 и 1.1 Бк·л⁻¹ для времени измерения образцов 100 и 500 минут соответственно. Для предварительной обработки данных использована приборная программа (см. Рисунок 6.), где приведен пример расчета активности проб при помощи приборной программы.

Предварительные исследования подтвердили возможность измерять часть проб без их дистиллирования, как это предложил Schonhofer / 88 /. Это позволило ускорить измерения образцов при проведении обширного мониторинга трития в поверхностных источниках. Дополнительная ошибка обусловленная этим, в редких случаях доходит до 5%.

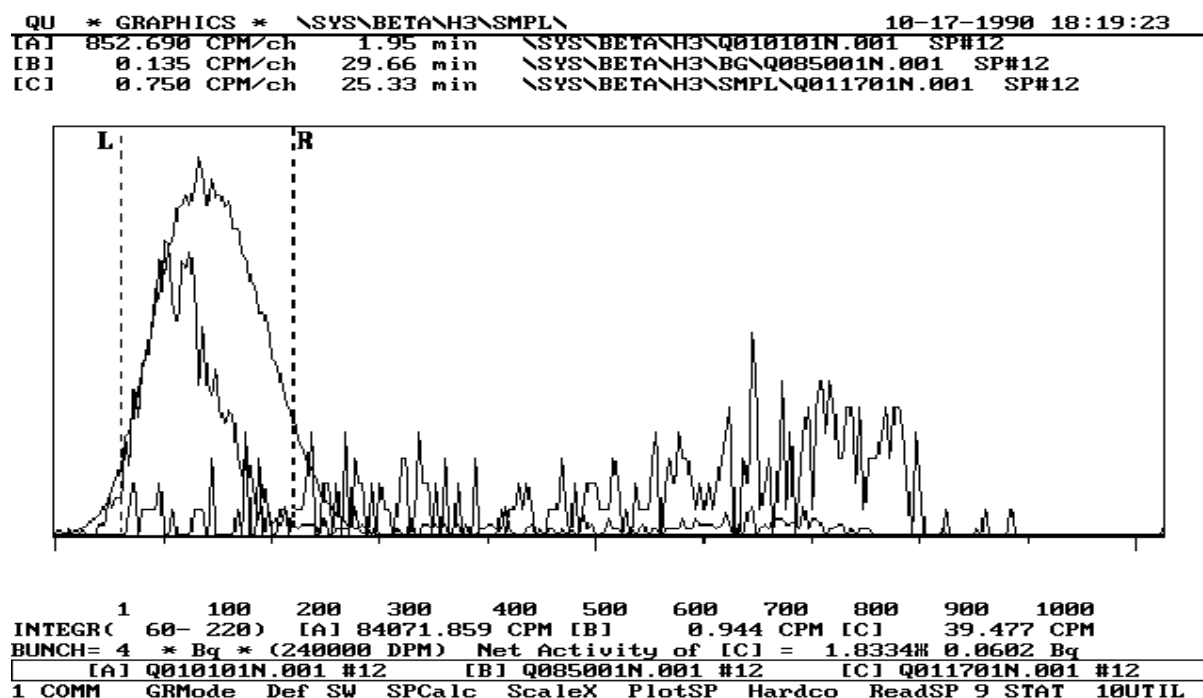


Рисунок 6. Пример расчета удельной активности трития в пробах воды.

Ежегодно проводились сличение результатов с результатами ПГО "Севурггеология", причем как при помощи калибровочных, так и обычных образцов в широком интервале активности, где приведены результаты одного из таких сличений (см. Рисунок 7.). Видно, что результаты практически совпадают для интервала активности выше 10 Бк на литр. Колебания относительно корреляционной кривой на уровне ниже 10 Бк на литр симметричны, т.е. определения таких уровней активности не имеют взаимной систематической ошибки, а сами колебания объясняются недостаточной статистикой измерения (время измерения 120 минут).

Содержание трития в воде определяли радиометрическим и спектрометрическим методами. Подготовка проб для исследования включала:

- для проб воды - дисцилляцию (поступающие на измерения пробы подвергаются вакуумной перегонке);
- для биологических проб (мочи) - обесцвечивание, дисцилляцию.

Образцы готовили на основе отечественной сцинтилляционной смеси ЖС-8 при соотношении "проба-сцинтиллятор" 1:10. Использовались полиэтиленовые виалы емкостью 20 мл. Для анализа малоактивных проб применяли импортные сцинтилляционные смеси Quicksint 400 и Optifase Hisave 3, что позволяло использовать соотношение "проба-сцинтиллятор", равное 8:12.

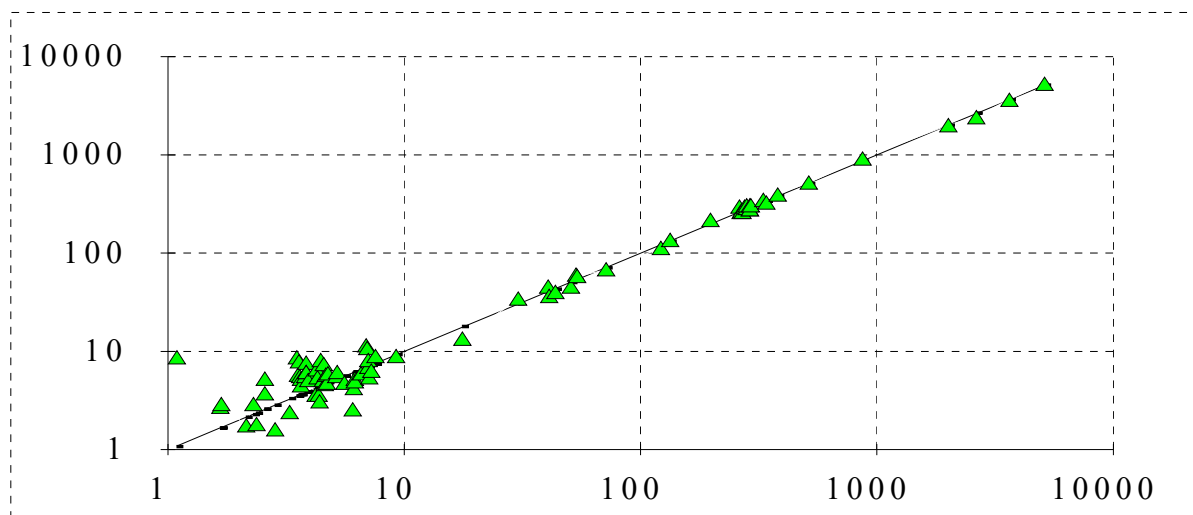


Рисунок 7. Сравнение результатов измерения трития в воде: по горизонтали - наши результаты; по вертикали - результаты ПГО "Севургеология" измерения выполнены на ультранизкофономом ЖСС Quantulus 1220™).

2.6.3. Радиоуглеродные исследования

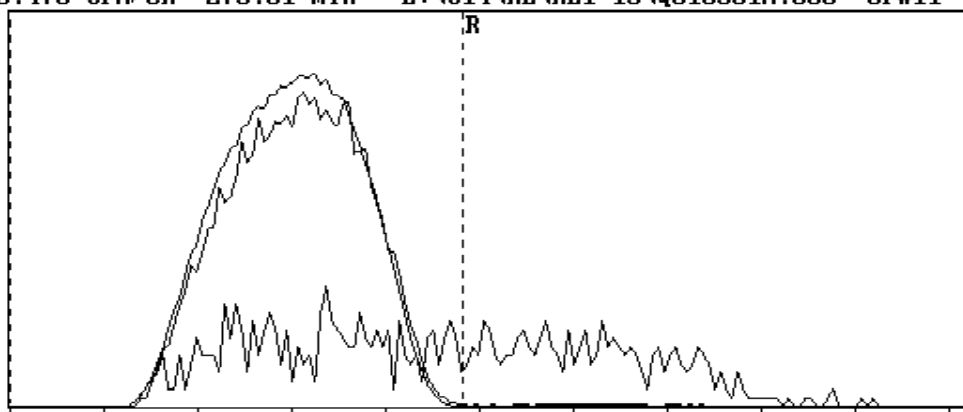
Для подготовки образцов к определению содержания радиоуглерода использованы современные методы / **Ошибка! Закладка не определена.**, 163 /. Образцы графита очищались от продуктов деления. Счетная форма (измеряемый образец) готовилась в виде бензола. Образцы сосны разделялись на годовые кольца. Бензол был синтезирован из целлюлозы, очищенной от органических примесей / 163 /. Экстракция органических веществ из древесных образцов проводилась в аппарате Сокслета в спиртово-бензольной смеси в соотношении (2:1) в течении 24 часов. В качестве сцинтилляционных добавок использовались РРО (4 г·л⁻¹) и РОРОР (0.1 г·л⁻¹) / **Ошибка! Закладка не определена.** /.

Измерения проводились на низкофономом жидкостно-сцинтилляционном спектрометре Quantulus 1220™ фирмы Wallac. Расчеты возраста образцов выполнены с использованием приборной программы, с учетом степени разбавления образцов и с коррекцией изотопического фракционирования (см. Рисунок 8.), где приведен пример расчета ¹⁴C возраста образцов. Абсолютная калибровка прибора выполнена на основе стандарта, содержащего 5-кратную концентрацию ¹⁴C относительно современного уровня (500% Modern). Кривая "гашения" снята в стандартных виалах на органическом стандарте (C-14-O) активностью 100000 DPM.

```

QU * GRAPHICS * E:\C14\RL\RL1-15\          07-19-1993 11:20:49
[A] 1.506 CPM/ch 1778.07 min F:\WORK\C14\7ML\5XH_CLQ011901N.000 SP#11
[B] 0.010 CPM/ch 770.67 min F:\WORK\C14\7ML\5XH_BGQ022201N.000 SP#11
[C] 0.476 CPM/ch 273.01 min E:\C14\RL\RL1-15\Q010501N.000 SP#11

```



```

1      100  200  300  400  500  600  700  800  900  1000
INTEGR( 1- 483) [A] 248.469 CPM [B] 0.511 CPM [C] 72.992 CPM
BUNCH= 6 * Age* Sample is 124.1e 0.9 % MODERN.

```

```

[A] Q011901N.000 #11 [B] Q022201N.000 #11 [C] Q010501N.000 #11
1 COMM 2GRMode 3Def SW 4SPCalc 5ScaleX 6PlotSP 7Hardco 8ReadSP 9 STAT 10UTIL

```

Рисунок 8. Пример расчета радиоуглеродного возраста древесных колец.

2.6.4. Определение стронция-90

Традиционный подход.

Измерение содержания ^{90}Sr в объектах окружающей среды связано обычно с необходимостью химического выделения его от других β -излучающих радионуклидов, поскольку он является чистым β -излучателем. В подавляющем большинстве случаев решение этой задачи связано с применением радиохимических методов очистки пробы от примесей с последующим измерением образца химически выделенного ^{90}Sr или ^{90}Y / 113 /. Необходимость достижения равновесия с дочерним продуктом ^{90}Y удлиняет процесс подготовки проб до 2-х недель. Поэтому радиохимические методы неприменимы для ведения мониторинга ^{90}Sr в реальном масштабе времени. Применение β -спектрометрических методов определения ^{90}Sr , основанных на использовании принципа суперпозиции β -спектров компонент в смеси, позволяет избежать процедуры радиохимической подготовки образцов и существенно сократить время на подготовку образцов и получение результатов / 35, 36, 139, 164 /. В работе использовалось несколько способов измерения ^{90}Sr . Приводим данные сравнительные оценки различных методов, реализованных на приборе Quantulus 1220™ (см. Таблица 7.) / 165 /.

Таблица 7.

Сравнительная оценка реализации различных методов определения ^{90}Sr
ЖСС Quantulus1220™ / 165 /

Метод измерения	Радиометрическое качество	MDA*, мБк на пробу	
		100 мин	500 мин
	$\text{FOM} = E^2/V$		
По Черенковскому излучению	6367	6.3	2.8
ЖС, широкое окно	17136	3.8	1.7
ЖС, узкое окно	5604	6.7	3

Примечание: * - (МДА) минимальная детектируемая активность;

А - 10 мл 0.5М солянокислого раствора;

Б - 4 мл 0.5М солянокислого раствора с 6мл Quickscint-400;

В - 4 мл 0.5М солянокислого раствора с 6мл Quickscint-400.

Во-первых, измерение ^{90}Sr проводилось прямо после смешивания полученного в результате химического выделения кислого раствора с подходящим гелеформирующим сцинтилляционным коктейлем. Образец при необходимости повторно замерялся после установления равновесия с дочерним ^{90}Y , что повышало эффективность.

Во-вторых, измерение ^{90}Sr проводилось после установления равновесия с дочерним ^{90}Y по Черенковскому излучению. Несмотря на то, что МДА в данном случае выше (см. Таблица 7.), при этом дополнительно исключались любые возможные помехи от β -излучателей низких энергий и гамма-излучателей.

Наиболее приемлемым методом является первоначальное измерение ^{90}Y в равновесии по Черенковскому излучению, затем повторное измерение в смеси со сцинтилляционным коктейлем. Это обеспечивает хороший контроль результатов. В случае необходимости быстрого получения результатов, ^{90}Sr может измеряться сразу после выделения с гелеобразующим коктейлем. Повторное измерение после установления равновесия позволяет проводить хороший контроль.

Смеси. Для смеси радионуклидов (как, например, ^{90}Sr , ^{144}Ce , ^{106}Ru с их дочерними продуктами и ^{134}Cs , ^{137}Cs) можно проводить определение ^{90}Sr из суммарного β -спектра, вычитая β -вклад других нуклидов с использованием результатов гамма-спектрометрии этих проб. Возможны два варианта: измерение активности в жидких пробах органического происхождения (моче, молоке и т.д.) и в пробах почвы, выделяя радионуклиды в виде водного раствора. В первом случае в рассмотрение следует принимать ^{90}Sr изотопы ^{137}Cs и калий-40. Во втором случае в пробе будут присутствовать ряд других радионуклидов - ^{144}Ce , ^{106}Ru . Приводим результаты специально проведенных измерений нескольких жидких проб на Quantulus 1220TM и гамма-спектрометре (см. Таблица 8). Полученные результаты подтверждают принципиальную возможность проведения анализа описанным методом, что использовалось нами в отдельных случаях.

Таблица 8.

Содержание радиоактивных элементов в жидких пробах, полученное при помощи β - γ -декомпозиции

Радионуклид	Номер пробы и ее активность, Бк на литр						
	1	2	3	4	5	6	7
^{144}Ce	-	15.5	9.4	13.5	-	-	-
^{134}Cs	0.8	2.5	1.8	3.6	1.9	2.9	-
^{137}Cs	1.5	11.2	2.7	8.5	19.6	16.9	23
^{106}Ru	-	11.5	12.6	-	-	-	-
^{90}Sr	388.8	310.1	59.8	12.6	492.3	286.6	213.7

Примечание: Пробелы в значениях таблицы соответствуют МДА γ -спектрометра ($\sim 0.2 \text{ Бк}\cdot\text{л}^{-1}$)

Стандартизация метода определения ^{90}Sr по Черенковскому излучению.

Регистрации Черенковского излучения при помощи современных жидкостно-сцинтилляционных счетчиков (ЖСС) используется прежде всего для измерения содержания $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$ в объектах окружающей среды. Поскольку приборный спектр Черенковского излучения лежит в

низкоэнергетической области, при его регистрации весьма важен учет "гашения" за счет присутствия даже минимального количества гасителей в пробе. Параметр гашения SQP(E), определяемый по спектру внешнего стандарта и применяемый в современном ЖСС Quantulus 1220™ для учета и коррекции влияния "гашения" пробы при измерениях на основе сцинтилляторов, неприменим для Черенковского счета, поскольку в этом случае он не отражает изменения "гашения". Необходимость проведения рутинных измерений ограничивает время анализа одного образца и требует выполнения автоматизации всех проводимых процедур. Проблема стандартизации измерений активности ^{90}Sr по Черенковскому излучению во многих типах образцов делает невозможным применение процедур экспрессной подготовки проб, таких как концентрирование, например, для проб воды, поскольку экспрессная подготовка проб может приводить к широким колебаниям эффективности регистрации β -излучения. По нашим данным для $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$ в пробах воды эти колебания могут составить от 35 до 65%. Процедуры стандартизации для Черенковского счета практически не разработаны, в отличие от методов жидкостно-сцинтилляционного счета, а это неизбежно требует выполнения стандартизации на этапе подготовки проб за счет усложнения и удорожания процедур / 39, 88, 77, 143, 145 /.

Нами предложен метод СРМ(External) для стандартизации измерений, выполняемых на низкофоновом жидкостно-сцинтилляционном спектрометре Quantulus 1220™. Помимо измерения спектра Черенковского излучения каждой пробы измеряется спектр внешнего стандарта, который используется для стандартизации. Установлено принципиальное существование зависимости скорости счета образца от скорости счета внешнего стандарта под влиянием "гашения". Реализация метода заключается в определении параметров зависимости скорости счета образца от скорости счета внешнего стандарта под влиянием "гашения" для каждого из радионуклидов, предполагаемых к регистрации. Аналогичная зависимость определяется для фоновой пробы. Полученные зависимости используются при обсчете активности проб для

определения значения эффективности регистрации и скорости счета фона для каждого образца по определенной для него скорости счета внешнего стандарта. Для определения указанных зависимостей в качестве гасителя применен раствор треххлористого железа.

Выполнены измерения калибровочных образцов. Снятые зависимости для $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$, ^{137}Cs и ^{40}K , а также для проб фона линейны. Особенности измерения эффективности регистрации, определенных для образцов $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$, ^{137}Cs и ^{40}K , а также скорости счета фоновой пробы представлены ниже (см. Рисунок 9.). Отметим, что для выполнения измерений по каждому радионуклиду и фону использовались по несколько образцов, т.е. дисперсия результатов включает компоненту, обусловленную воспроизводимостью внесенной активности образцов и индивидуальным разбросом характеристик виал (толщина стенок). Серия аналогичных измерений проведена для тефлоновых виал (см. Рисунок 10.)

Анализ полученных результатов позволил установить параметры корреляционной связи эффективности регистрации β -излучения и фона от скорости счета внешнего стандарта. Статистически достоверно описание линейной моделью:

$$Y = A * X + B \quad (2)$$

где, Y - искомая величина,

X - скорость счета внешнего стандарта в измеряемой пробе
(CPM_EX),

A и B - параметры функции аппроксимации, (см. Таблица 12.)

Статистический анализ зависимостей показал, что с высокой степенью корреляции: 0.994, 0.98, 0.992 и 0.984 эффективность регистрации образцов $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$, ^{137}Cs и ^{40}K , а также скорости счета фоновой пробы линейно зависят от скорости счета внешнего стандарта этих проб. Получены аналогичные зависимости для тефлоновых виал (см. Рисунок 10. и Таблица 12.)

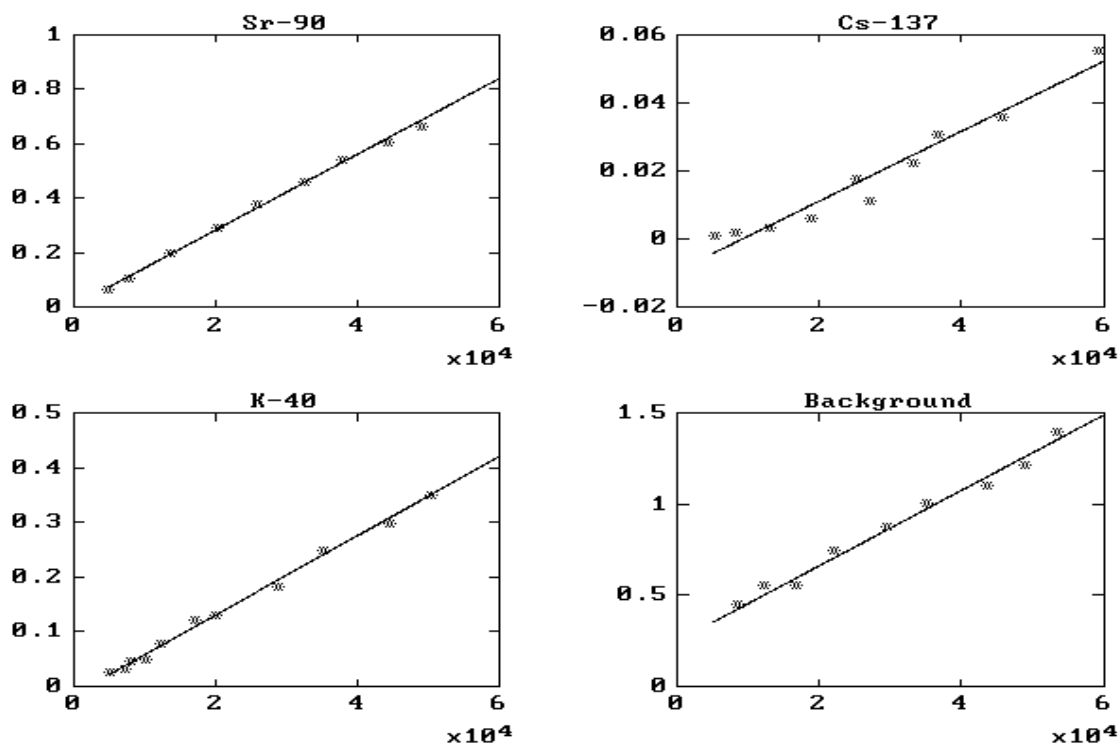


Рисунок 9. Зависимости эффективности регистрации образцов $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$, ^{137}Cs и ^{40}K и скорости счета фоновой пробы ($\text{имп}\cdot\text{мин}^{-1}$) при регистрации Черенковского излучения (Полиэтиленовая виала, объем пробы 20мл). По вертикали: эффективность регистрации, (относительные единицы) - а) - $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$; б) - ^{137}Cs ; в) - ^{40}K ; г) - скорость счета фона ($\text{имп}\cdot\text{мин}^{-1}$). По горизонтали - скорость счета внешнего стандарта ($\text{имп}\cdot\text{мин}^{-1}$).

Из полученных данных видно, что эффективность регистрации $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$ в среднем в 1.7 и в 60 раз выше, чем эффективность регистрации ^{40}K и ^{137}Cs соответственно. Что же касается количественного сравнения характеристик **FOM** (Figure of Merit), видно, что тефлоновые виалы существенно выигрывают, (см. Рисунок 11., верхняя кривая).

Предложенный метод стандартизации процедуры регистрации Черенковского излучения - CPM(External) позволяет реализовать экспрессный метод определения ^{90}Sr , использующий упрощенные методы подготовки проб, а следовательно, он наиболее дешевый. Кроме того он, как и любой другой

метод на основе Черенковского счета позволяет использовать пробы для последующих других анализов.

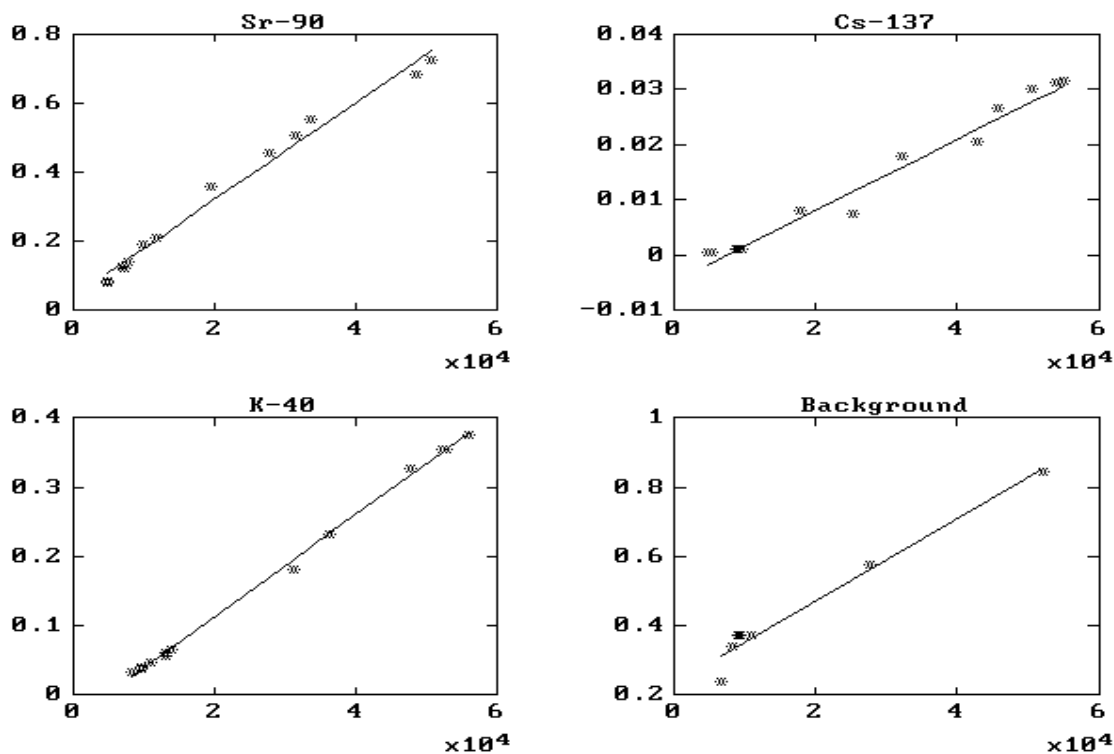


Рисунок 10. Зависимости скорости счета фона и эффективности регистрации ряда β -излучателей от скорости счета их внешнего стандарта при регистрации Черенковского излучения в 20 мл тефлоновых виалах. По вертикали: - скорость счета фона (имп.мин⁻¹) а); эффективность регистрации (относительные величины)- б) - $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$; в) - ^{137}Cs ; г) - ^{40}K ; По горизонтали - скорость счета внешнего стандарта (имп.мин⁻¹).

Таблица 9.

Параметры функции зависимости скорости счета фона и эффективности регистрации образцов от скорости счета внешнего стандарта этих проб при измерении Черенковского излучения. Проба емкостью 20 мл в полиэтиленовой и в тефлоновой виале

Материал виалы	Тип пробы	А	В
Пластик	$^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$	1.39e-05	0.0065
	^{137}Cs	1.02e-06	-0.009

	40К	7.09e-06	-0.012
	Фон	2.07e-05	0.25
Тефлон	90Sr+90Y	1.41e-05	0.040
	137Cs	6.42e-07	-0.0047
	40К	7.41e-06	-0.036
	Фон	1.18e-05	0.23

Таблица 10.

Среднегодовое значение удельной активности некоторых радионуклидов в воде р.Днепр за 1992 год (Бк·л⁻¹)

Cs-137	K-40	Sr-90
0.08±0.03	0.15±0.06	< 0.20

Практическое применение. Проводим анализ возможности применения метода СРМ(External) для определения удельной активности ⁹⁰Sr в пробах воды р.Днепр с применением минимальной подготовки проб (концентрирование упариванием с разрушением органической взвеси). При этом используется то, что среднегодовое за 1992 год содержание ¹³⁷Cs и калия-40 в воде р.Днепр, (см. Таблица 10), составили: 0.08 и 0.15 Бк на литр соответственно. Учитывая, что содержание ⁴⁰K в воде р.Днепр практически не изменяется в течении года, а влиянием ¹³⁷Cs при Черенковском счете, при таком контрасте эффективностей регистрации ⁹⁰Sr+⁹⁰Y и ¹³⁷Cs можно пренебречь, процедура определения удельной активности ⁹⁰Sr в воде сводится к следующему. Прежде всего измеряются спектры пробы и ее внешнего стандарта. Затем по этим спектрам находят значения скоростей счета пробы и ее внешнего стандарта. Далее определяются значения эффективности регистрации названных радионуклидов, вычитается вклад ⁴⁰K и ¹³⁷Cs, причем удельная активность ⁴⁰K и ¹³⁷Cs при этом принимается постоянной (приведенной выше), и затем определяется удельная активность ⁹⁰Sr. Эти

рассуждения справедливы при условии отсутствия других радионуклидов в сравнимой концентрации, что вполне приемлемо для проб воды р.Днепр.

Выводы. Предложенный метод стандартизации процедуры регистрации Черенковского излучения - СРМ(External) позволяет реализовать измерение удельной активности жестких β -излучателей в широком интервале цветового "гашения" образцов; экспрессный метод определения ^{90}Sr , использует упрощенные методы подготовки проб, а поэтому он наиболее дешевый. Как любой другой метод на основе Черенковского счета, он позволяет использовать пробы для последующих других анализов.

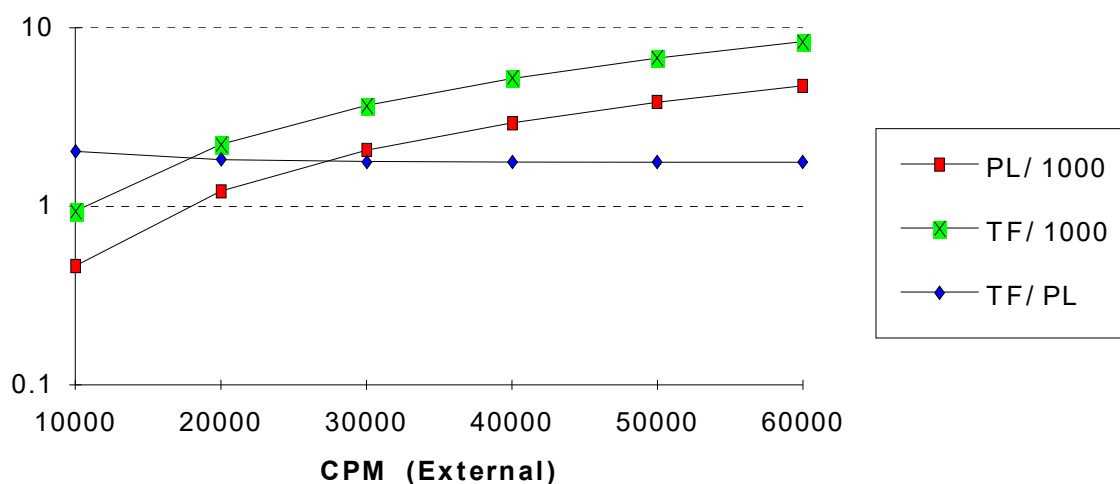


Рисунок 11. Зависимости обобщенного коэффициента качества измерений FOM для пластиковых и тефлоновых виал и их соотношения от уровня "гашения" определяемому по скорости счета внешнего стандарта

Бета-спектрометрический метод определения ^{90}Sr в объектах окружающей среды

Метод предназначен для совместного определения компонент смеси β -излучающих радионуклидов в пробах окружающей среды при помощи анализа их суммарного β -спектра. Прежде всего предназначен для определения содержания ^{90}Sr / 166, 168, 169, 170, 171, 171 /.

Подготовка и измерение образцов. Счетные образцы готовятся на основе ЖС: Optifase Hisave 3 и Luma Gell прежде всего потому, что они имеют большой диапазон смещения пробы со сцинтиллятором. При этом используется соотношение "проба-сцинтиллятор" в интервале от 2:18 до 8:12. Могут быть использованы также и другие ЖС, имеющие подобные параметры. Измерение производится в полиэтиленовых виалах емкостью 20 мл (наиболее дешевых) / 172 /.

Обработка спектров. Спектр, измеренный при помощи жидкостно-сцинтилляционного спектрометра, записывается на компьютере для последующего анализа. Для обработки спектра и разложения его на составляющие применяется широко используемый метод наименьших квадратов / 164, 173, 174 /. Его применение в рассматриваемом случае сводится к решению переопределенной системы уравнений. Количество уравнений, равное количеству каналов используемого участка спектра, больше количества компонент (радионуклидов в пробе):

$$X(j) = B(\text{rng}, 1:J) \setminus S(\text{rng}), \quad (3)$$

где,

$X(j)$ - скорость счета j -го радионуклида в пробе;

B - матрица, содержащая калибровочные спектры - нормированные спектры (векторы) искомым радионуклидов;

j - порядковый номер определяемого радионуклида (номер столбца в матрице B);

rng - рабочий участок спектра между каналами $N1$ и $N2$ (номера строчек в матрице B);

S - спектр пробы (вектор).

Примечание: Формула (3) и все последующие представлены в матрично-векторном виде.

$B \setminus S$ - матричное деление B на S , что тождественно перемножению на обратную матрицу: $INV(B) \cdot S$;

: без указания рабочего участка соответствует использованию всех столбцов (строчек) матрицы или всех элементов вектора.

Точность решения, которое существует для невырожденной матрицы, ограничена как гомогенностью и воспроизводимостью пробы, так и статистикой набора спектра. Наличие неучтенного радионуклида в спектре пробы с энергией в области используемого энергетического диапазона, либо неучтенное смещение спектра может привести к неверному решению системы. Поэтому для проведения оптимального разложения, контроля его точности по найденным величинам компонент и их калибровочным β -спектрам, выполняется восстановление спектра для его последующего сравнения со спектром пробы.

$$S1(\text{rng}) = B(\text{rng}, 1:J) \cdot X(j), \quad (4)$$

Наряду с визуальным сопоставлением восстановленного и реального спектров пробы производится количественная оценка их отличия в виде квадратичной формы:

$$Diff = \frac{\sqrt{\sum_{i=N1}^{N2} (S(i) - S1(i))^2}}{\sum_{i=N1}^{N2} S(i)} \cdot 100\% \quad (5)$$

где,

$S(i)$ - содержимое i - канала спектра пробы;

$S1(i)$ - содержимое i - канала восстановленного спектра пробы.

S - поканальное суммирование спектров в пределах рабочего диапазона от $N1$ до $N2$.

Приведенный в (5) параметр используется для выбора оптимального разложения β -спектра. Для этого вычисляются значения этого параметра для ряда случаев взаимного смещения спектров пробы и калибровочных спектров. Оптимизация разложения представляет собой минимизацию квадратичной формы (5). Эта процедура выполняется по методу "золотого" сечения.

Выбор оптимального участка спектра. Оптимизация выбора рабочего участка спектра зависит от формы каждого из спектров компонент смеси

радионуклидов и базируется на анализе параметров качества измерения: эффективности и фона / 175, 176 /.

Верхняя граница определяется каналом регистрации максимальной энергией β -спектра измеряемой пробы N_{\max} . Для выбора нижней границы анализируемого участка спектра предлагается использовать "обобщенный параметр", который мы определяем следующим образом:

$$\text{Opt}(i) = \frac{\text{Cond}(i)}{\text{FOM}(i)} \quad (6)$$

где,

$\text{Cond}(i)$ - параметр обусловленности (устойчивости) матрицы B , на фиксированном участке спектра / 173, 174 /;

$\text{FOM}(i)$ - (Figure of Merit) коэффициент качества, радиометрического измерения;

i - номер канала левой границы рабочего участка спектра.

В свою очередь коэффициент качества - FOM широко используется для оптимизации радиометрических измерений с учетом фона / 53, 57 / и определяется в нашем случае как:

$$\text{FOM}(i, j) = \frac{\text{Eff}_{(i:N_{\max}, j)}^2}{\text{BG}_{(i:N_{\max})}} \quad (7)$$

где,

Eff - эффективность регистрации излучения j - нуклида на рабочем участке;

BG - собственный фон прибора в данном окне.

Выбор нижней границы рабочего "окна" сводится к нахождению минимума функции $\text{OPT}(i)J$. Он проводится в каждом случае при выборе компонент смеси.

Стандартизация спектров. Одним из препятствий в реализации способа, как, собственно, и для любого измерения, является гашение образца, приводящее к изменению формы спектра и эффективности его регистрации. Это явление зависит от химического состава, цвета измеряемой пробы и соотношения проба-сцинтиллятор. Для стандартизации процедуры анализа

спектра проб использован параметр гашения SQP(E), определяемый в Quantulus™ по методу внешнего стандарта. Для выполнения разложения спектра по компонентам и расчета удельной активности определяемых радионуклидов требуется соответствие условий измерения спектров пробы, фона и каждого калибровочного спектра. Поскольку невозможно выполнить измерения спектров всех используемых компонент разложения для огромного числа значений параметра SQP(E), выполняется ограниченное число измерений, а при расчете каждой конкретной пробы по значению ее параметра гашения SQP(E)_i производится преобразование ее спектра для установления его соответствия набору калибровочных спектров и спектра фона. Преобразование спектра может быть выполнено при помощи "линейного смещения" в простейшем случае, или методом "пересыпки".

"Линейное смещение" спектра. Для случая "линейных смещений" спектра рабочий диапазон значений параметра SQP(E) равномерно заполняют фиксированные точки SQP(E)_k, для которых выполнены измерения спектров фона и каждого из искоемых радионуклидов. Количество калибровочных спектров определяется требуемой точностью преобразования спектра и составляет 10 - 30. Имеется определенная сложность в подготовке всех указанных спектров. Избежать ее можно, использовав преобразование спектра в энергетический.

Преобразование спектра в энергетический. В основе метода лежит тот факт, что в Quantulus™ в качестве аналого-цифрового преобразователя (АЦП) используется АЦП логарифмирующего типа. Поэтому если для каждого спектра (образца, фона, калибровочного) из зарегистрированных на приборе, выполнить преобразование к линейному, т.е. энергетическому спектру, то преобразованные таким образом спектры могут быть использованы для разложения без их изменения. Для этой цели необходимо выполнить энергетическую калибровку спектрометра, отследить ее зависимость от гашения (параметра гашения SQP(E)).

Для осуществления метода проводится энергетическая калибровка - находятся зависимости 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.

$$Chn(En) = F[En, SQP(E)] \quad (8)$$

где,

Chn - номер канала;

En - энергия(МэВ), для диапазона от E1 до E2, соответствующих минимальной и максимальной энергиям пиков конверсионных электронов, используемых радионуклидов;

SQP(E) - параметр гашения.

Приведенное выше дает 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. Далее для экстраполяции функции энергетической калибровки для прибора Quantulus используется логарифмическая зависимость, которая устанавливает соответствие номера канала значению энергии:

$$Ni \Leftrightarrow \log(Ei) \quad (9)$$

Коэффициенты этого преобразования определяются по семейству кривых, задаваемых выражением (8) и определяемых по экспериментальным кривым. После установления взаимного соответствия энергия-канал появляется возможность выполнения процедуры преобразования приборного спектра в энергетический, т.е. определения содержимого каждого канала энергетического спектра:

$$Ne_{(k, En)} = \sum_{i=N_{SQP(E)}^1}^{N_{SQP(E)}^2} Np_{(i)} \quad (10)$$

где,

N_e - энергетический спектр;

N_p - приборный спектр.

$k = 1:128$ - номера каналов энергетического спектра, каждому из которых соответствуют пары каналов приборного спектра $N1$ и $N2$; 128 - количество каналов энергетического спектра.

Исследования проведены на ЖСС Quantulus 1220™ №20040 при использовании источников конверсионных электронов: ^{109}Cd , ^{137}Cs , ^{207}Bi , по линиям КЭ соответственно 85, 624 и 975 кэВ, (см. Рисунок 12.)

Для исследований использованы как пробы на основе каждого из вышеназванных радионуклидов, так и на основе их смеси. Положения центроида каждого пика КЭ, определяемого путем описания его вершины (на уровне выше 0.85 от максимального) параболой, сопоставлялись с параметром гашения спектра $SQP(E)$ (см. Рисунок 13.).

Установлено, что зависимость положения каждого пика КЭ от параметра гашения $SQP(E)$ линейна, причем 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 гашения $SQP(E)$;
- определение положений пиков КЭ и установление зависимости положения каждого пика от уровня гашения;
- преобразование спектра в энергетический.

Таким образом проведены калибровочные измерения для других приборов того-же типа №20063, №20068. Зависимости положения пиков КЭ, полученные для различных приборов (см. Рисунок 14.) достаточно близки для того, чтобы их использовать для отображения спектров других приборов. Индивидуальная калибровка дает большую точность преобразования и отображения спектра.

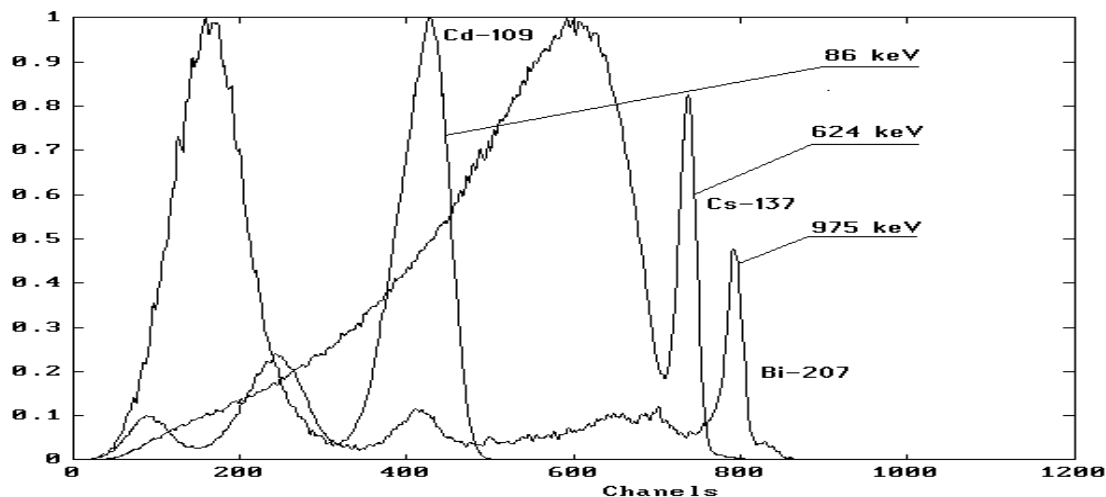


Рисунок 12. Нормированные спектры источников конверсионных электронов, используемых для калибровки ЖСС β -спектрометра.

Преобразование спектров в энергетические может быть использовано в программах 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 15.) позволяет сократить время обработки одного спектра не менее чем в 4 раза, прежде всего за счет того, что преобразованные спектры будут меньшей размерности. При этом выполнить хорошее описание калибровочных спектров в широком интервале гашения проб по трем наборам спектров, т.о. достаточно хранить 3 набора калибровочных спектров вместо 10-15, что упрощает и ускоряет процедуру их выбора в процессе анализа спектров проб.

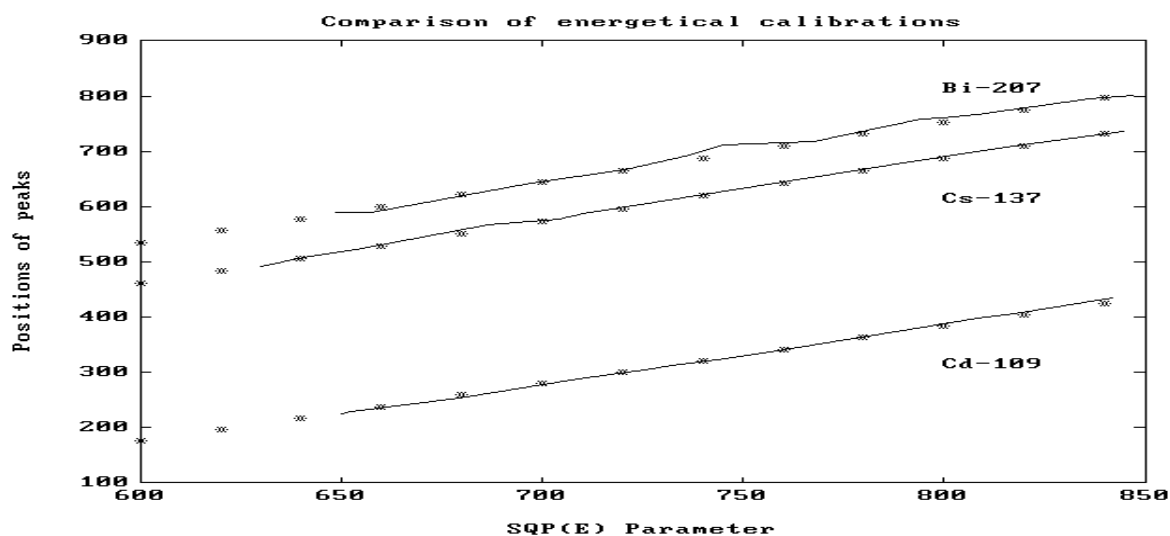


Рисунок 13. Сопоставление результатов проведения энергетической калибровки по спектрам источников конверсионных электронов: ^{109}Cd , ^{137}Cs , ^{207}Bi - линия; по их калибровочной смеси - точки.

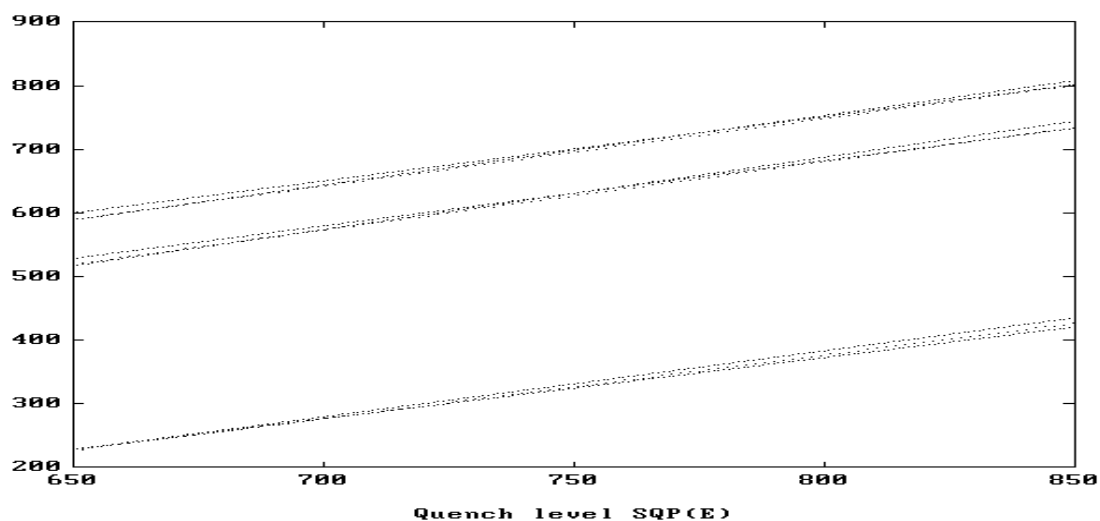


Рисунок 14. Сопоставление кривых энергетической калибровки для трех приборов по спектрам источников конверсионных электронов: ^{109}Cd , ^{137}Cs , ^{207}Bi .

Таким образом, вся процедура преобразования спектра будет состоять из следующего:

Предварительная подготовка: Измерение пробы состоящей из смеси радионуклидов - источников конверсионных электронов: ^{109}Cd , ^{137}Cs , ^{207}Bi (спектры по 1024 канала) для трех уровней гашения в широком интервале значений параметра SQP(E); определение параметров функции энергетической калибровки спектра пробы:

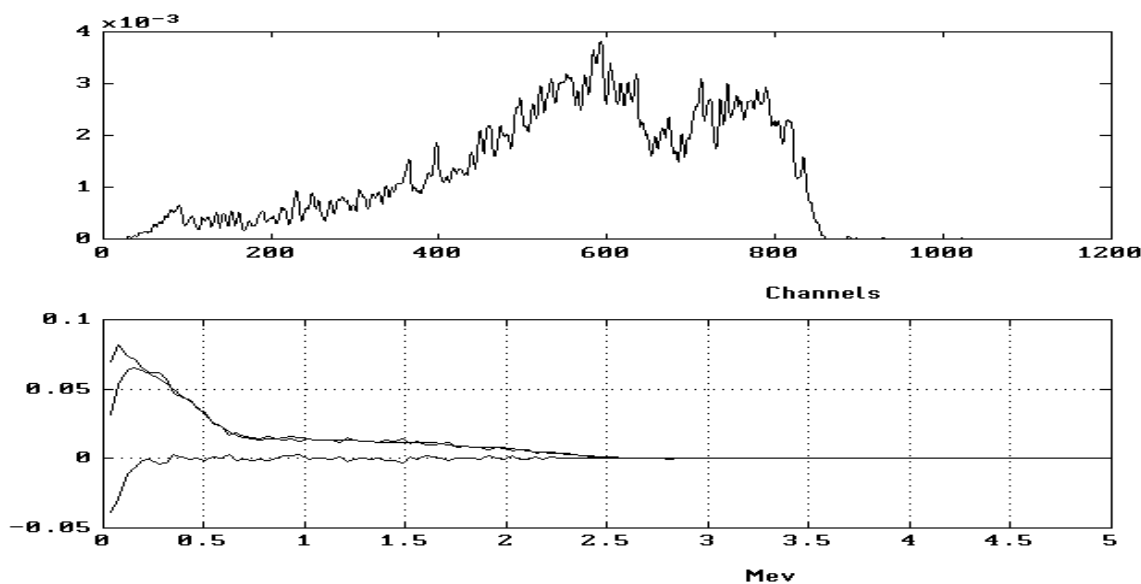


Рисунок 15. Спектры пробы ^{90}Sr в логарифмическом (приборный спектр) и в линейном масштабе (преобразованный спектр), как демонстрация применения преобразования спектра для β -спектрометрии.

$$E_n(\text{MeV}) = F[\text{chn}, \text{SQP}(E)] \quad (11)$$

где,

chn - номер канала;

E_n - энергия;

SQP(E) - параметр гашения;

Собственно преобразование спектра - т.е. определение содержимого каждого канала энергетического спектра:

$$N_e(k, E_n) = \frac{N_2(\text{SQP}(E))}{\sum_{i=N_1(\text{SQP}(E))} N_p(i)} \quad (12)$$

где,

N_e - энергетический спектр;

N_p - приборный спектр.

$k = 1:128$ - номера каналов энергетического спектра для каждого из которых соответствуют пары каналов приборного спектра N_1 и N_2 .

- Определение энергетического разрешения по пику конверсионных электронов в β -спектре ^{137}Cs или ^{207}Bi .;

- Измерение калибровочных спектров определяемых радионуклидов (при трех контрастных уровнях гашения, SQP(E) для коррекции зависимости эффективности от параметра гашения).
- Преобразование калибровочных спектров и спектров фона согласно (7);
- Выбор энергетических спектров по нуклидам в исследуемой пробе для формирования калибровочной матрицы;
- Оптимизация рабочего участка спектра, согласно (6).

Подготовка спектра каждой определяемой пробы:

- Измерение спектра;

Преобразование спектра согласно (12).

Расчет удельной активности проб. После стандартизации и декомпозиции спектра пробы на составляющие (скорости счета каждого отдельного нуклида из (3)) определяется удельная активность нуклидов в пробе по выражению:

$$A_{(j)} = \frac{1000 \cdot X_{(j)}}{V \cdot \text{Eff}_{(rng, j)} \cdot T} \quad (13)$$

где,

V - объем пробы, мл;

1000 - коэффициент пересчета, мл.л⁻¹

T - время измерения пробы, с;

X(j) - скорость счета от j-го нуклида, имп·с⁻¹ ;

Eff(rng,j) - эффективность регистрации J-го нуклида, имп·с⁻¹ на Бк.

Чувствительность и погрешность метода. Предлагаемый способ предполагает одновременное измерение нескольких радионуклидов. Это накладывает некоторые условия на определение минимальной детектируемой активности и погрешности измерения. Для оценки статистической погрешности определения каждого нуклида в качестве фона рассматривается сумма скоростей счета собственного фона прибора и остальных радионуклидов / 164 /.

Таким образом, вычисляется вектор эквивалентных значений фона для каждой из определяемых компонент BGO(j);

$$BGO(j) = \sum_{i=N1}^{N2} BG(i) + \left(\sum_{i=N1}^{N2} S(i) - X(j) \right) \quad (14)$$

где,

$X(j)$ - скорость счета j компоненты, (имп.с⁻¹).

$BG(i)$ - собственный фон установки в фиксированном "окне", имп.с⁻¹ ;

$X(j)$ - скорость счета регистрации компонент смеси, имп.с⁻¹.

Расчет статистической погрешности определения j -го нуклида $Error(j)$ определяем по формуле предложенной в / 164 /.

$$Error_{(j)} = \frac{\sqrt{(X_{(j)} + 2 \cdot BGO_{(j)}) \cdot T}}{X_{(j)} \cdot T} \cdot 100\% \quad (15)$$

где, t - время измерения пробы, с.

Минимальная детектируемая активность (МДА) для j -го радионуклида оценивается по формуле / 164 /:

$$MDA_{(j)} = \frac{1000 \cdot 2 \cdot \sqrt{BGO_{(j)} \cdot T}}{V \cdot T \cdot Error \cdot Eff_{(j)}} \quad (16)$$

где,

V - объем пробы, мл;

$Error$ - заданная статистическая погрешность;

1000 - коэффициент пересчета, мл на л.

Следует помнить однако, что принятое соглашение, касающееся фона, а, следовательно, применение формул (9)-(11) для расчета МДА и статистической погрешности, дает консервативную оценку этих величин. Точность и чувствительность измерений определяет соотношение между нуклидами в смеси.

Примеры реализации метода.

Измерение содержания ^{90}Sr в пробах свежего молока. Пробы молока вносились непосредственно на месте отбора в измерительную емкость (виалу), содержащую сцинтилляционную жидкость, т.е. для подготовки образцов использовано свежее молоко, что обеспечивает достижение гомогенности проб. При исследовании стабильности проб установлено, что пробы на основе сцинтилляционных жидкостей Optifase Hisave 3 и Luma Gell сохраняют свои свойства при их хранении до нескольких недель. Известно, что основными радионуклидами содержащимися в молоке являются: ^{40}K , ^{137}Cs , ^{134}Cs , а также $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$. Спектры этих нуклидов используются для организации матрицы образцовых спектров (см. Рисунок 16.). Для иллюстрации оптимального выбора нижней границы рабочего "окна" мы рассмотрим его для метода "линейных смещений". Приводим графики зависимости функции $\text{OPT}(i)$ для нескольких значений параметра гашения: $\text{SQP}(E)=750$; $\text{SQP}(E)=775$; $\text{SQP}(E)=820$ (см. Рисунок 17.). Как видно, все кривые имеют выраженный минимум, расположенный для каждой из них на участке спектра между каналами 200 и 300. С учетом этого, а также принимая во внимание возможность присутствие в спектре пробы молока хемиллюминесценции, в качестве левой границы рабочего "окна" выбирается 300 канал. Для метода преобразования спектра в энергетический процедура оптимизации рабочего окна проводится аналогично, но только на преобразованных спектрах.

Зависимость погрешности определения ^{90}Sr от содержания ^{90}Sr в свежем молоке рассмотрена при активности ^{40}K равной $60 \text{ Бк}\cdot\text{л}^{-1}$, а активности ^{137}Cs равной $370 \text{ Бк}\cdot\text{л}^{-1}$ (см. Рисунок 18.). Для расчета зависимости МДА ^{90}Sr $\text{Бк}\cdot\text{л}^{-1}$ от активности ^{137}Cs в молоке, при различном времени измерения проб с погрешностью определения ^{90}Sr равной 50 % активность ^{40}K принята равной $60 \text{ Бк}\cdot\text{л}^{-1}$ (см. Рисунок 19.).

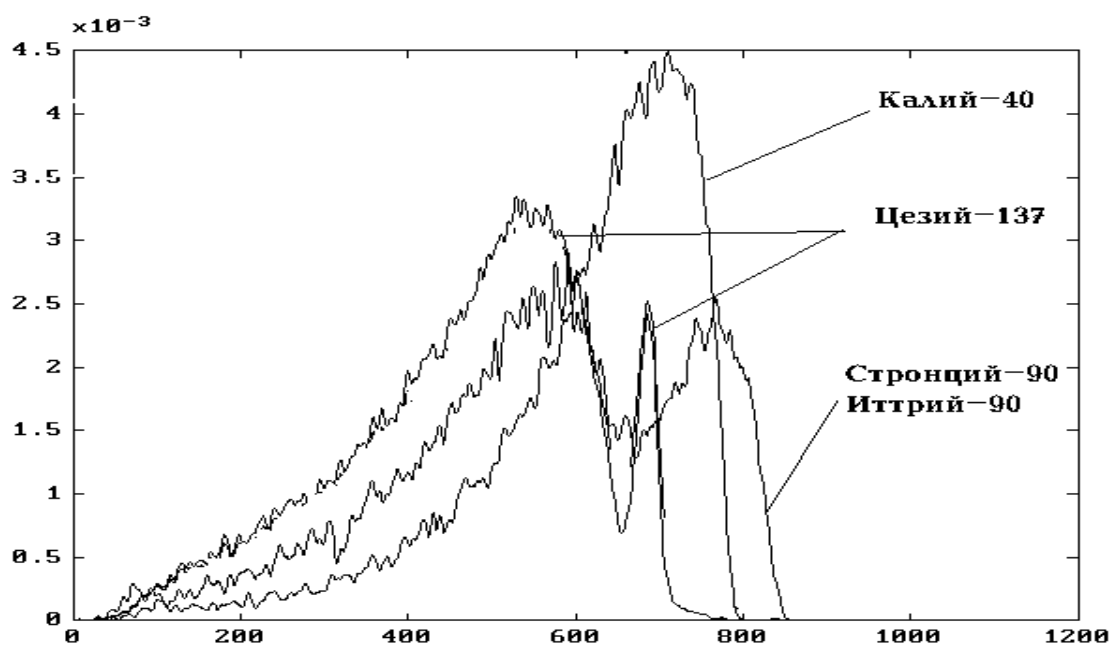


Рисунок 16. β -спектры основных радионуклидов, входящих в состав молока.

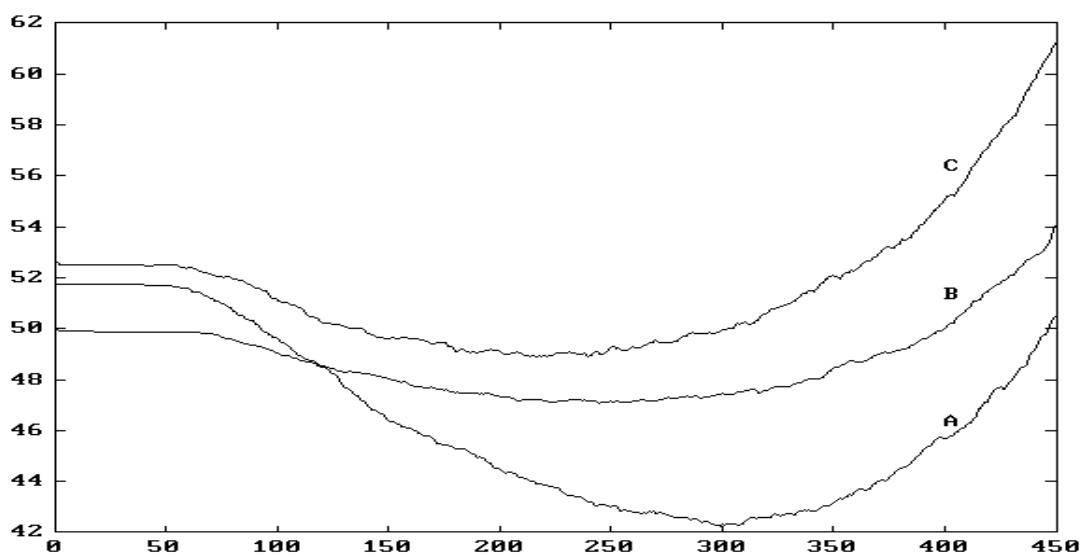


Рисунок 17. Зависимость положения левой границы рабочего участка спектра от уровня гашения пробы.

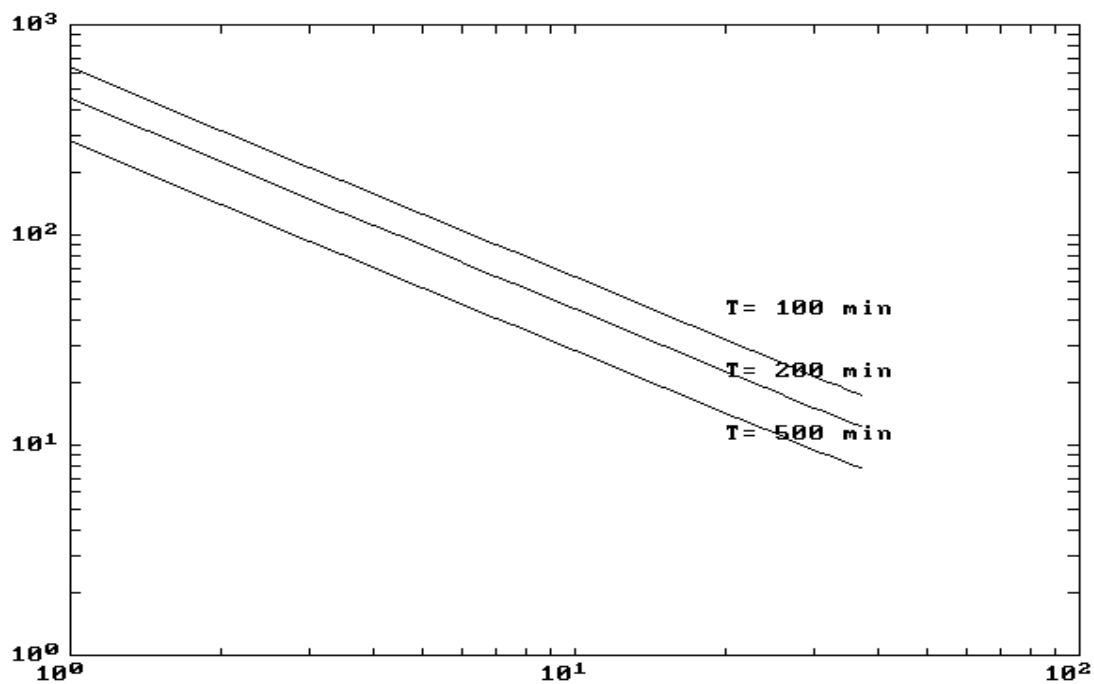


Рисунок 18. Зависимость погрешности определения ^{90}Sr от содержания ^{90}Sr в свежем молоке.

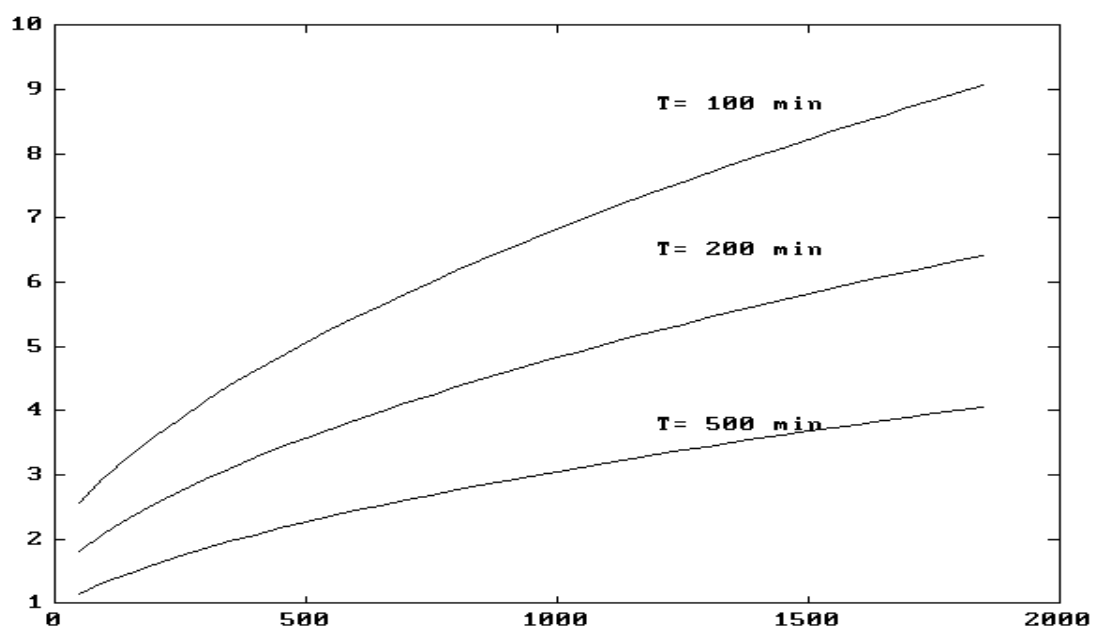


Рисунок 19. Зависимость МДА ^{90}Sr от активности ^{137}Cs (Бк·л $^{-1}$).

При рассмотрении зависимостей для ошибки и МДА метода видно, что погрешность и чувствительность измерений определяет соотношение между нуклидами в смеси, как это и следует из (14) (см. Рисунок 18. и Рисунок 19.). Реальные пробы могут охватывать широкий интервал этого соотношения (см. Рисунок 20.).

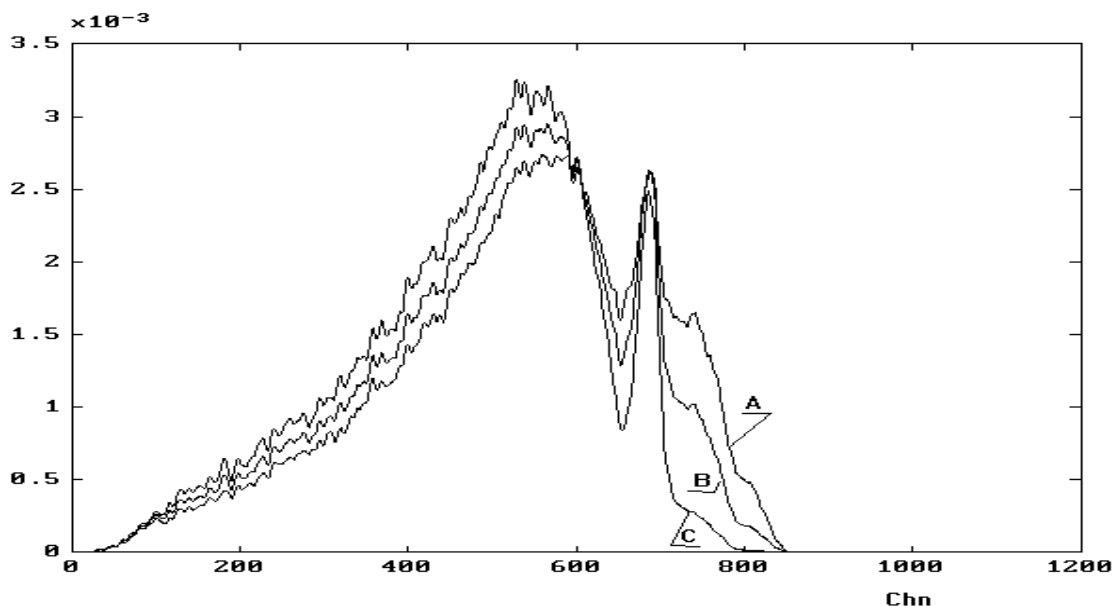


Рисунок 20. Характерные контрастные β -спектры для проб молока при различном соотношении радионуклидов компонент.

Измерение содержания ^{90}Sr в золе молока. Практически все используемые методы измерения содержания ^{90}Sr в молоке и молочных продуктах предполагают концентрирование пробы до золы, т.е. работу с золой / 34, 35, 59, 60, 113 /. Представляется возможным использовать β -спектрометрический метод для определения количества ^{90}Sr в золе. Для подготовки пробы растворяем 0.5-1 грамма золы в 4-5 см 2М раствора азотной кислоты и готовим счетный образец, добавляя сцинтилляционную смесь. Измерение и анализ спектра проводим аналогично. Зола дает ряд преимуществ для случая использования β - спектрометрии:

- концентрирование активности: позволяет повысить чувствительность метода в несколько раз, например: свежее молоко - 4 мл. на пробу, или 0.5 г. золы на

пробу (выход золы около 5 грамм на литр молока), коэффициент концентрирования при этом составляет 25;

- изменение соотношения между радионуклидами в пробе в пользу ^{90}Sr , так как при озолении продуктов используется высокотемпературное прокалывание, приводящее к снижению содержания изотопов ^{137}Cs , по крайней мере в несколько раз, см. далее по тексту.

Используя формулы (9)-(11), можем проследить, как изменятся чувствительность и погрешность измерения за счет использования пробы на основе золы. Например, для свежего молока удельной активностью ^{137}Cs 1200 Бк·л⁻¹ МДА определения ^{90}Sr составляет 7.5 Бк·л⁻¹ при времени измерения 100 минут с погрешностью 50 %. При использовании пробы на основе 0.5 г золы, в которой активность ^{137}Cs в 10 раз снижена за счет термической обработки, МДА для ^{90}Sr снижается до 1.5 Бк·л⁻¹ при том же времени измерения пробы (см. Рисунок 19. и Рисунок 21.).

Сравнение результатов измерения ^{90}Sr в молоке. Для сравнения результатов измерения проводились несколькими способами: предлагаемый способ, радиохимический способ определения ^{90}Sr , γ -спектрометрия и комбинированный способ. Кроме этого удельная активность ^{90}Sr в контрастных пробах молока определялась по изменению суммарной скорости счета проб во времени по мере накопления ^{90}Y (см. Рисунок 22.). Для оценки динамики накопления ^{90}Y пробы свежего молока начали периодически измерять после 14 часов с момента дойки. Расчеты по модели, описывающей изменение скорости общего β -счета от времени с момента дойки показывают, что концентрация ^{90}Y в молоке на момент дойки близка к нулю. Погрешность оценок не превышала 10%.

Приводим подробные данные о результатах измерения активности всех радионуклидов в одной пробе молока при помощи различных методов для проб с высоким содержанием ^{90}Sr (см. Таблица 11), а для пробы с относительно

“средним” уровнем ^{90}Sr приводим данные, которые отражают степень воспроизводимости результатов при определении содержания ^{90}Sr и ^{137}Cs (см. Таблица 12.).

Для выяснения степени сходимости при измерении ^{90}Sr в пробах молока спектрометрическим и радиохимическим методом обобщенные результаты представлены для 19 проб в интервале активности от 2.0 до 27.9 Бк на литр, (см. Рисунок 23.). Среднее квадратическое отклонение результатов предлагаемого метода с результатами радиохимии составляет 20.2 %, а для проб с удельной активностью свыше 7.0 Бк на литр - 10.7 %.

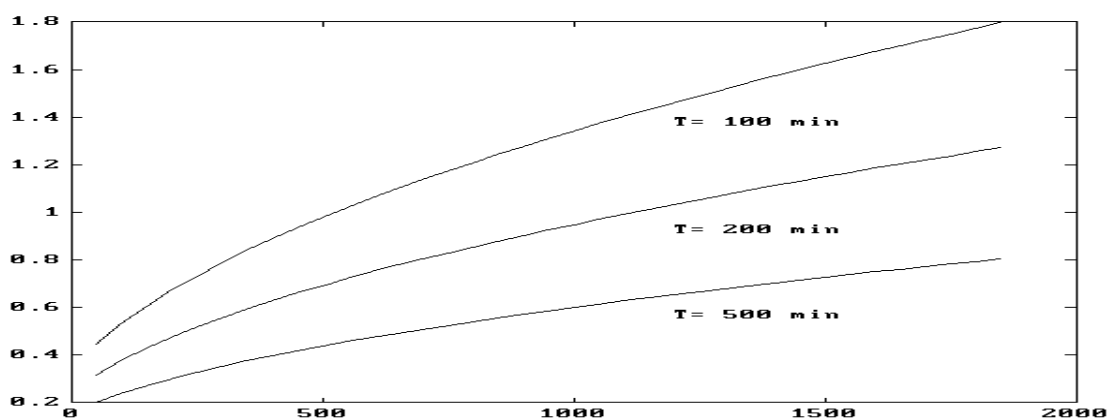


Рисунок 21. Зависимость МДА определения удельной активности ^{90}Sr в молоке при использовании для пробы 0.5 г. золы По вертикали - МДА (Бк·л $^{-1}$); по горизонтали - содержание ^{137}Cs в молоке (Бк·л $^{-1}$).

Полученные данные позволяют сделать вывод о хорошей сходимости результатов, полученных при помощи предлагаемого способа как для пробы свежего молока, так и в случае использования золы молока с результатами радиохимического измерения. Данные подтверждают, что проводимая оценка МДА и погрешности измерения ^{90}Sr согласно (9) - (11) является консервативной.

Таблица 11.

Сравнение результатов определения ^{90}Sr в пробах молока при использовании трех различных методов. Активность, Бк·л $^{-1}$

Метод определения	Объем, мл	^{137}Cs	^{134}Cs	^{40}K	^{90}Sr
γ -спектрометрия	1000	137.1	17.9	60.2 (1.0%)	-
* β - γ -разложение	1000	-	-	-	33.1(10%)
β -пектрометрия	4	134.5	19.2	58.3	36.3
-//-	4	137.1	19.6	69.4	32.9
-//-	4	134.8	19.3	58.7	34.5
Радиохимия	1000	-	-	-	27.0 (20%)

* -- Результаты получены путем вычитания вклада γ -излучающих радионуклидов из суммарного β -спектра.

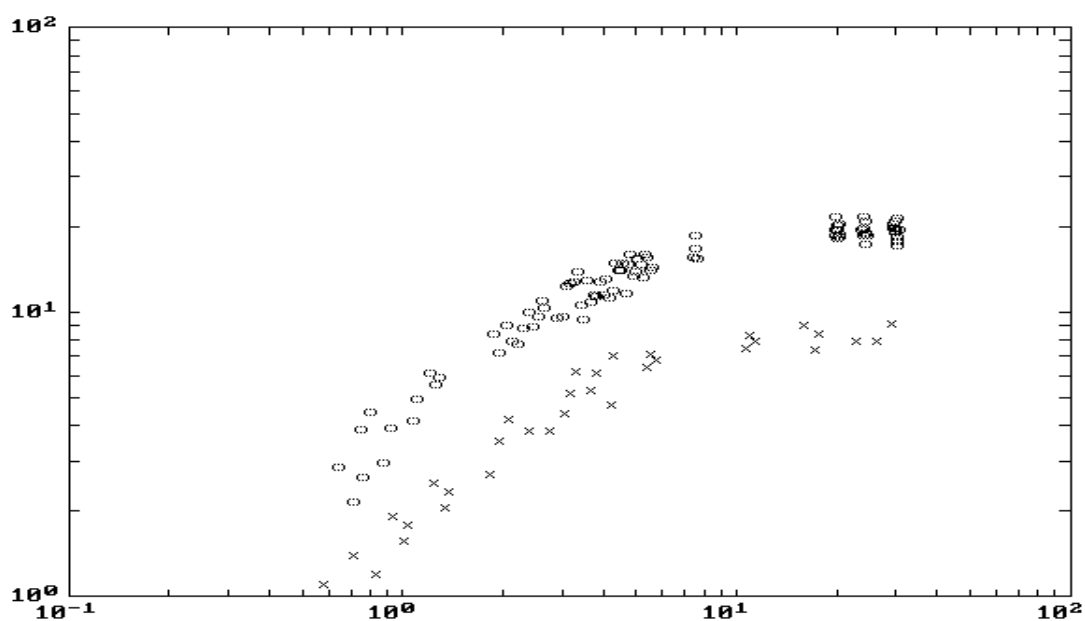


Рисунок 22. Приращение суммарной скорости счета контрастных проб молока во времени по мере накопления ^{90}Y , по вертикали: скорость счета (имп·мин $^{-1}$), по горизонтали: время с момента дойки молока (сутки).

o - с.Оташев,(30-км зона) 10.10.91г.;

x - с.Оташев, 10.06.93г.

Таблица 12.

Воспроизводимость результатов определения содержания радионуклидов при подготовке нескольких проб

Проба	^{137}Cs	^{134}Cs	^{40}K	^{90}Sr
Свежее 1	43.5	6.2	63.7	7.8

молоко 2	44.3	6.3	62.0	7.7
3	48.3	6.9	64.8	6.9

Хорошая сходимость результатов по ^{40}K и ^{90}Sr видна при сравнении предлагаемого метода для измерения свежего молока и золы (см. Таблица 13.). Что же касается ^{137}Cs и ^{134}Cs , то, как было сказано выше, процесс термической обработки золы приводит к их потере.

Таблица 13.

Сравнение результатов определения активности проб молока и золы при помощи β -спектрометрического метода. Активность приведена к объему молока

Идентификатор пробы	^{137}Cs	^{134}Cs	^{40}K	^{90}Sr
молоко М1	481.7	68.8	51.3	24.8
зола М1	55.5	7.9	44.9	23.1
молоко М3	856.4	122.3	62.9	15.5
зола М3	41.6	5.9	54.4	15.4
молоко М4	289.4	41.3	37.3	15.0
зола М4	26.9	3.8	37.3	14.9
молоко М5	176.3	25.2	50.8	8.3
зола М5	43.7	6.2	43.6	10.7

Измерение содержания ^{90}Sr в "горячих частицах". Счетная проба готовится фиксированием выделенной частицы во взвешенном состоянии внутри объема сцинтилляционной гелеобразной смеси. β -компоненты для этого случая подбираем, ориентируясь на предварительную информацию γ -спектрометрии, а также руководствуясь соображениями о возможности наличия тех или других нуклидов в смеси. Для примера приводим результат расчета активности β -компонент в "горячих частицах" (см. Таблица 14), а также спектры β -компонент (см. Рисунок 24.а) и спектры конкретных "горячих

частиц" (см. Рисунок 24.б). Для случая "горячих" частиц следует принять во внимание то, что нижнюю границу рабочего "окна" не следует выбирать ниже уровня 100 КэВ, поскольку β -излучение с более низкой энергией покидает частицу со значительными потерями (см. Рисунок 24.а. и Рисунок 24.б.). Таким образом, только в случае выбора "окна" с более высокой нижней границей, использование калибровочных β -спектров, полученных от объемных источников, не вносит дополнительной погрешности в измерения.

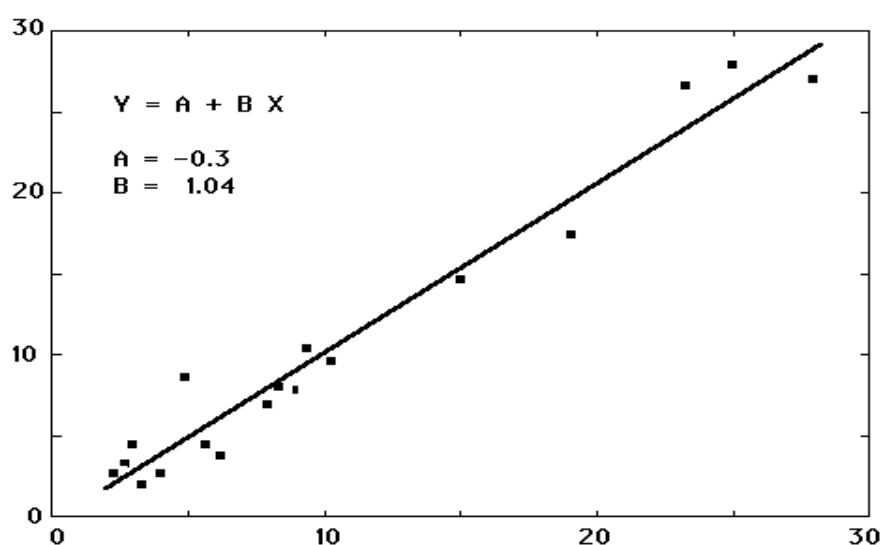


Рисунок 23. Сравнение методов определения содержания ^{90}Sr в пробах молока. По вертикали - β -спектрометрический метод; по горизонтали - радиохимический метод, (Бк·л⁻¹)

Таблица 14.

Содержание радионуклидов в некоторых горячих частицах, Бк. Результаты получены при помощи β -спектрометрического метода

Код	^{137}Cs	^{134}Cs	^{90}Sr	^{144}Ce	^{106}Ru
hp6					430.3
hp2				2.8	130.9

hp3				4.2	57.1
hp4	9.0	1.2	9.7	5.9	29.6
hp1	29.6	4.2	93.6	26.5	26.1
hp5	5.8	0.8	56.3	13.8	19.6
135404	290.8	41.5	20.9	5.4	58.8
804802	13.1	1.8	21.9	6.2	8.0

Побелы в таблице соответствуют MDA = 0.5 - 1.0 Бк.

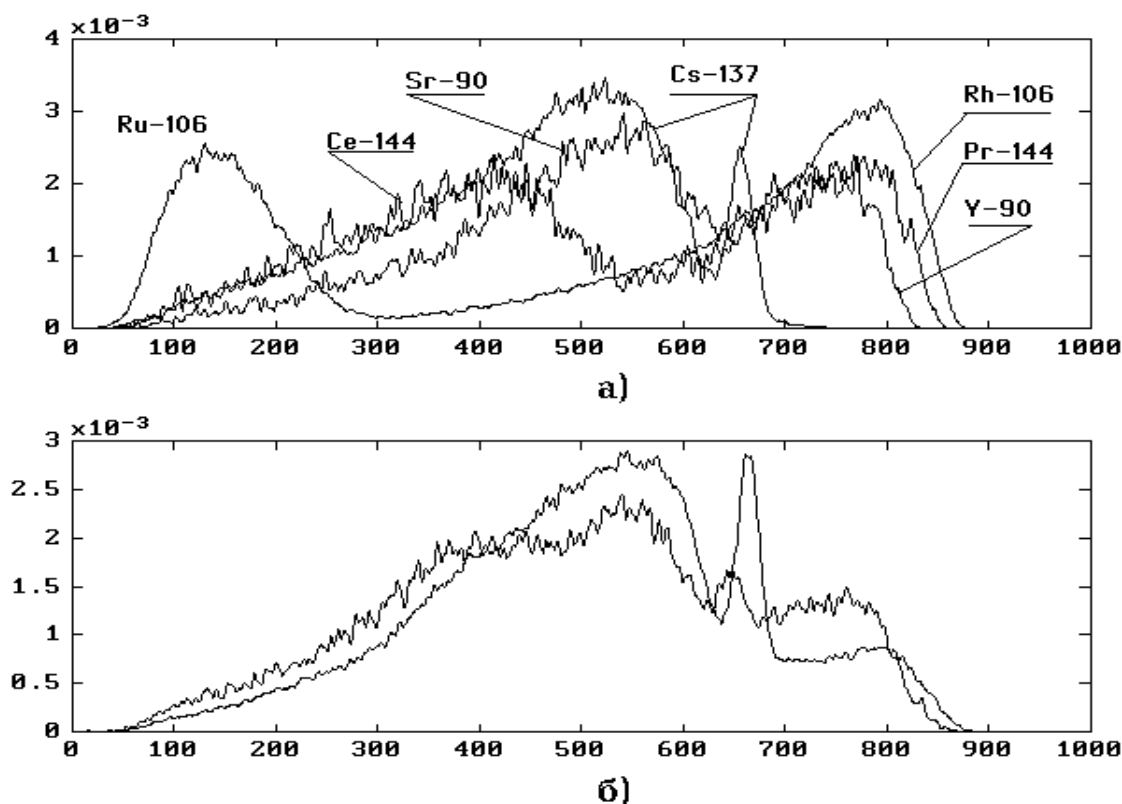


Рисунок 24. β -спектры основных радионуклидов, входящих в состав горячих частиц - А; β спектры двух контрастных горячих частиц.

Измерение ^{90}Sr в воде. Подготовка образца: для обеспечения высокой чувствительности метода выполняется предварительное концентрирование активности пробы, для чего проводится упаривание 100 мл воды досуха, а затем растворение сухого остатка в 2 мл 0.5 М раствора HCl или HNO₃. Для наиболее полного разрушения органической взвеси, на поздней фазе упаривания добавляется нескольких капель концентрированного раствора H₂O₂. При этом, как упаривание, так и измерение пробы, желательно проводить в тefлоновой виале, что позволит исключить потери активности и достичь минимального

значения собственного фона прибора. Счетный образец готовится добавлением 18 мл сцинтилляционной жидкости. Указанный вариант подготовки проб позволяет получить МДА для ^{90}Sr около $0.1 \text{ Бк}\cdot\text{л}^{-1}$ за 120 минут измерения спектра.

Обработка спектра: расчет содержания каждой компоненты смеси β -излучателей в спектре пробы проводится с использованием калибровочных β -спектров компонент согласно ранее описанному алгоритму.

Сокращение времени этапа "подготовки образца к измерению - получение результата" до 1-2 часов позволяет вести мониторинг в реальном масштабе времени, что весьма важно для исследования таких динамических систем, как реки.

По экспериментально полученной зависимости МДА для ^{90}Sr от удельной активности ^{137}Cs в пробе для диапазона реально возможных концентраций ^{137}Cs , (см. Рисунок 25.) видно, что МДА метода по ^{90}Sr более чем на порядок ниже временно допустимого уровня содержания ^{90}Sr в питьевой воде - $3.7 \text{ Бк}\cdot\text{л}^{-1}$ и в несколько раз ниже уровня активности ^{90}Sr наблюдаемой в р.Днепр за 1986-1989 г.г. (см. Таблица 15.).

Таблица 15.

Содержание ^{90}Sr в бассейне р.Днепр в 1986-1989гг / 177 /

Водоем \ Время	20.05.86	1986	1987	1988	1989
р.Днепр, с.Теремцы		0.48	0.44	0.26	0.15
р.Припять, г.Чернобыль		1.9	1.5	1.5	0.75
Киевское водохр. :					
Верховье	1.9	1.0	1.2	1.2	0.7
Низовье	5.6	-	0.6	0.8	0.4

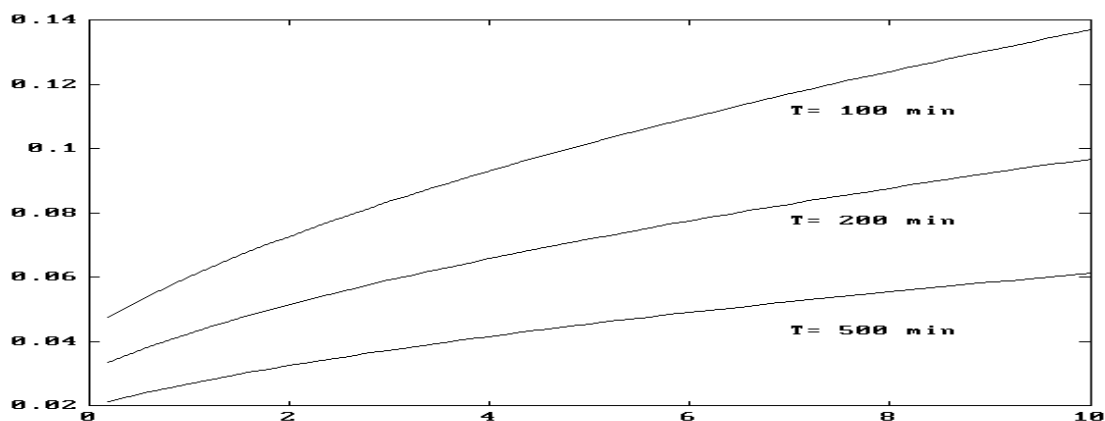


Рисунок 25. Зависимость МДА определения удельной активности ^{90}Sr в воде от содержания ^{137}Cs в воде. По горизонтали - удельная активность ^{137}Cs в воде (Бк·л⁻¹); по вертикали - величина МДА (Бк·л⁻¹)

Подтверждение адекватности β -спектрометрического метода определения содержания ^{90}Sr .

- Опробование метода проводилось на пробах молока и молочных продуктов, адекватность подтверждают данные (см. Таблица 11, Таблица 12, Таблица 13 и Рисунок 23.);
- Апробация метода для проб воды проведена при контроле за содержанием ^{90}Sr в воде р.Днепр и резервуарах чистой воды Днепровской водопроводной станции, осуществляющей водоснабжение г.Киева с февраля по июнь 1991г. (См. Рисунок 26.);
- Сличение проводилось с результатами параллельных радиохимических анализов, проводимых Центром радиационной медицины и в лаборатории Днепровской водопроводной станции. Результаты этого сравнения являются приемлемыми для решаемой задачи (см. Рисунок 26.);
- Воспроизводимость и стабильность результатов при хранении проб подтверждена путем повторного измерения проб через 2 недели с момента их первого измерения (см. Рисунок 27.);

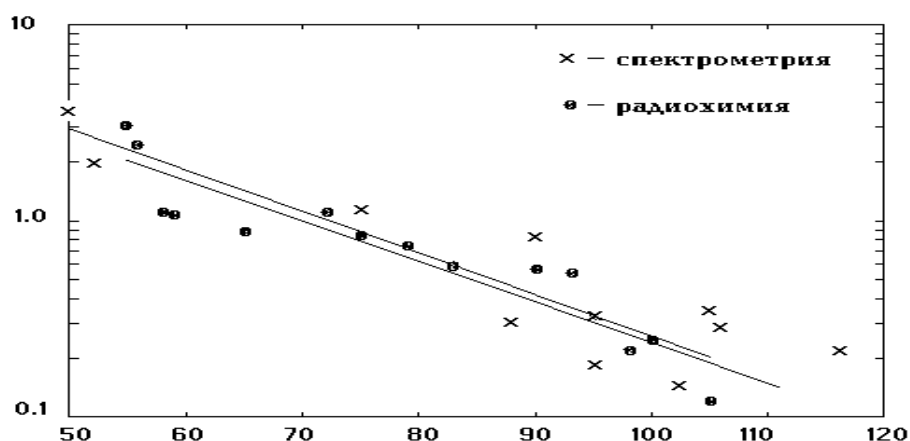


Рисунок 26. Сравнение результатов определения содержания ^{90}Sr в воде р.Днепр, β -спектрометрическим и радиохимическим методами. По вертикали - удельная активность ^{90}Sr , $\text{Бк}\cdot\text{л}^{-1}$; по горизонтали - дни с начала 1991 г.

- Сличение по контрольной пробе воды, приготовленной в Украинском научно-исследовательском гидрометеорологическом институте (УкрНИИГМИ) показало высокое согласование с результатами, полученными с использованием других методов;
- Полное совпадение результатов измерения при помощи этого метода активности ^{90}Sr в аэрозольном фильтре сличительного образца по программе интерсличения МАГАТЭ / 156, 157 /.
- Получена приоритетная справка: "СПОСОБ ИЗМЕРЕНИЯ СТРОНЦИЯ-90 В ЖИДКИХ ПРОБАХ". / 166 /.

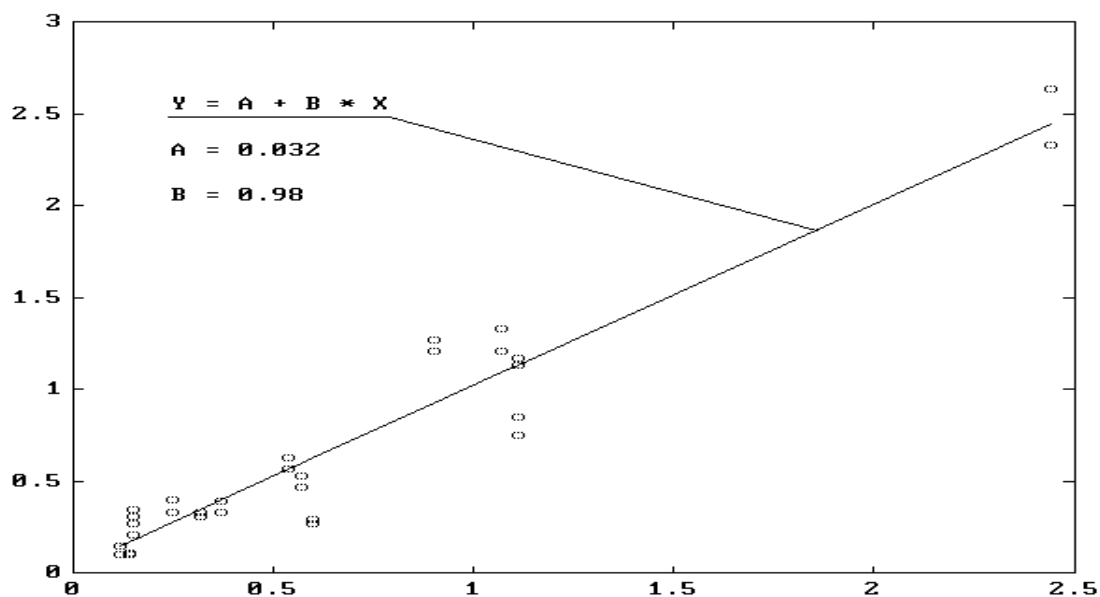


Рисунок 27. Сравнение результатов активности проб при их повторном измерении после выдержки в течении 2-х недель. По горизонтали и вертикали - удельная активность ^{90}Sr в воде, Бк·л⁻¹.

Преимущества.

В предлагаемом методе используются достоинства современных ЖСС методов измерения β -излучения: около 100% эффективность, низкий собственный фон, использование значительного количества образца до 10 мл. на пробу, что исключает трудоемкие процессы, характерные для широко используемых радиохимических методов определения ^{90}Sr , открывает уникальную возможность измерения содержания ^{90}Sr в свежем молоке и других жидкостях без какой-либо подготовки проб, причем позволяет учитывать гашение пробы в широком интервале. МДА и погрешность измерения ^{90}Sr для ЖСС β -спектрометрического способа существенно лучше, чем для ранее реализованных способов, использующих кристаллические детекторы / 34, 35, 36, 139, 164 /.

2.6.5. Определение плутония-241

Прямой метод жидкостно-сцинтилляционного счета.

При определении активности изотопов плутония для подготовки проб использованы методы радиохимической очистки проб с последующим электрохимическим осаждением плутония на подложки из нержавеющей стали, для измерения α -спектров - полупроводниковые α -спектрометры фирм ORTEC и Canberra. Измерения активности ^{241}Pu в пробах почв, а также измерения α - и β -активности плутония в других пробах выполнены при помощи жидкостно-сцинтилляционного α/β -спектра Quantulus 1220™. Для измерения ^{241}Pu традиционным методом ЖСС активность вытравливалась с подложки и на основе этого раствора готовилась счетная форма с добавлением жидкого сцинтиллятора в МТФ виалах. В горячих частицах и пробах растительности, после их химического разрушения, проводилась экстракция плутония при помощи триоктиламина (ТОВА) из 6М азотнокислого раствора с предварительным его концентрированием в 4-х валентной форме, эффективность экстракции составила не ниже 85%.

Для определения химического выхода использованы ОРР ^{236}Pu и ^{242}Pu . Калибровка эффективности основана на высоком сходстве жидкостно-сцинтилляционных спектров ^{241}Pu и трития / 148 /. Для определения зависимости эффективности регистрации от параметра гашения пробы (см. Рисунок 28.) проведена стандартная процедура. Используются калибровочные тритиевые стандарты 3Н-О (1210-120) Wallac и 3Н-В (1210-121) Wallac погрешностью не хуже 1% для калибровки водных и органических проб, а в качестве гасителя - четыреххлористый углерод. Полученные экспериментальные значения эффективности регистрации описаны нижеприведенным аналитическим выражением, (см. Таблица 16.).

$$\log(\text{Eff}) = A \cdot x^2 + B \cdot x + C; \quad (17)$$

где, Eff - эффективность регистрации (относительные единицы);
 $x = \text{SQPE}$, параметр гашения.

Таблица 16.

Параметры кривых "гашения" для измерения различных типов проб

Тип пробы	А	В	С
органическая проба:	-1.77e-5	0.034	-17.08
водная проба:	-1.80e-5	0.035	-17.57

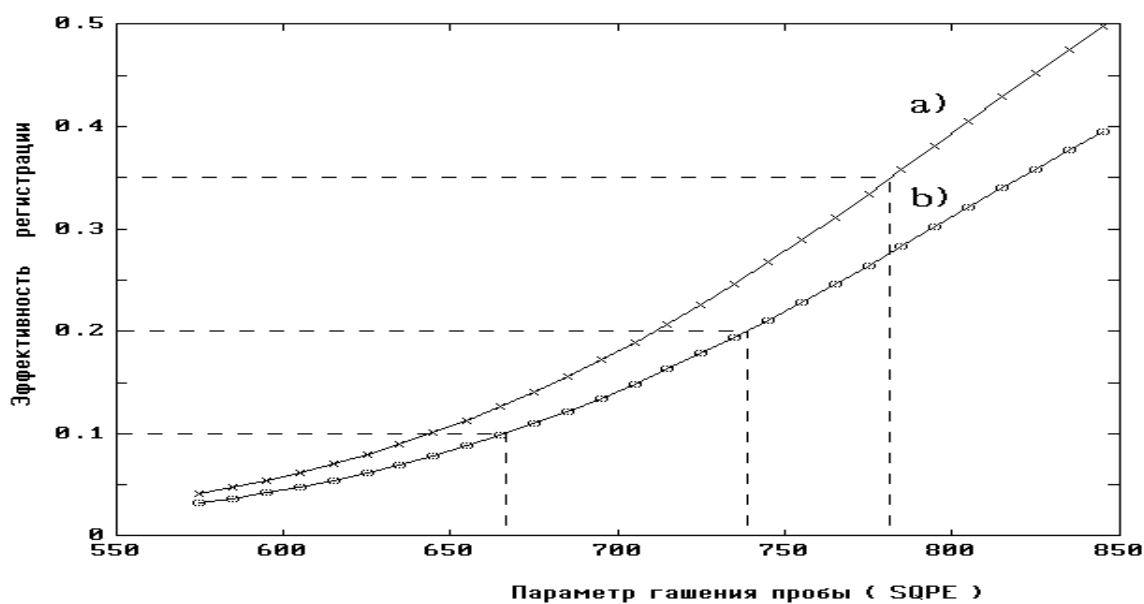


Рисунок 28. Зависимость эффективности регистрации ^{241}Pu (третия) от параметра гашения проб. А - органические пробы, В - водные пробы.

Видно, что условия регистрации в экстракционном сцинтиляторе существенно лучше. Для реальных проб, приготовленных экстракционным методом, эффективность составляет 35- 50%, а для проб, полученных путем смыва активности с подложки в одномолярный азотнокислый раствор - 10-20%. Фон при этом составляет 1.6 и 0.8 имп. в минуту соответственно. Минимальная детектируемая активность метода определения ^{241}Pu для 30% ошибки определения составляет 0.027-0.036 и 0.012-0.015 Бк на пробу за время измерения 120 минут, или для проб, приготовленных из 10 г почвы 2.7-3.6 и 1.2-1.5 Бк·кг⁻¹ соответственно. Интервалы указаны для реальных проб, что соответствует различным значениям уровня гашения проб. Наилучшее

разрешение α - и β -спектров достигается для органических проб в тефлоновых виалах, (см. Рисунок 29.).

Отметим, что для корректного расчета содержания ^{241}Pu в пробах специально определялось его примесное количество в метке. Уровень β/α соотношения для метки составило 0.11 и 0.39 для ^{236}Pu и ^{242}Pu соответственно.

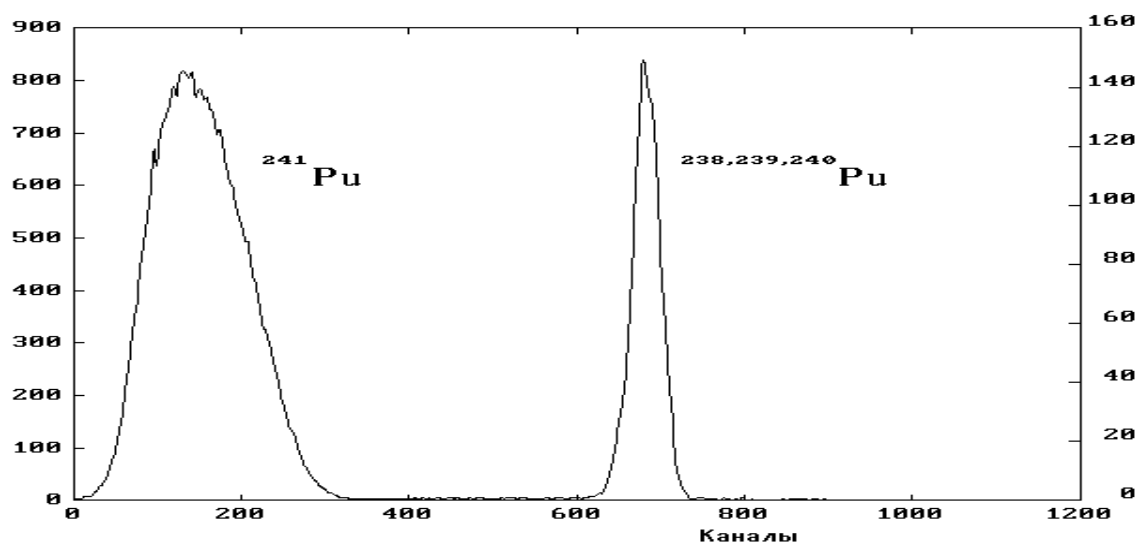


Рисунок 29. α - и β - спектры химически выделенного (экстрагированного) плутония из горячей частиц N217506.

Измерение α - и β -активности, осажденной на металлические подложки.

Для исследований содержания многих α -излучающих радионуклидов в пробах окружающей среды ($^{238,239,240}\text{Pu}$, ^{210}Po и др.) нашли применение методы, в которых используется регистрация излучения с металлической подложки. Это обусловлено как требованиями к качеству источника при измерении при помощи полупроводниковых α -спектрометров (тонкий слой), так и возможностью выполнения селективного осаждения: электрохимический метод для плутония или метод спонтанного осаждения для полония.

Методы осаждения указанных радионуклидов на подложки достаточно давно и хорошо разработаны и широко используются, являются селективными, а поэтому целесообразно рассмотреть возможность реализации измерения

таких подложек, используя технику жидкостно-сцинтилляционного счета (ЖСС). Необходимо отметить, что, осаждаемые таким же образом, β -излучатели хорошо измеримы благодаря способности современного оборудования для ЖСС регистрировать одновременно и независимо α - и β -излучение. Достоинство ЖСС метода измерения с подложек - это возможность воссоздания идентичности условий регистрации, т.е. отсутствие примесного гашения счетных проб, что позволяет легко провести процедуру калибровки. При этом предполагается, что осаждение на подложки имеет высокое качество.

Проведены испытания метода для некоторых типов образцов: электроосажденного плутония и спонтанноосажденного полония-210. Измерения проводились при помощи жидкостно-сцинтилляционного α -/ β -спектрометра Quantulus 1220™ при использовании МТФ виал объемом 3, 7 и 20 мл.

Установлено, что для регистрации α -излучения применимы любые из указанных типов виал, хотя в виалах большего объема α -спектр имеет лучшее разрешение и несколько большую интенсивность. Известная линейная зависимость регистрации интенсивности фона от объема побудила делать выбор между виалами объемом 3 и 7 мл. Предпочтительным оказалось применение 7 мл виал. Регистрация ^{241}Pu - низкоэнергетичного β -излучателя с подложек выполняема в 7 или 20 мл виалах, поскольку в 3 мл виалах недостаточен сбор фотовспышек, что отражается на эффективности регистрации, для ^{241}Pu - всего около 10%. По соображениям оптимизации фона лучшей оказывается 7 мл виала.

Таким образом, виала этого объема оказывается наиболее оптимальной для регистрации как α -, так и β - излучателей. Для нее получены следующие параметры. Для регистрации α -излучения: фон - 0.01 имп·мин⁻¹, эффективность регистрации - 50%; для ^{241}Pu фон - 0.55 имп·мин⁻¹, эффективность регистрации - 15%. Минимальная детектируемая активность (МДА) при измерении пробы в течении 2 часов с 50% погрешностью составляет: для регистрации α -излучения 0.01 Бк, для ^{241}Pu - 2.2 Бк. Эффективность

регистрации для других, более жестких β -излучателей стремится к 50%, фон не превышает 1.5 имп-мин⁻¹, а МДА при тех же условиях измерения составляет 0.12 Бк. α - и β -спектры калибровочного источника в виде металлического диска с монослоем плутония (^{242}Pu и ^{241}Pu), помещенного в 7 мл виалу, приведены ниже (см. Рисунок 30.).

Измерение содержания ^{241}Pu методом анализа металлических подложек включает "подгонку" до размера виалы - 16 мм - для анализа ранее приготовленных подложек;

- для новых изготавливаются подложки указанного диаметра и электроосаждение выполняется на них.

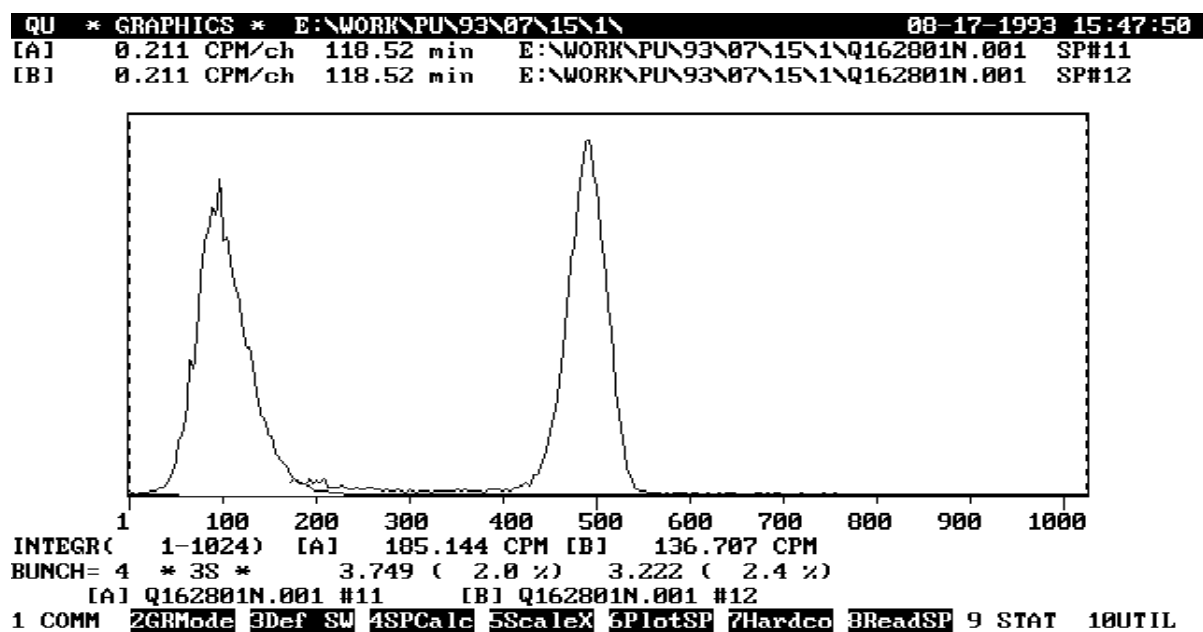


Рисунок 30. α - и β -спектры калибровочного источника металлического диска с монослоем плутония (^{242}Pu и ^{241}Pu), помещенного в 7 мл виалу.

Выводы

Для регистрации трития и ^{14}C предпочтительно применение методов жидкостно-сцинтилляционного счета, позволяющего получить максимальную эффективность регистрации β -излучения, что в сочетании с максимальной возможной концентрацией этих радионуклидов в счетной форме (вода и бензол для трития и радиоуглерода соответственно) дает наилучшее значение МДА.

Для получения счетной формы используется комплекс широко известных процедур: дисцилляция - для воды и синтез для бензола.

Одно из направлений развития методов измерения радионуклидов с применением жидких сцинтилляторов - измерения проб, содержащих несколько радионуклидов (обычно от 2 до 4) без предварительного химического разделения. Типичным примером является задача измерения ^{137}Cs , ^{134}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 сцинтилляционной смеси пробы и сцинтиллятора.

Разработанный метод декомпозиции сложных β -спектров, включающий энергетическую калибровку и математические процедуры обработки, позволяет избежать проведения перекалибровок при изменении уровня гашения или изменении радионуклидного состава пробы. Способ реализован на основе низкофонового жидкостно-сцинтилляционного спектрометра Quantulus 1220™ и может быть использован для любого другого типа спектрометра, в котором используется метод внешнего стандарта для контроля уровня гашения проб. Для реализации метода используются источники конверсионных электронов ^{109}Cd , ^{137}Cs , ^{207}Bi по энергетическим линиям конверсионных электронов 85, 624 и 975 кэВ, соответственно. Положения вершин пиков для указанных энергий конверсионных электронов зависят линейно от параметра гашения. Зависимости, полученные по отдельным источникам, совпадают с зависимостями, полученными по калибровочной смеси, что 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 набора калибровочных кривых для данного типа спектрометра. Все это дает возможность использовать минимальное количество наборов калибровочных спектров. Результаты анализа калибровок, выполненных для трех спектрометров Quantulus 1220™, позволяют утверждать,

что калибровочные коэффициенты, полученные на одном приборе могут, быть использованы на другом с относительной статистической погрешностью не более, чем 3% в диапазоне β -излучения свыше 30 кэВ.

Ряд имеющихся достоинств метода Черенковского счета применяемого для регистрации ^{90}Sr существенно расширяется при его стандартизации и применении для определения ^{90}Sr в пробах воды экспресс-методом. Применение этого метода для проб воды р.Днепра более эффективно, чем спектрометрического метода, поскольку объем пробы может составлять до 20 мл, а химический состав может колебаться в широких пределах.

Для регистрации излучения ^{241}Pu наиболее применимы методы ЖСС (регистрация в водном растворе или органическом экстрагенте) как и для случая трития или радиоуглерода. При этом максимальная эффективность, а соответственно, и наилучшее значение МДА достигается при регистрации в органической форме. Применима регистрация излучения ^{241}Pu с металлических подложек в геометрии 2π , это наиболее целесообразно в случаях, когда необходимо сохранить подготовленные мишени для последующих анализов и практически не требует дополнительных затрат по пробоподготовке.

Процедуры подготовки проб для исследований содержания трития, радиоуглерода, ^{90}Sr и ^{241}Pu в объектах окружающей среды, в сочетании с ЖСС методами измерений позволяют решать весь комплекс проблем мониторинга названных β -излучателей.

2.7. Технические и экономические показатели традиционных и предлагаемых методов определения активности радионуклидов

Для проведения оценки технических и экономических показателей традиционных и предлагаемых методов определения активности радионуклидов использованы описания традиционных методов подготовки проб окружающей среды для радиоэкологических исследований / 113., 26, **Ошибка! Закладка не определена.**, 88, 149 /, а также подходы к расчету

расценок и расценки, используемые Минчернобылем Украины при проведении работ по уточнению радиационной обстановки территорий Украины вследствие аварии на Чернобыльской АЭС / 179 /. По результатам оценок, приведенным в таблице 14 видно, что все предлагаемые методы более эффективны экономически. Выигрыш составляет от 2 до 5 раз по однотипным анализам при одновременном выигрыше на порядок по чувствительности.

Таблица 17.

Технические и экономические показатели традиционных и предлагаемых методов определения активности радионуклидов

Радио- нуклид	Чувствитель- ность *** (Бк на литр)	Объем пробы, мл. ****	Затраченное время, часов ***	Цена одного анализа, (доллары США) ***
^3H	10.0 *	1000	24	50
	1.0 **	8	3	16
^{14}C	1.0 *	7	48	100
	0.1 **	7	8	45-50
^{90}Sr	0.1 *	100 л.	670	50-55
	0.01 **	100	2	10-12
^{241}Pu	10.0 *	10 г.	24	≈100
	1.0 **	10 г.	3	40-50

* традиционный метод

** предлагаемый метод

*** при равных объемах проб

**** для одинаковой чувствительности

Глава 3. МОНИТОРИНГ ТРИТИЯ

3.1 Источники питьевого водоснабжения

Приводим обобщенные данные о содержании трития в источниках питьевого водоснабжения Украины, (см. Таблица 18.). Видно, что уровень содержания трития выше для поверхностных источников - колодцев и ниже для скважин, подпитка которых за счет поверхностных источников затруднена и определяется диффузией трития в глубокие водные горизонты, которая весьма продолжительна во времени. Усредненные значения содержание трития в воде открытых водоемов, непосредственно не подверженных влиянию АЭС, несколько выше, чем для колодцев и скважин, что хорошо согласуется с данными, приводимым в литературе / 2, 3, 172 /. Усредненные за год средние значения активностей не позволяют делать выводы о тенденции в ее изменении.

Таблица 18.

Содержание трития в источниках питьевого водоснабжения Украины в 1989-1990 гг. (Бк·л⁻¹)

Тип источника	Колич. проб	Средн.	Макс.	Год
колодец	726	8.5	39.0	1989
скважина	384	4.5	17.9	1989
водопров.	171	4.8	22.0	1989
колодец	481	5.8	44.0	1990
скважина	201	3.8	19.2	1990
водопров.	72	4.2	10.4	1990
водоемы	188	7.6	26.4	1989
водоемы	48	5.8	19.3	1990

3.2 Мониторинг выбросов АЭС

Сводные данные о содержании трития в окрестности АЭС отражают диапазон и динамику изменения содержания трития в технологических водоемах АЭС, (см. Таблица 19.). Данные по каждой АЭС дают представление о степени локализации выбросов и позволяют дифференцировать окрестные объекты по их доступности и подверженности влиянию источника выброса трития, (см. Таблица 19 - Таблица 23).

Таблица 19.

Содержание трития в режимных водоемах в окрестностях АЭС в 1989-1991 году (Бк·л⁻¹)

Тип источника	Колич. проб	Средн.	Мин.	Макс.	Год, мес.
Хмельницкая АЭС	11	5287.1	6.7	37057.1	1989
--/--	3	408.7	49.6	1098.3	1990
--/--	22	35.1	4.3	127.4	1991
ЗАЭС,	10	238.2	9.0	423.7	1988
площадка	13	101.9	8.8	297.3	1989
канал	33	53.7	12.8	330.6	1990
пруд	13	321.0	306.4	349.9	1991
ЮжноУкраинская	11	190.7	56.0	565.0	1991, 05
АЭС	9	140.9	51.0	470.0	1991, 06

В наибольшей степени видно влияние сброса на малые реки. Рассмотрим влияние выбросов Южноукраинской АЭС на ближайшие реки, (см. Таблица 19 и Рисунок 31.), где цифрами обозначены контрольные пункты (КП) на участках рек:

Южный Буг - **Ошибка!**,

Арбузинка - **Ошибка!**,

Мертвовод - **Ошибка!**.

Так в р.Арбузинка осуществляется технологический сброс, заметный по возрастанию содержания трития с 4.0-5.0 до 500 Бк·л⁻¹, который разбавляется при попадании в р.Мертвовод до уровня около 200 Бк·л⁻¹. Далее "след" сброса практически теряется при попадании в р.Южный Буг, где концентрация трития составляет 6.4 Бк·л⁻¹, что свидетельствует о высокой степени разбавления воды. При этом содержание трития в Ташлыкском водохранилище, которое включено в систему водообеспечения АЭС, колеблется на уровне 50-60 Бк·л⁻¹.

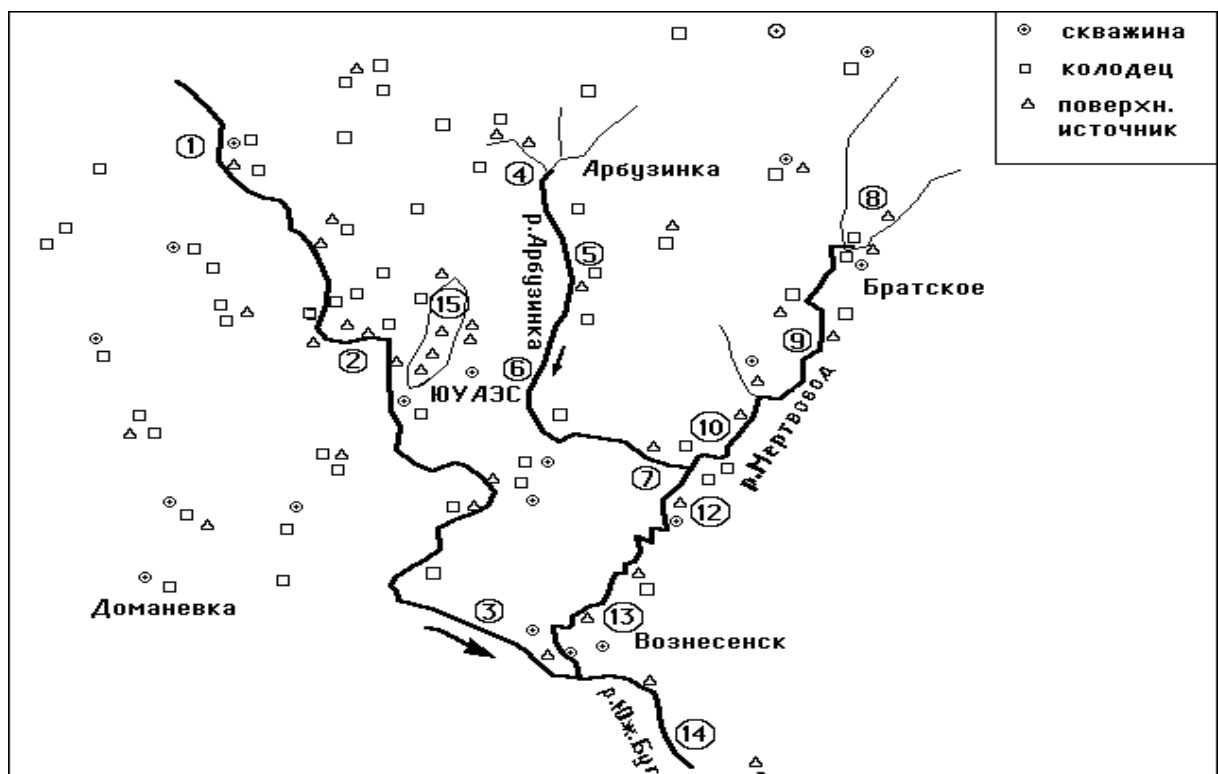


Рисунок 31. Схемы отбора проб в окрестности Южноукраинской АЭС.

При контроле за выбросами Запорожской АЭС, (см. Рисунок 32. и Таблица 19) отбор проб охватывал три поперечных сечения водохранилища в районе станции: ПР11, ПР12 и ПР13, а кроме этого, включил цепочку проб, отобранных вдоль правобережья, в том числе водозаборы г.Никополь, (см. Рисунок 32, сноски). Из указанных проб выделяются только пункты технологического водообмена. Видно также проявление выброса в водохранилище в период технологической смены воды пруда охладителя (“продувки”), причем

содержание трития в водохранилище повышается локально не более чем в 2-3 раза относительно стационарного содержания трития в Днепре и быстро уменьшается по мере разбавления. Содержание трития в пруде охладителя сохраняется на постоянном уровне 350 ± 20 Бк·л⁻¹.

Таблица 20.

Содержание трития в воде в районе размещения Южноукраинской АЭС в 1991 г. (Бк·л⁻¹)

Пункты, не имеющие непосредственной связи с контуром охлаждения Южноукраинской АЭС			
№ п/п	Пункты опробования,	май	июль
1 -	р.Южный Буг, с.Семеновка	-	3.4
2 -	Ю.Украинск	6.9	-
3 -	г.Вознесенск	4.6	4.5
4 -	р.Арбузинка, пгт.Арбузинка	5.2	5.4
5 -	с.Марьяновка		4.5
8 -	р.Мертовод, пос.Братское	-	2.2
9 -	с.Павлодаровка	-	2.9
10 -	с.Актово	-	2.6
Пункты, непосредственно связанные с контуром охлаждения Южно-украинской АЭС			
	Обводной канал	Май	Июль
	у 1-го блока	--	61.0
	у 3-го блока	--	56.0
15 а	Ташлыкское	58.0	51.0
15 б	водохранилище	60.3	59.0
15 в	(с севера на юг)	57.1	59.0
15 г	-	58.2	56.0
6	р.Арбузинка, с.Агрономия	480.0	470.0
7	с.Трикраты	565.1	299.0
11	р.Мертовод, с.Вороновка	204.0	138.1
12 -	с.Таборовка	242.1	219.4
13 -	г.Вознесенск	257.3	199.0
14 -	р.Южный Буг, с.Раково	6.4	-

Данные, касающиеся мониторинга Хмельницкой АЭС, представлены по двум вариантам мониторинга: локального загрязнения - (см. Рисунок 33. и Таблица 22.), что позволяет проследить разбавление удельной активности трития по цепочке: АЭС-канал-пруд-охладитель-река и регионального (см. Рисунок 34.

и Таблица 23), где только в пруде-охладителе содержание трития повышено до уровня $50-100 \text{ Бк}\cdot\text{л}^{-1}$. Результаты мониторинга вокруг Ровенской АЭС отражают стабильность работы станции и хорошо согласуются с ранее полученными данными (см. Рисунок 35. и Таблица 24.) / 24, 162 /.

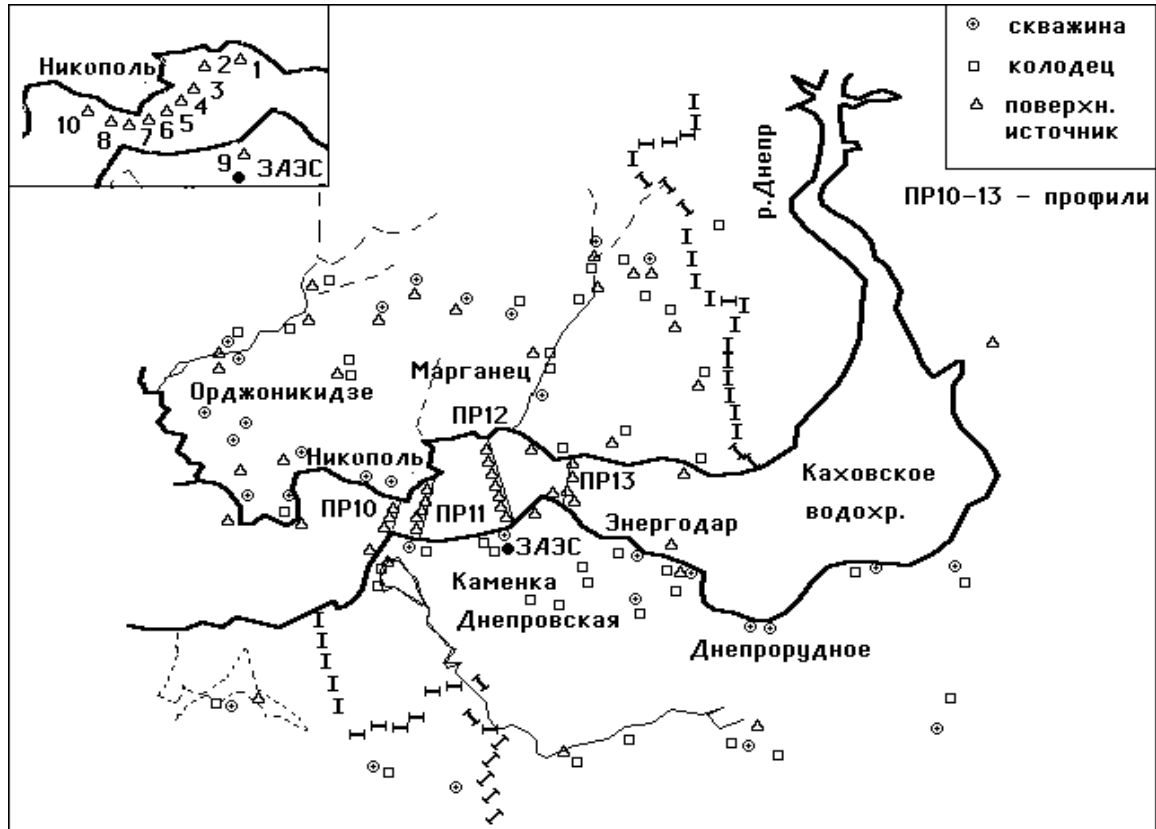


Рисунок 32. Схемы отбора проб в окрестности Запорожской АЭС (Глобальный мониторинг). / 162, 172 /

Таблица 21.

Содержание трития в режимных водоемах в окрестностях Запорожской АЭС в 1991 г ($\text{Бк}\cdot\text{л}^{-1}$)

Дата отбора проб: 04.06.91			Дата отбора проб: 29.08.91		
№п/п	Место отбора	Ауд.	№ п/п	Место отбора	Ауд.
3639	Мусиевка	6.2	3759	Под.канал	345.1
3640	Красногригорьевка	4.0	3760	Сбросный канал	322.3
3641	Зона отдыха	7.6	3761	Каховское вдхр.	7.7
3642	Водозабор	3.2	3762	Пруд охл.	326.2
3643	До водозабора	17.0	3763	Пруд охл.	314.8
3644	Пляж	5.3	3764	Каховское вдхр.	5.0
3645	Очистн. соор.	7.4	3765	Сбросный канал	331.5
3646	До соор.ЮТЗ	4.3	3766	Сбросный канал	306.4

3647	Охладитель	349.9	3767	Сбросный канал	320.9
3648	ТЭС выход	7.7	3768	Сбросный канал	327.1
Дата отбора 18.11.91					
4025	водоподв. пруд охл.	6.7	4026	каналы 4 блок	10.4
4028	северная часть	313.0	4027	градирни	433.8
4029	южная часть	307.2			

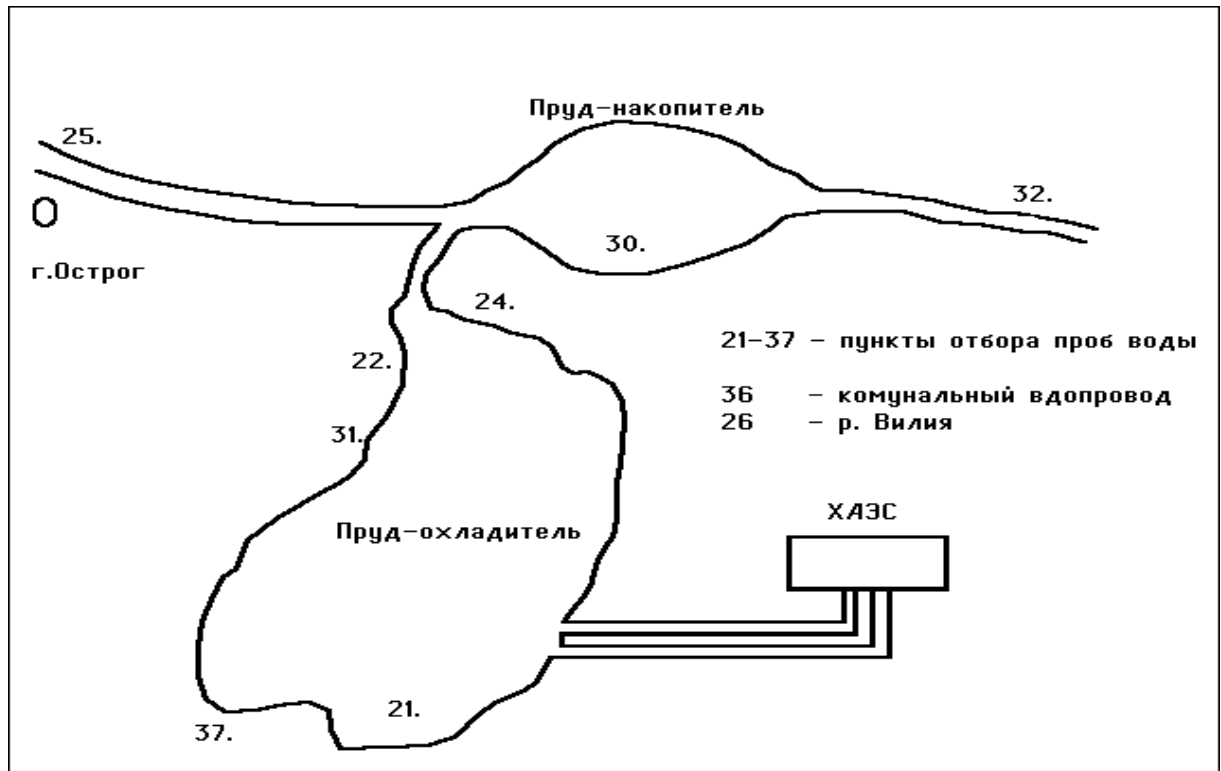


Рисунок 33. Схемы отбора проб в окрестности Хмельницкая АЭС: локальный мониторинг.

Таблица 22.

Содержание трития в режимных водоемах в окрестностях Хмельницкой АЭС в 1991 г. (Бк·л⁻¹)

Дата отбора проб : 20.06.91			Дата отбора проб: 30.11.91		
№ п/п	Активн.	Код	№ п/п	Активн.	Код
3769	53.6	1	3724	50.4	22
3770	43.9	2	3725	127.4	24
3771	40.6	3	3726	7.9	25
3772	52.0	4	3727	8.9	26
3773	13.5	6	3728	22.6	30

3774	51.1	7	3729	56.0	31
3775	9.4	9	3730	12.0	32
3776	21.2	11	3731	8.8	36
3777	45.6	12	3732	49.4	37
3778	6.9	20	3779	4.3	19
3780	43.1	22			

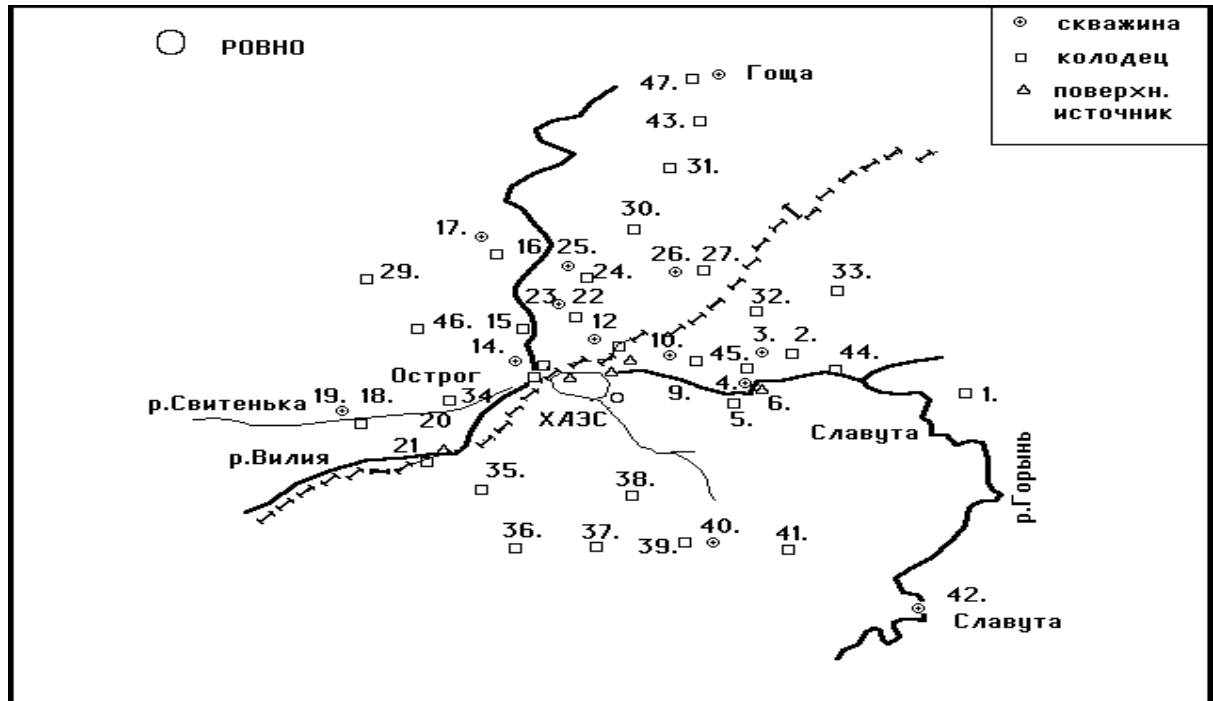


Рисунок 34. Схемы отбора проб в окрестности Хмельницкая АЭС: региональный мониторинг.

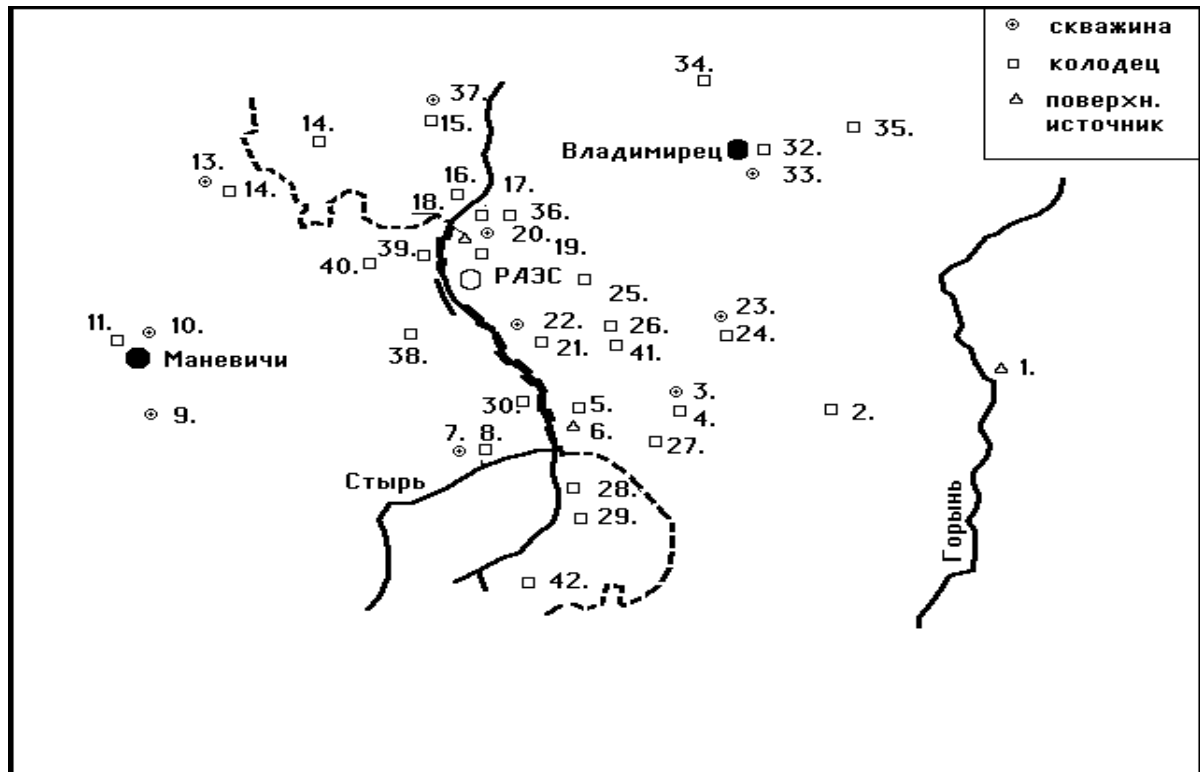


Рисунок 35. Схемы отбора проб в окрестности Ровенская АЭС.

Таблица 23.

Содержание трития в природных водах в зоне влияния Хмельницкой АЭС 1991

г. (Бк·л⁻¹)

Номер на схеме	Место отбора	Тип источника	январь	апрель	ноябрь
2	ст.Кривин	кол.	3.1	7.4	6.3
3	ст.Кривин	скв.	4.4	2.6	3.0
4	Полянь	скв	4.8	4.3	2.4
5	Комаровка	кол.	8.5	7.1	6.9
6	Комаровка	р.Горынь	3.3	6.9	4.0
7	сев.-вост.	пруд-охл.	43.1	113.6	45.2
8	сев.-зап.	пруд-охл.	40.4	47.4	44.2
9	Нетешин	кол.	7.0	6.0	7.6
10	Нетешин	скв.	1.2	4.3	3.7
11	Вельбовно	кол.	7.9	8.6	8.4
12	Вельбовно	скв.	2.6	3.6	2.0
13	Острог	кол.	6.7	3.9	5.8
14	Острог	скв.	2.9	6.4	2.2
15	Розваж	кол.	6.3	5.0	4.5
16	Оженин	кол.	2.3	5.6	4.3
17	Оженин	скв.	6.9	5.7	4.6
18	Новома-	кол.	2.6	-	5.1
19	линов	скв.	1.9	-	-
20	Каменка	р.Виляя	3.4	5.8	4.6
21	Каменка	кол.	6.7	6.0	-
22	Курганы	кол.	4.3	6.8	7.3
23	Курганы	скв.	1.0	2.8	1.0
24	Могиляны	кол.	6.0	5.2	2.7
25	Могиляны	скв.	1.2	3.8	3.6
26	Мощаница	скв.	2.6	5.4	1.9
27	Мощаница	кол.	9.4	10.7	7.6
28	мост на ХАЭС	р.Горынь	3.7	6.9	3.3
29	Плоское	кол.	7.1	-	3.5
30	Милятин	кол.	6.0	5.1	4.7
31	Тесов	кол.	1.9	6.4	8.3
32	Н.Кривин	кол.	-	-	9.8
35	Дертка	кол.	5.8	-	-
36	Мякоты	кол.	7.0	-	-
43	Бочаница	кол.	1.7	11.3	4.6
45	Полянь	кол.	-	6.4	-
47	Гоща	кол.	-	-	4.9

Таблица 24.

Содержание трития в режимных водоемах в окрестностях Ровенской АЭС в 1990-1991 г (Бк·л⁻¹)

№ п/п	Название водопункта	1990(1)	1990(2)	1991(1)	1991(2)	
1	р.Горынь	12.0	5.6	4.2	5.2	
2	с.Ромейки	колодец	6.5	10.9	-	-
3	с.Поличи	скважина	5.7	5.4	5.7	2.0
4	с.Поличи	колодец	10.6	5.3	7.4	1.8
5	с.Маюнич	колодец	7.0	8.9	5.2	3.4
6	с.Маюнич	р.Стырь	7.2	5.3	3.2	2.5
7	с.Ст.Чорто-	скважина	2.6	3.5	5.5	3.2
8	рийск	родник	4.6	4.9	4.6	1.7
9	с.Оконск	родник	7.8	3.7	9.5	5.6
10	г.Маневич	скважина	9.4	5.4	5.1	1.8
11	г.Маневич	колодец	8.5	11.4	10.8	4.5
12	с.Галузия	колодец	9.4	8.4	8.9	1.0
13	с.Галузия	скважина	4.5	2.4	2.5	-
14	с.Березина	колодец	4.3	8.5	-	-
15	Б. Воля	колодец	5.2	5.0	4.2	2.8
16	с.Собеицы	скважина	6.0	0.9	2.4	1.3
17	с.Собеицы	колодец	6.0	3.1	7.2	4.1
18	р.Стырь	С.Рафаловка	5.8	2.9	8.5	7.1
19	С.Рафаловка	колодец	6.0	9.3	8.0	7.2
20	С.Рафаловка	скважина	2.1	3.8	2.6	2.5
21	с.Заболотье	колодец	6.9	7.1	7.5	3.4
22	с.Заболотье	скважина	1.0	7.6	4.5	1.0
23	В.Жолудск	скважина	1.0	6.2	-	1.0
24	с.Жолудск	колодец	3.0	-	-	2.5
25	с.Суховоля	колодец	5.1	-	7.4	5.3
26	Рафаловка	скважина	2.1	-	3.5	3.8
27	с.Иванчи	колодец	6.4	-	5.7	4.4
28	с.М.Осница	колодец	3.6	-	-	-
29	с.Б.Осница	колодец	5.2	-	-	-
30	Козлинич	колодец	4.1	-	-	4.4
31	Коспохновка	колодец	4.5	-	6.0	4.5
32	Владимирец	колодец	4.0	-	-	-
33	Владимирец	скважина	4.6	-	-	-
34	Красноселье	колодец	6.3	-	-	-

35 с.Каноничи	колодец	5.9	-	-	-
36 с.Бабка	колодец	6.4	-	-	-
37 Б. Воля	скважина	-	1.0	2.3	1.7
38 Б.Медвешка	колодец	-	7.4	8.2	5.5
39 с.Коходин	колодец	4.5	-	6.0	2.5

На основе усредненных данных, (см. Таблица 18.) можно провести расчет доз облучения населения за счет техногенного загрязнения тритием источников питьевого водоснабжения. Снабжение жителей Украины питьевой водой обеспечивается тремя основными типами источников: водой рек и открытых водоемов - 67% численности населения, т.е. 35 млн.человек из 52 млн., водой из скважин - 22% и водой из колодцев - 11%. Таким образом, за вычетом природной компоненты, среднее содержание трития в воде открытых водоемов и рек равно 4-8 Бк·л⁻¹, в воде колодцев - 5-9 Бк·л⁻¹ и в воде скважин - 3-7 Бк·л⁻¹. Средневзвешенная доза облучения населения Украины за счет техногенного трития в питьевой воде с учетом структуры водопотребления и усреднения содержания трития в различных источниках питьевого водоснабжения составляет 0.24-0.46 мкЗв в год при дозовом коэффициенте 0.05мкЗв·год⁻¹·Бк⁻¹·л / 2 /. Годовая коллективная доза на все население Украины - 13-24 чел.-Зв.

3.3 Тритий в осадках

Исследования содержания трития в осадках проводилась в рамках совместных исследований с НИИ Гидромета Украины, начиная с конца 1990 года. За основу взяты около 50-ти наблюдательных пунктов Гидромета по территории Украины, Молдовы и республики Крым. В качестве образцов использовались части усредненных за месяц проб осадков. За время исследований проанализировано более 1000 образцов. Счетный образец готовился для измерений методом жидкостно-сцинтилляционного счета: 8 мл дистиллированной пробы и 12 мл ЖС Optiphase Hisave 3 в пластиковой виале. 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.

Результаты мониторинга представлены на рисунках 36-39. Для анализа результаты рассматривались следующим образом: временной ряд: по месяцам за каждый год, по пунктам отбора в хронологии. Временной ряд результатов всех проб, данные, отсортированные в пределах каждого месяца по активности (интервал активности 1-10 Бк·л⁻¹), позволяют видеть закономерности изменения уровней трития в целом и особенности распределения проб по активности, (см. Рисунок 36. и Рисунок 37.). Видно, что подавляющее большинство проб лежит в диапазоне активности от 1-2 и до 8-10 Бк·л⁻¹. Имеющиеся повышенные уровни - свыше 10 Бк·л⁻¹, и в том числе свыше 100 Бк·л⁻¹ достаточно редки, обусловлены техногенными выбросами и прежде всего характерны для г.Киева, (см. Рисунок 38.). Для удобства отображения данных об изменениях уровня содержания трития приведены в логарифмическом масштабе. Эти повышенные уровни трития в осадках в Киеве обусловлены влиянием выбросов тритиевой лаборатории НИИ ядерных исследований АН Украины, расположенной вблизи точки отбора проб. Привлекая данные результатов отбора проб в 1993 г. для продублированных точек в более удаленном от места выброса месте, (см. Рисунок 38. (Киев), последние несколько результатов), можно уверенно говорить о локальном влиянии этого источника выброса трития.

При рассмотрении данных по другим точкам пробоотбора (см. Рисунок 38. и Рисунок 39.) видно, что основной диапазон изменения содержания трития в осадках составляет от 2 до 7 Бк·л⁻¹. Видна устойчивая тенденция к снижению уровня содержания трития в осадках, что соответствует данным литературы / 23, 5, 6 /, а имеющиеся повышенные уровни (от единиц до нескольких десятков Бк·л⁻¹) редки для всех точек пробоотбора и соответствуют перемещению воздушных масс, ранее контактировавших с выбросами или пересекавшими зоны влияния АЭС. Для более глубокого анализа необходимо привлечение большей статистики результатов, а также подробных погодных данных по всем наблюдательным пунктам.

Важно обратить внимание на колебания в содержании трития в течении года (см, Рисунок 40. по годам 1991, 1992 и 1993 сверху вниз соответственно.).

Для 1991 года характерна картина повышения уровня содержания трития в осадках в летние месяцы, что хорошо согласуется с данными литературы / 23, 5, 6 /. В 1992 и 1993 годах эта тенденция в основном сохраняется, хотя в августе уровни существенно ниже от ожидаемых, что указывает на некоторый дополнительный фактор, который следует определить.

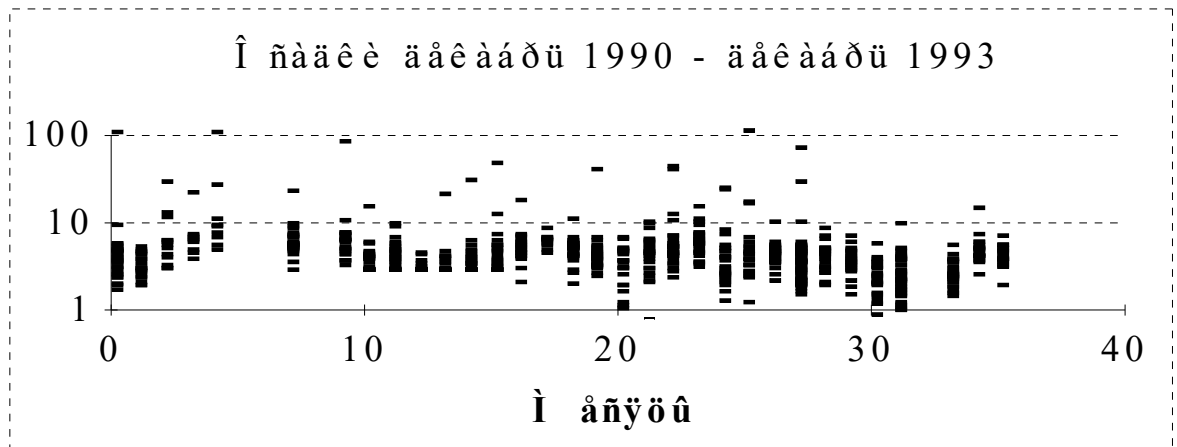


Рисунок 36. Содержание трития в осадках на Украине за период с декабря 1990 года (Бк на литр). Пробы усреднены за месяц по 50 пунктам сети Гидромета. По горизонтали - месяцы со времени начала мониторинга

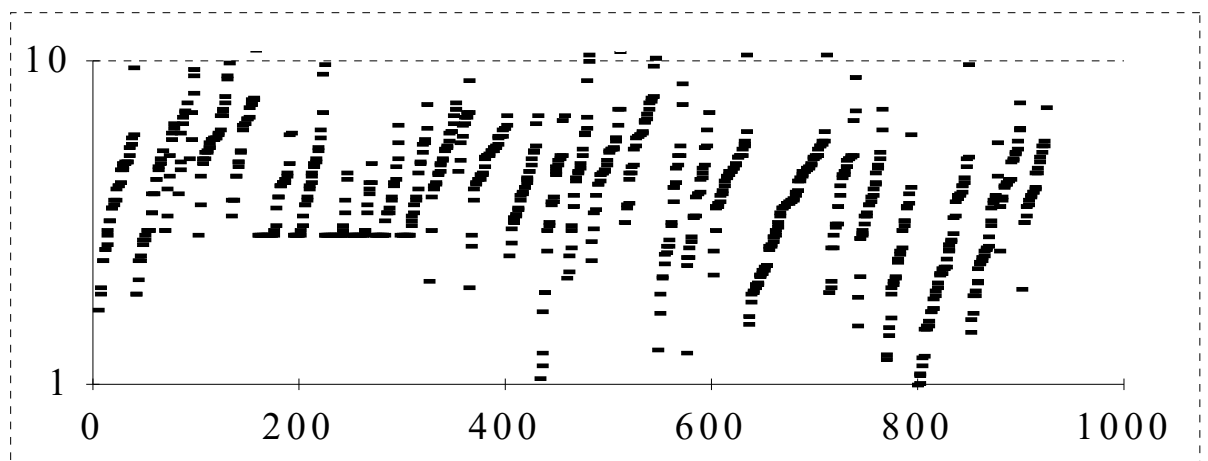
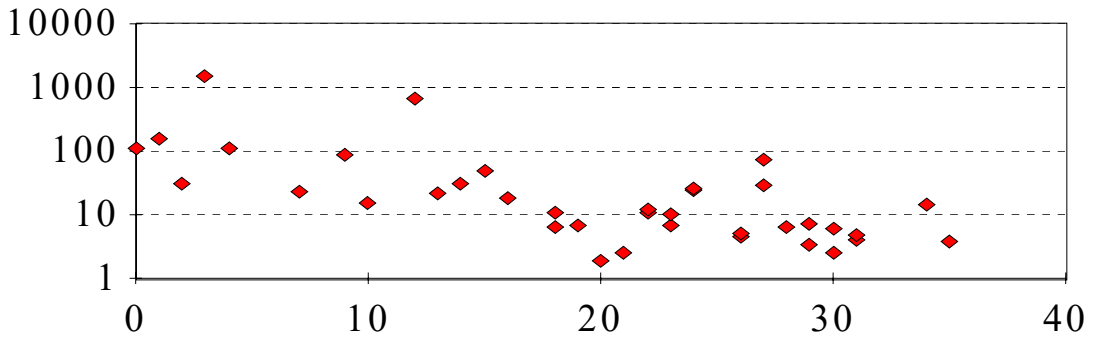
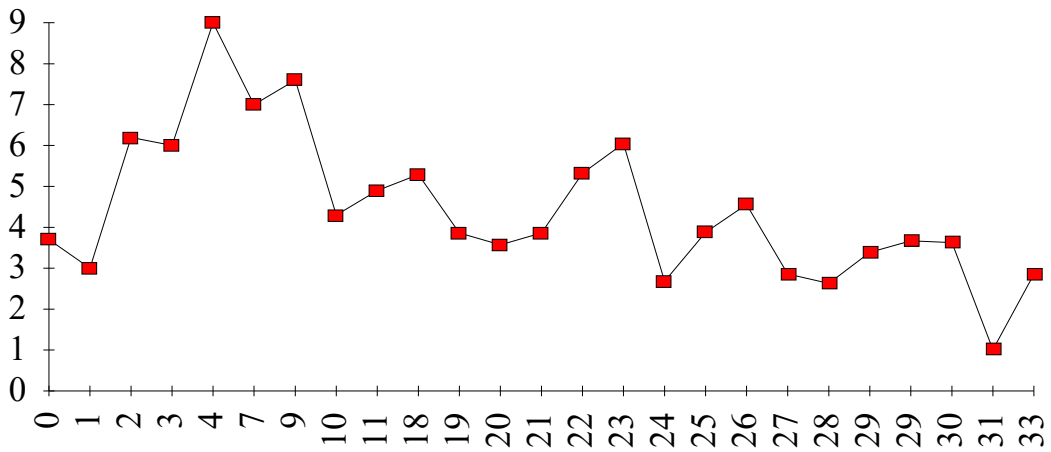


Рисунок 37. Содержание трития в осадках на Украине за период с декабря 1990 года (Бк на литр). Амплитудные распределения по месяцам, (интервал активности $1-10 \text{ Бк} \cdot \text{л}^{-1}$).

Èèââ



Èèðèëëî âêà



Èî áâëÿèè

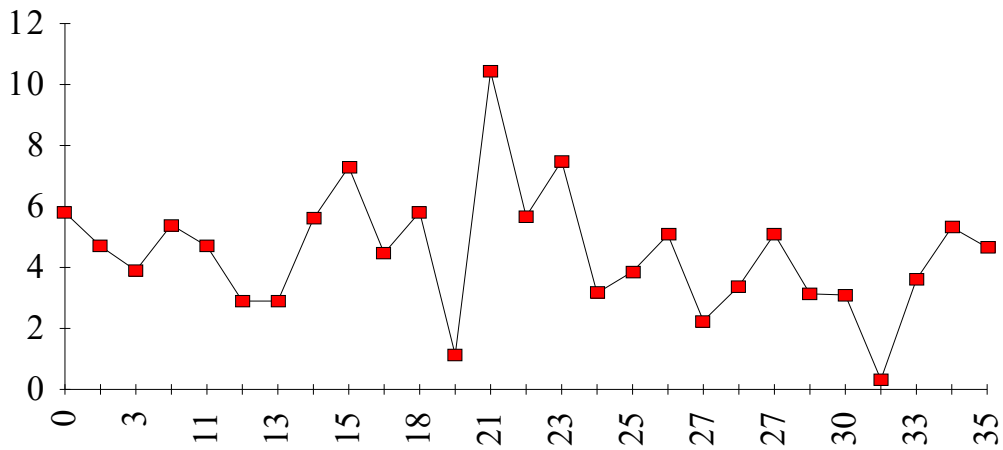
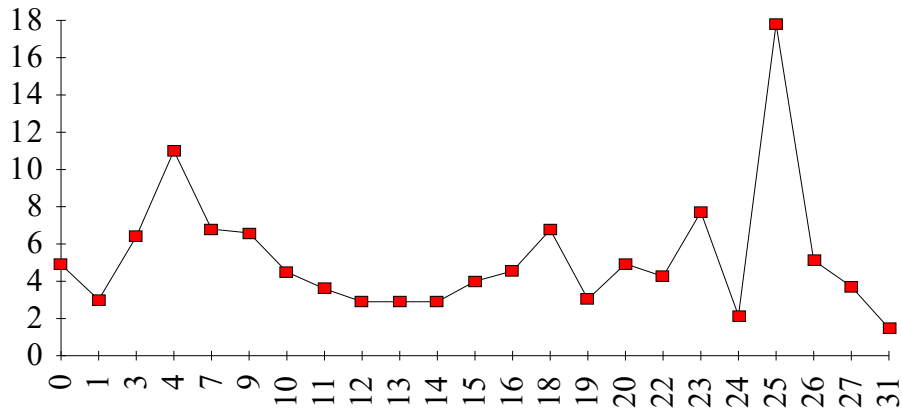
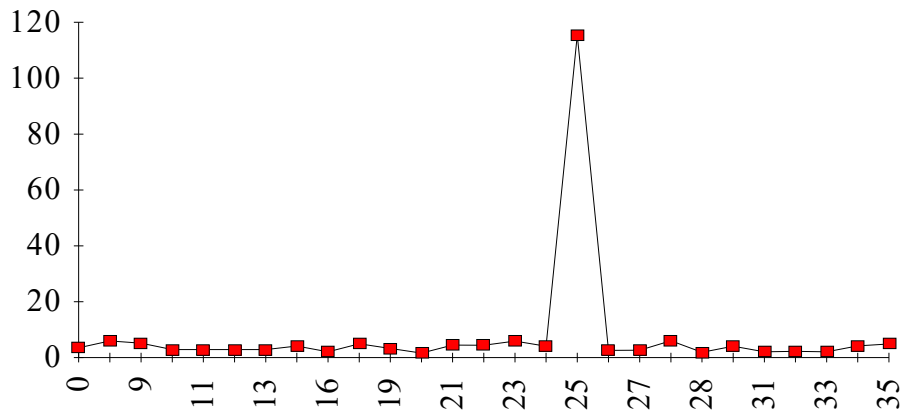


Рисунок 38. Особенности изменения содержания трития в осадках на Украине за период с декабря 1990 года по точкам отбора проб (Бк на литр).

Í èæí áãï ðñê



Ðàää Ðóññêàÿ



Ñàèòÿçü

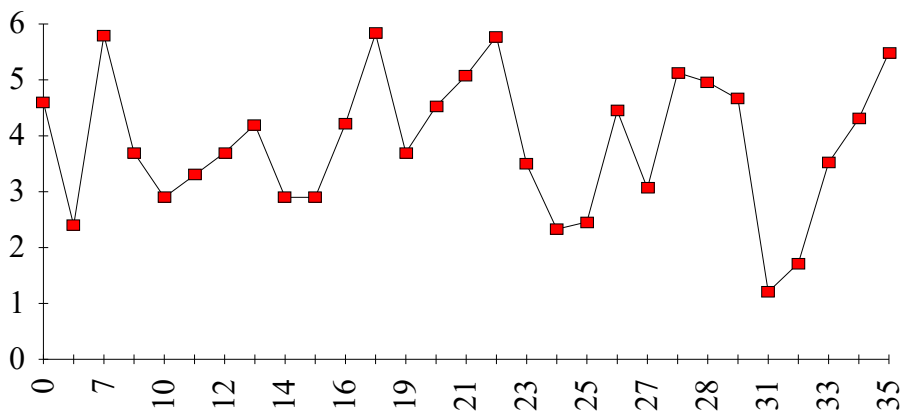


Рисунок 39. Особенности изменения содержания трития в осадках на Украине за период с декабря 1990 года по точкам отбора проб (Бк на литр).

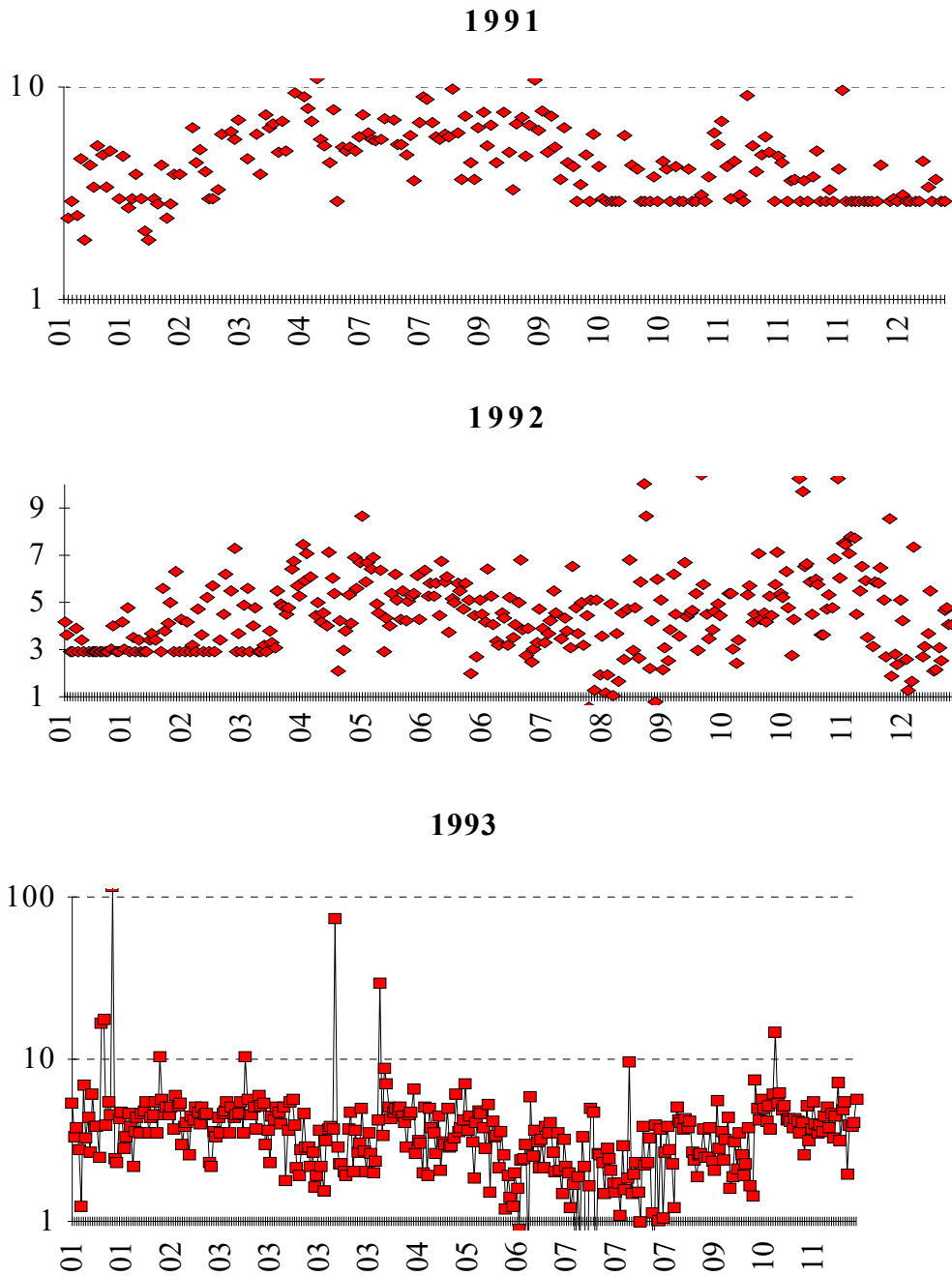


Рисунок 40. Посезонные колебания трития в осадках по годам.

Выводы.

Таким образом, результаты мониторинга дают представление о диапазоне и динамике изменения содержания трития в окружающей среде, позволяют дифференцировать объекты окружающей среды по их доступности и подверженности влиянию источников выбросов трития. Повышенные уровни

трития наблюдаются в технологических водоемах и системах водообмена АЭС, причем влияние выбросов АЭС на содержание трития в окрестных реках зависит от применяемой системы водообмена, степени разбавления сбросных вод и составляет обычно 5.0-500 Бк·л⁻¹. Источники питьевого водоснабжения имеют содержание трития, соответствующее современному его "фоновому" значению, что определяется его остаточным количеством, обусловленным глобальными выбросами трития при испытаниях оружия, а также другими техногенными выбросами. Уровни трития для скважин ниже, чем для связанных водообменом с источниками выброса, не превышают величины в несколько Бк·л⁻¹.

Средневзвешенное содержание трития в питьевой воде на Украине составляет 5-8 Бк·л⁻¹, что дает дозовую добавку 0.24-0.46 мкЗв в год. При этом относительно невысокие коллективные дозы не снимают потенциальную опасность воздействия трития при локальных и глобальных загрязнениях.

Общие закономерности изменения содержания трития в осадках хорошо согласуется с данными литературы о том, что содержание трития снижается. Аномальные повышенные уровни трития в осадках свидетельствуют о влиянии выбросов техногенных источников трития.

Глава 4. РЕТРОСПЕКТИВНОЕ ВОССТАНОВЛЕНИЕ УРОВНЯ АВАРИЙНОГО ВЫБРОСА ^{14}C ВСЛЕДСТВИЕ АВАРИИ НА ЧЕРНОБЫЛЬСКОЙ АЭС

Для установления степени усвоения растениями ^{14}C в процессе аварии и в последующие вегетационные периоды, а также для оценки диапазона колебания уровня накопления ^{14}C из аварийного выброса в зависимости от расположения точки отбора пробы, проводился отбор проб и определялись уровни содержания радиоуглерода в соответствующих кольцах деревьев.

Это предпринималось для оценки диапазона возможных дозовых нагрузок, обусловленных выбросами ^{14}C и перспективы использования возможной корреляции содержания избыточного ^{14}C в воздухе во время выброса с содержанием других радиоактивных элементов в газообразной форме аварийного происхождения.

Приведенные соображения были положены в основу проведения исследований содержания ^{14}C в ряде образцов растительности, собранной в 1986 году, и в годовых кольцах, отобранных 1989 году из деревьев, которые росли вблизи 4-го блока ЧАЭС на расстоянии 2,5, 4 и 6 км. по направлениям предположительного максимального накопления ^{14}C , т.е. на север, северо-запад и запад, а также пробы отобранной в южном направлении. Были также проведены исследования нескольких образцов графита из 4-го блока ЧАЭС. Анализ полученных данных проведен нами ранее, как для определения уровней выброса радиоуглерода, доз облучения населения за счет радиоуглерода / 32 /, так и касаясь выводов о возможной корреляции уровней накопления в растительности аварийного радиоуглерода и уровней выброса других радионуклидов и доз облучения населения, обусловленных этими радионуклидами. Имеется в виду прежде всего радиойод / 32, 33 /. Для обработки проб с большей точностью проведена калибровка с учетом "кривой гашения". Основные выводы не изменились при уточнении результатов обработки проб, хотя сами результаты немного изменились. Приводим

уточненные данные (см., Рисунок 41., Таблица 27.). По приведенным данным видно, что максимальная удельная активность ^{14}C наблюдается в однолетних растениях 1986 года.

4.1. Одногодичная растительность

Интересно рассмотреть данные о содержании ^{14}C совместно с данными об удельной активности проб растительности по ряду других радионуклидов, (см. Рисунок 41., Рисунок 42.). Наблюдаемая корреляция соотношения удельных активностей проб одногодичной растительности по ^{90}Sr (Бк·кг $^{-1}$ сухого веса) и ^{14}C (Бк·кг $^{-1}$ углерода) к удельной активности проб одногодичной растительности по ^{90}Sr (Бк·кг $^{-1}$ сухого веса) дает основание считать, что часть активности ^{14}C сосредоточена в пылеобразном графите выпадений, что практически не позволяет использовать пробы растительности 1986 года (золы и/или гербарии) для определения аварийного уровня радиоуглерода в воздухе. В пользу этого говорит также существенное отличие в содержании радиоуглерода в пробах между собой как для раннего (начало мая), так и для более позднего отбора (конец июля-август), (см. Рисунок 41. и Рисунок 42.).

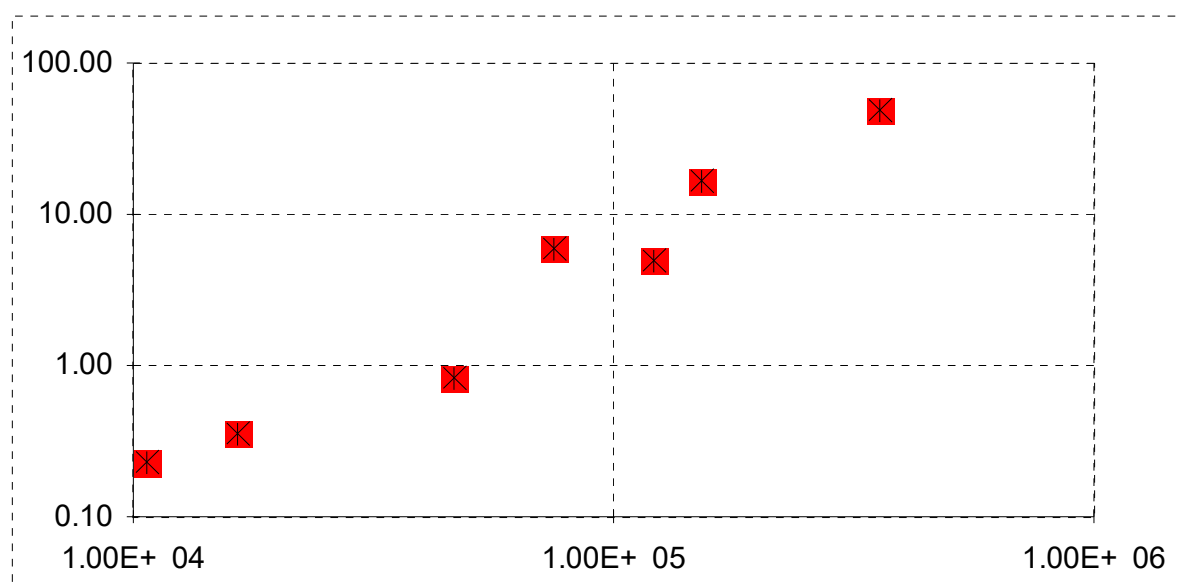


Рисунок 41. Зависимости соотношения удельной активности проб одногодичной растительности по ^{90}Sr (Бк·кг $^{-1}$ сухого веса) к удельной активности ^{14}C (Бк·кг $^{-1}$ углерода) от удельной активности проб одногодичной растительности по ^{90}Sr (Бк·кг $^{-1}$ сухого веса). Пробы растительности отобраны летом 1986 г. в г.Киеве

Таблица 25.

Содержание радиоуглерода в образцах однолетних растений, отобранных в 1986г. в окрестностях пруда охладителя ЧАЭС, в процентах от современного содержания ^{14}C

N	Название растения	Масса, г	Modern, %	+-, %
1	Полынь	2.30	4519.9	46.3
2	Злак дикорастущий	2.57	5901.5	60.5
3	Полынь	2.62	5567.2	57.0
4	Злак дикорастущий	2.85	3682.5	37.7

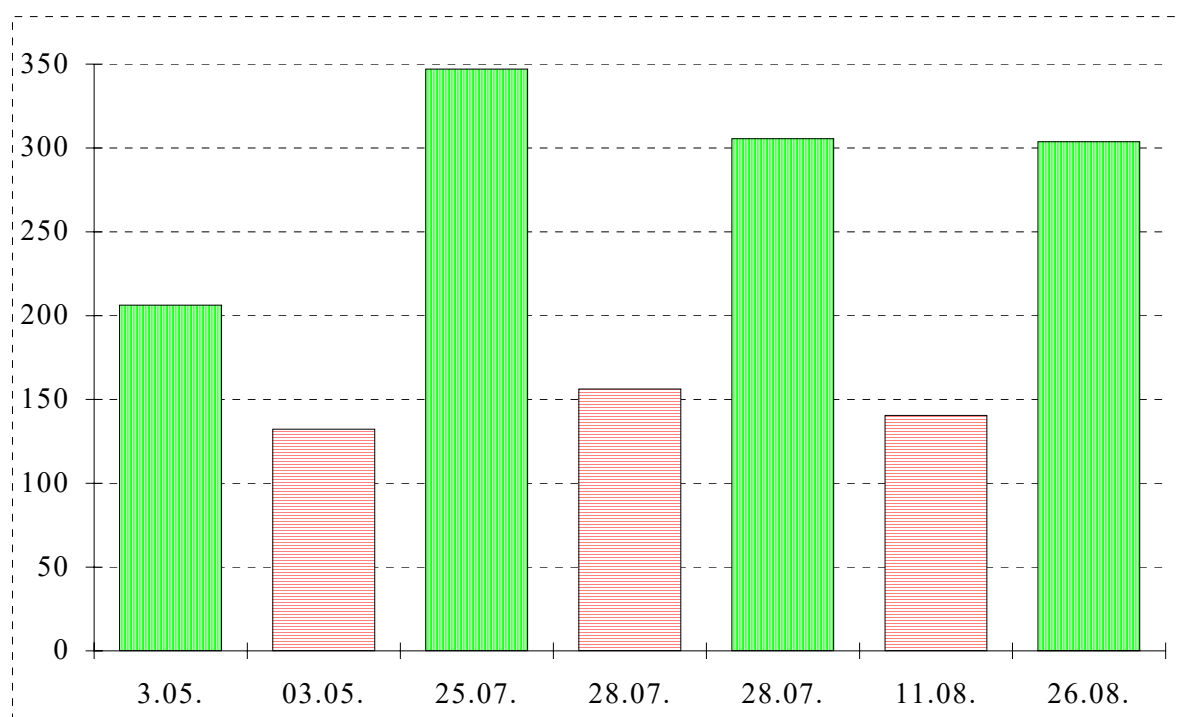


Рисунок 42. Избыточная активность $\Delta^{14}\text{C}$ (Бк·кг⁻¹ углерода) проб растительности. Пробоотбор - лето 1986 г. в г.Киеве

Таблица 26.

Содержание радиоуглерода и ^{90}Sr в образцах однолетних растений, отобранных в 1986г. в г.Киеве

№	Вид пробы	Дата отбора	^{14}C Modern %	^{14}C (Бк·кг ⁻¹ углерода)	^{90}Sr (10 ⁴ ·Бк·кг ⁻¹ золы)
435	листья	03.05.86	206.2	468	12.1
438	трава	03.05.86	132.2	300	35.9
3299	хвоя	25.07.86	347	788	4.66
3300	листья (липа)	28.07.86	156.2	355	7.53
3306	разнотравье	28.07.86	305.5	693	1.65
3476	хвоя	11.08.86	140.4	319	15.3
3580	листья (липа)	26.08.86	303.8	690	1.07

* - Погрешность определения ^{14}C составляет
0.8-1.2% при возрасте до 200%,
3.0% - при возрасте свыше 300%

4.2. Годичные кольца деревьев

Для удобства анализа результатов о содержании ^{14}C в годичных кольцах деревьев (см. Таблица 27. и Рисунок 43.) временная шкала разбита на четыре интервала: 1 - участок до ввода в эксплуатацию Чернобыльской АЭС (1967-78гг.); 2 - доаварийный участок работы станции (1979-85гг.); 3 - аварийный выброс; 4 - послеаварийный период (1987-89гг.). Первый участок отражает процессы глобального радиоуглеродного обмена, связанного с прекращением испытаний ядерного оружия и индустриальным эффектом / **Ошибка! Закладка не определена.**, 178, 26 /.

Процессы быстрого (порядка одного месяца) перемешивания CO_2 по всей атмосфере и вовлечения избыточного радиоуглерода в биологические процессы приводят к экспоненциальному спаду содержания ^{14}C в воздухе.

Экстраполяция закономерности изменения содержания радиоуглерода на первом участке на весь последующий временной интервал (прямая в полулогарифмическом масштабе) позволяет выделить компоненты, обусловленные запуском в работу ЧАЭС и аварийным выбросом ЧАЭС. Ввод в эксплуатацию ЧАЭС привел к тому, что начиная с 1979г. содержание ^{14}C в

окружающей среде возросло, что привело к увеличению его содержания в растительности. Как видно, статистически значимые уровни содержания ^{14}C за счет аварийного выброса наблюдаются во всех точках пробоотбора вблизи ЧАЭС.

Максимальная концентрация ^{14}C обнаружена в пробе, взятой из точки, расположенной в 4 км на северо-запад от ЧАЭС, где содержание радиоуглерода в древесном кольце 1986 года составляет 2878.5% от современного уровня. На основе данных о содержании ^{14}C в кольцах 1986 года можно определить усредненное содержание радиоуглерода в воздухе во время выброса. Таким образом, для точки отбора с максимальным содержанием ^{14}C в предположении равномерного выброса в течении 14 дней и 210 дней вегетационного периода усредненное содержание радиоуглерода в воздухе во время выброса превышало 40000% от современного уровня (около $50 \text{ Бк}\cdot\text{м}^{-3}$). Учитывая влияние колебания погодных условий можно констатировать, что максимальное содержание ^{14}C могло на несколько порядков превышать приведенные усредненные оценки / 32, 33 /.

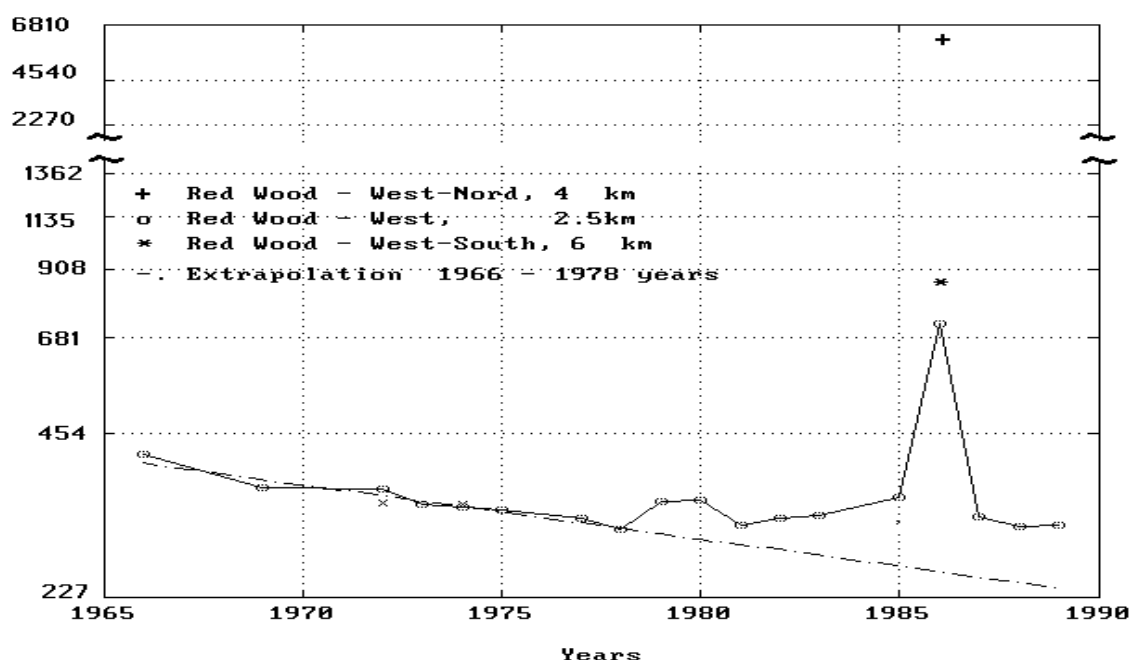


Рисунок 43. Содержание радиоуглерода в годовых кольцах сосны.

- + - "Рыжий лес" - Северо-запад - 4 км;
- o - "Рыжий лес" - Запад - 2,5 км;
- * - "Рыжий лес" - Юго-запад - 6 км.

Далее, для оценки потенциальных возможностей радиоуглеродных исследований уровня аварийного выброса вследствие аварии на ЧАЭС, в первую очередь проведены исследования для Южного направления от ЧАЭС. Выбор направления продиктован предположением о том, что минимальные уровни накопления радиоуглерода в растительности должны быть именно в этом направлении, а следовательно, при получении оптимистичных результатов для Южного направления, перспективы для других должны быть существенно лучше. Рассматриваем результаты пространственного распределения уровня накопления избыточного радиоуглерода для Южного направления от ЧАЭС, совместно с данными McCartney о распределении уровня накопления избыточного радиоуглерода, характерными для продолжительного технологического выброса ^{14}C / 19, 20 /. (см. Рисунок 44.) Для отображения полученных данных выполнена "привязка", заключающаяся в том, что полученные данные (5 точек на верхнем графике) помещены в "коридор", ожидаемых колебаний уровня радиоуглерода. Этот "коридор" определен в предположении $\pm 50\%$ интервала, а закон пространственного распределения взят тот же (парабола в двойном логарифмическом масштабе), что и для данных McCartney / 19, 20 /. Отличия только в абсолютной величине, которая задается по первой точке (пробоотбор при минимальном удалении от ЧАЭС).

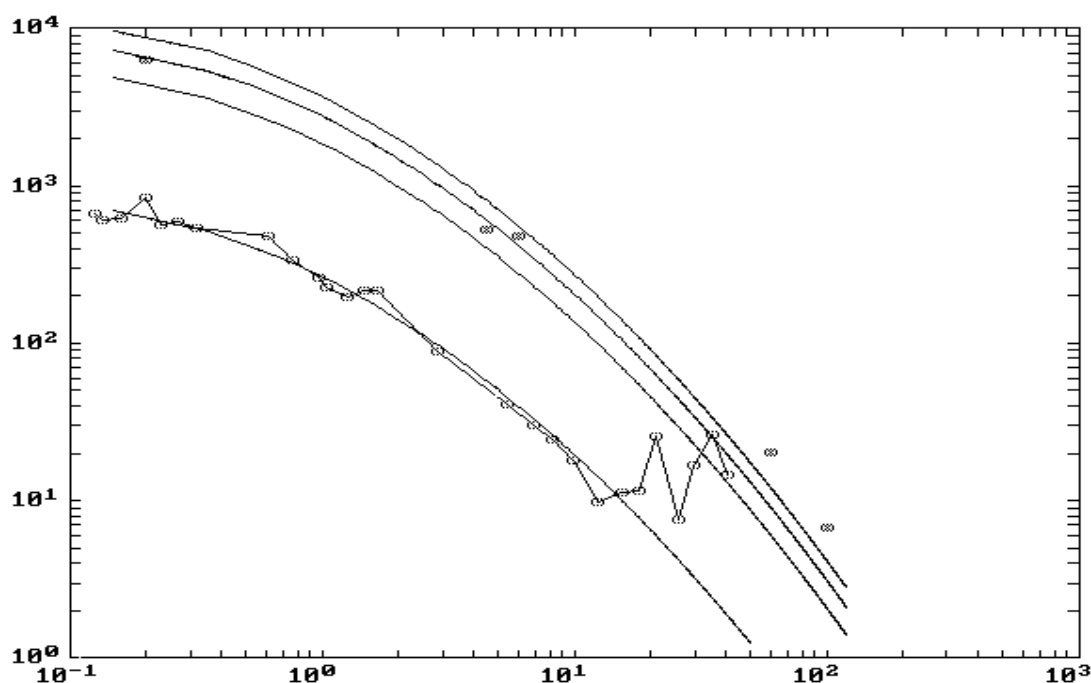


Рисунок 44. Пространственное распределение уровня накопления избыточного радиоуглерода в годичных кольцах 1986 года для Южного направления, верхний график и характерное распределение уровня накопления избыточного

радиоуглерода, в случае долговременного выброса / 19, 20 /. По вертикали - Бк на грамм углерода за вычетом фона; по горизонтали - расстояние - километры от источника выброса.

Таблица 27.

Результаты измерения содержания ^{14}C в годичных кольцах

№	Год	Чернобыль	Киев
12	1966	166.8	
5	1969	151.6	
7	1972	142.5	
6	1975	129.1	
1	1978	122.6	
4	1979	129.7	
8	1980	136.0	
9	1981	125.3	
11	1982	122.5	
16	1983	126.3	
15	1985	139.3	
3	1986 (3)	339.1	
10	1987	138.5	
13	1988	123.9	
14	1989	123.9	
19	1986 (1)	2878.5	
30	1986 (2)	317.8	
20	1972		
21	1973		
22	1974		
23	1976		
26	1985		
25	1986		
24	1987		
	1983		112.9
	1986		114.8
	1987		108.3
	1988		106.2
	1992		105.7

* - Погрешность определения ^{14}C составляет
 0.8-1.2% при возрасте до 200%,
 3.0% - при возрасте свыше 300% и
 20% - при возрасте свыше 2000%;
 (1) - питомник в 2.5 км севернее ЧАЭС;
 (2)- с.Лелев.

Таким образом, даже для Южного направления (см. Рисунок 44.) определения $\Delta^{14}\text{C}$ выполнимы на расстоянии до 50-60 километров (до уровня $\Delta^{14}\text{C}$ 20-30 Бк·кг⁻¹ углерода), а это дает основание надеяться на оптимистическое решение рассматриваемой задачи определения $\Delta^{14}\text{C}$ в годичных кольцах сосны вокруг ЧАЭС в целом, включая связанные проблемы использования данных $\Delta^{14}\text{C}$ в качестве репера.

4.3. Оценка выброса

Одна из компонент ^{14}C , нарабатываемого в реакторе, его накопление в графите по нашим оценкам для 4-го энергоблока ЧАЭС достигает уровня 25000 Бк на грамм / 32 /. Используя эти данные, с учетом приведенных выше данных о массе используемого в реакторе графита (1800 тонн), а также в предположении, что до 25-50% графита выгорело, можно оценить, что величина выброса ^{14}C , обусловленная только выгоранием графита могла составить $(2.8-5.6) \cdot 10^{13}$ Бк. Этот выброс дает только для Украины величину коллективной дозы около 35 чел·Зв·год⁻¹ или, для всей планеты, 3360 чел·Зв·год⁻¹, что соответствует около 5% от дозы за счет естественной наработки ^{14}C / 32 /.

Выводы

Таким образом, проведенные исследования позволили определить уровни усвоения радиоуглерода в деревьях как в окрестностях, так и на больших расстояниях от ЧАЭС, оценить максимальные усредненные уровни содержания радиоуглерода в воздухе во время выброса из блока, определить уровни содержания ^{14}C в графите разрушенного 4-го блока ЧАЭС. Последнее позволило оценить выброс ^{14}C , накопленного в графите, в результате аварии на ЧАЭС и обусловленные этим коллективные дозы облучения населения. Используемая технология подготовки и измерения образцов дает возможность определять аварийные уровни ^{14}C в годичных кольцах 1986г. и соответствующих однолетних растениях на значительном удалении от ЧАЭС.

Это позволяет определять как усредненные уровни содержания ^{14}C в воздухе, так и использовать эти данные для выявления возможной корреляционной связи и ретроспективного восстановления уровней аварийного

выброса основных дозообразующих радионуклидов. Прежде всего это касается радиойода, так как во многих районах в "йодный" период аварии не проводились прямые измерения содержания радиойода в щитовидной железе. Поскольку для ряда населенных пунктов существует достоверная и достаточно полная информация о дозах облучения щитовидной железы изотопами йода в ранний период аварии (были проведены десятки тысяч подобных измерений) и есть необходимость провести восстановление картины "йодной" атаки для огромного числа населенных пунктов, в которых прямые измерения содержания радиойода в организме не проводились. Это предполагает существование некоторого подобия в поведении йода и радиоуглерода в составе CO_2 аварийного выброса хотя бы на каком-то ограниченном расстоянии от ЧАЭС. Данная информация (уровни накопления аварийного ^{14}C) может быть использована для определения корреляционных связей с содержанием радиоуглерода в годовых кольцах деревьев и последующего восстановления средних доз облучения щитовидной железы.

Несмотря на то, что уровень содержания радиоуглерода в однолетних растениях 1986 года существенно выше его содержания в годовых кольцах деревьев 1986 года, то несмотря на кажущуюся возможность объяснить это различием продолжительности вегетационного периода однолетних растений и деревьев, есть основания считать, что однолетние растения непригодны для решения задач ретроспективного определения радиоуглерода и других, связанных с этим. Этому может мешать компонента ^{14}C , обусловленная присутствием на поверхности однолетних растений (в "свежих" выпадениях) пыли графита, т.е. компоненты неусвоенного биологически радиоуглерода. Это может служить объяснением существенных колебаний уровня ^{14}C в однолетних растениях 1986 г. в г.Киеве, (см. Рисунок 42.), а также наблюдаемой корреляции соотношения удельной активности проб однолетней растительности по ^{90}Sr ($\text{Бк}\cdot\text{кг}^{-1}$ сухого веса) к удельной активности ^{14}C ($\text{Бк}\cdot\text{кг}^{-1}$ углерода) от удельной активности проб по ^{90}Sr ($\text{Бк}\cdot\text{кг}^{-1}$ сухого веса), (см. Рисунок 42.).

Проведенные работы по ^{14}C в целом позволили определить перспективу дальнейших радиоуглеродных исследований, связанных с аварией на Чернобыльской АЭС.

Глава 5. МОНИТОРИНГ ^{90}Sr В ОБЪЕКТАХ ОКРУЖАЮЩЕЙ СРЕДЫ

5.1 Фракционирование ^{90}Sr в кисломолочных продуктах

Степень фракционирования ^{90}Sr , содержащегося в молоке, при изготовлении творога имеет важное значение как для дозиметрии ^{90}Sr , так и для развития методов его измерения. Существует устоявшееся мнение, что при этом подавляющая часть ^{90}Sr остается в творожной массе. Это объясняют близостью химических характеристик стронция и кальция. Проведенный эксперимент ставил целью выяснение особенностей этого процесса.

Для измерений использовался разработанный нами β -спектрометрический метод измерения жидких проб на базе жидкостно-сцинтилляционного спектрометра Quantulus 1220TM. Свежее молоко вносилось в измерительные вials со сцинтилляционной жидкостью непосредственно на месте отбора молока в с.Оташев Чернобыльского района в 30-км зоне. При выборе населенного пункта использованы имеющиеся данные по динамике изменения содержания ^{90}Sr в молоке после аварии на ЧАЭС в этом населенном пункте (см. Рисунок 45.).

Проведение измерений содержания ^{90}Sr прямым методом позволило отследить динамику накопления ^{90}Y в молоке и рассматривать этот метод в качестве альтернативного. Кроме этого, было отобрано 3 л молока для приготовления творога.

После измерений пяти проб свежего молока и отдельных кисломолочных фракций были получены следующие средние концентрации ^{137}Cs , ^{40}K , ^{90}Sr (см. Таблица 28.) Если учесть, что было получено 155 г творога на литр свежего молока, то доля ^{90}Sr , оставшегося в сыворотке после отделения и отжатия творога составляет 90 %, а концентрация ^{90}Sr в твороге - 34 Бк·кг⁻¹.

5.2 Содержание ^{90}Sr в пробах молока

Проведены обследования уровней содержания удельной активности ^{90}Sr , ^{137}Cs и ^{40}K в молоке в населенных пунктах Овручского и Малинского районов Житомирской области в 1991 и 1992 г. Результаты по годам сведены в Приложении 1.

Из данных Приложения 1 видно, что удельная активность ^{90}Sr во всех пробах молока Малинского района ниже МДА, составляющего для этих проб 1.4-2.0 Бк·л⁻¹. При этом удельная активность ^{137}Cs для этих проб колеблется от уровня МДА=2.6 Бк·л⁻¹ и до 55 Бк Бк·л⁻¹. Удельная активность ^{40}K для указанных проб молока составляет 54.6 ± 6.5 Бк·л⁻¹, (см. Рисунок 46.), что соответствует справочным данным / 113 /.

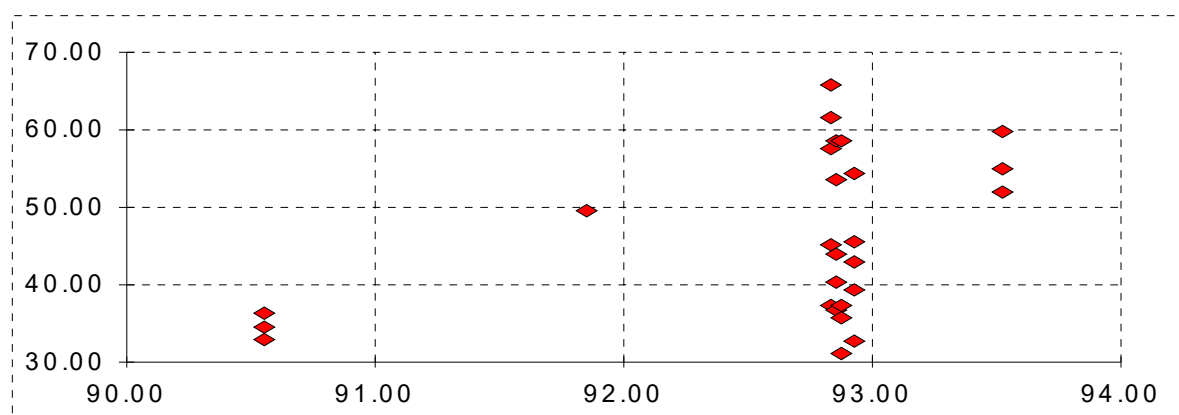


Рисунок 45. Динамика изменения содержания ^{90}Sr в пробах молока в с. Оташев (30-км зона)

Таблица 28.

Средние концентрации радионуклидов в молочных продуктах (Бк·л⁻¹, в скобках указаны погрешности)

Тип пробы	^{137}Cs	^{40}K	^{90}Sr
свежее молоко	148.6 (4%)	61.7 (7%)	53.5 (3%);
естественная сыворотка	134.0 (3%)	68.2 (5%)	60.9 (2%);
отжатая	148.0 (3%)	70.6 (5%)	57.1 (2%).

сыворотка			
-----------	--	--	--

Уровни загрязнения молока в Овручском районе колеблются в большом интервале. Для значительной части проб 1991 года (14 из 41 обследованной) активность ^{90}Sr превышает уровень МДА. Средняя удельная активность ^{90}Sr для этих проб составляет 13.5 ± 4.8 Бк·л⁻¹. Удельная активность ^{137}Cs колеблется в интервале от 2.5 до 2810 Бк·л⁻¹. Удельная активность ^{40}K составляет 53.0 ± 10.5 Бк·л⁻¹.

Для проб, отмеренных в 1992 году, определяемый уровень удельной активности ^{90}Sr ниже МДА, колеблющегося от 1.5 до 31.5 Бк·л⁻¹ в зависимости от удельной активности ^{137}Cs в этих пробах. Это связано главным образом с тем, что пробы молока отбирались с других населенных пунктов района. Удельная активность ^{137}Cs колеблется в интервале от 15 до 1920 Бк·л⁻¹. Удельная активность ^{40}K составляет 45.0 ± 8.0 Бк·л⁻¹.

Содержание ^{90}Sr в молоке Овручского района в различных селах лежит в широких пределах, что определяется не только пятнистостью загрязнения почв, но и их химическим составом, определяющим коэффициенты перехода. В отдельных населенных пунктах содержание ^{90}Sr в молоке близко к допустимым пределам содержания, что говорит о необходимости организации непрерывного контроля содержания ^{90}Sr в молоке.

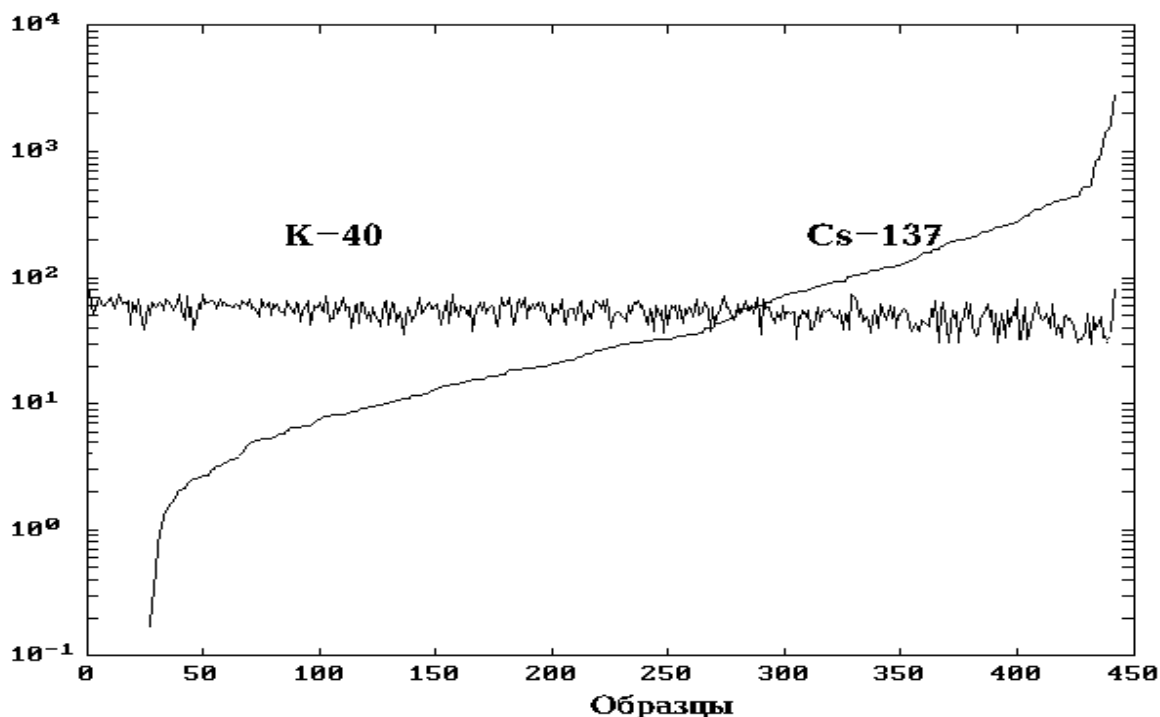


Рисунок 46. Уровень содержания калия-40 и ^{137}Cs в пробах молока ($\text{Бк}\cdot\text{л}^{-1}$).

Интересны приведенные нами данные (см. Рисунок 45.) о временном изменении уровня содержания ^{90}Sr в молоке в одном из населенных пунктов 30-км зоны - с.Оташев Чернобыльского района. Как видно по участку, в три первых года есть тенденция к увеличению содержания ^{90}Sr в молоке, хотя сама его величина весьма существенно колеблется во времени и для различных животных, что видно по данным конца 1992 года, когда в течении 2-х месяцев рассматривалась динамика для четырех животных). За это время содержание ^{90}Sr в молоке колебалось от 30 до 70 $\text{Бк}\cdot\text{л}^{-1}$. Наростание уровня ^{90}Sr в молоке, очевидно, можно объяснить увеличением степени доступности ^{90}Sr из выпадений по мере разрушения горячих частиц / 159 /.

5.3 Измерение ^{90}Sr в "горячих частицах"

Счетная проба готовится на основе гелеобразной сцинтилляционной смеси. При этом выделенная частица фиксируется внутри объема сцинтилляционной гелеобразной смеси во взвешенном состоянии. β -компоненты для этого случая подбираем, пользуясь предварительной

информацией γ -спектрометрии, а также предполагая наличие определенных нуклидов в смеси. Для примера приводим результат расчета активности β -компонент в "горячих частицах", а также спектры β -компонент, и спектры конкретных "горячих частиц" (см. Таблица 14 и Рисунок 24.) Для случая "горячих" частиц следует принять во внимание то, что нижнюю границу рабочего "окна" не следует выбирать ниже уровня 100 КэВ, поскольку β -излучение с более низкой энергией не может покинуть частицу без значительных потерь, а следовательно, только в случае выбора "окна" с более высокой нижней границей использование калибровочных β -спектров, полученных от объемных источников не вносит дополнительной погрешности в измерения.

5.4 Мониторинг ^{90}Sr в воде

Мониторинг содержания ^{90}Sr в питьевой воде г.Киева проводился в связи с заметным увеличением содержания ^{90}Sr в воде р.Днепр во время паводка весной 1991 года. Причиной повышения уровня ^{90}Sr в воде явился кратковременный смыв высокой активности ^{90}Sr из пойменной части р.Припять. Два раза в неделю отбирались пробы питьевой воды, подаваемой для водоснабжения г.Киева, воды р.Днепр и р.Десна. Практически за все время мониторинга активность воды в р.Десна оставалась ниже уровня МДА 0.1 Бк на литр. Как видно (см. Рисунок 26.), содержание ^{90}Sr в воде р.Днепр изменялось наиболее существенно во время паводка, причем характер этого изменения хорошо описывается экспоненциальной зависимостью. Активность воды в р.Днепр достигала в максимуме 3 Бк·л⁻¹ / 168, 169, 170, 171, 172 /.

Приемлемость данных ЖСС β -спектрометрии подтверждают данные радиохимических анализов (см. Рисунок 23. и Рисунок 26.). Вода для снабжения г.Киева подвергалась очистке и разбавлению водой р.Десна (см. Рисунок 47.). Данные показывают, что удельная активность ^{90}Sr в воде, используемой для водоснабжения, существенно ниже активности воды в р.Днепр. В наибольшей степени разница выражена во время паводка, когда

выше разница в загрязнении воды р.Днепр и р.Десна, что является свидетельством эффективности использования воды р.Десна, а также проводимых дополнительных мероприятий по очистке воды.

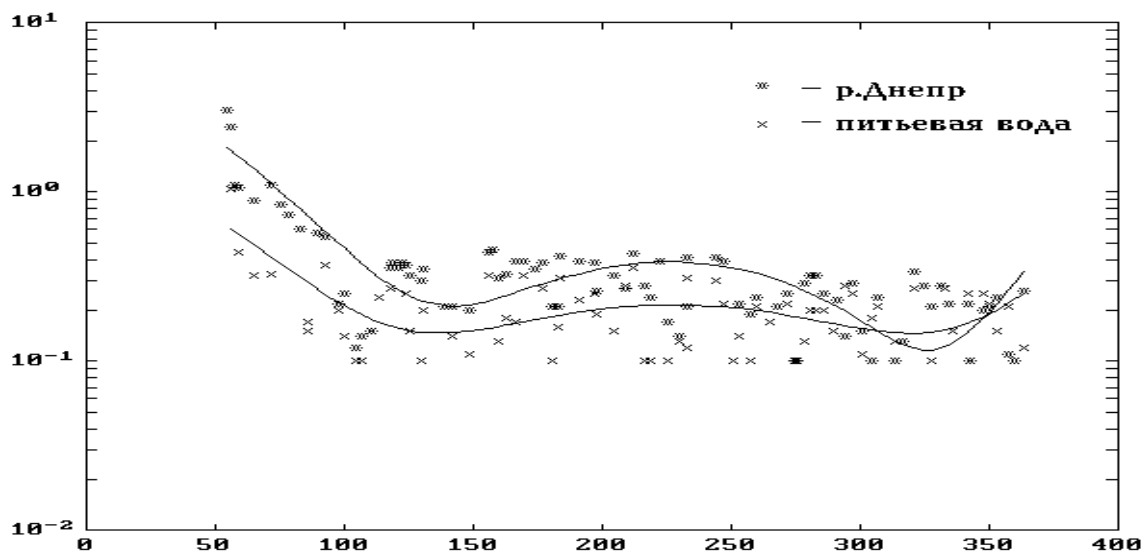


Рисунок 47. Изменение удельной активности ^{90}Sr в воде в Днепр и питьевой воде в 1991 г.

Одновременно с этим проводился анализ проб, отбираемых во время паводка в Киевском водохранилище по фарватеру р.Днепр в районе с.Сухолучье. Отбирались пробы поверхностной воды и на глубине 1.5 и 3.0 метра от поверхности. При этом достоверного отличия в содержании ^{90}Sr в зависимости от глубины не обнаружено. Ход изменения активности воды во времени в этой точке отбора рассматривается совместно с данными Днепровского водозабора, (см. Рисунок 48.).

Сопоставление этих данных показывает, насколько близок закон изменения содержания ^{90}Sr в воде во времени для этих точек отбора. Определить временной сдвиг "фронтов", при этом не удастся из-за недостаточного количества точек и небольшой величины самого сдвига.

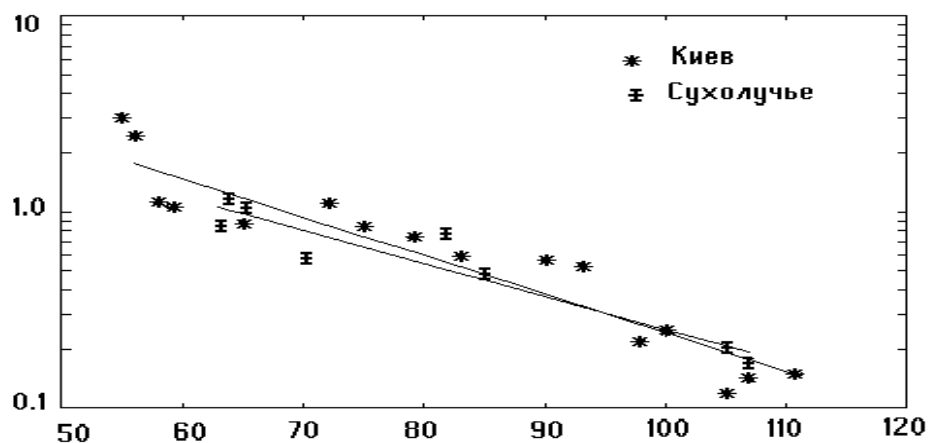


Рисунок 48. Сопоставление уровней загрязнения ^{90}Sr воды в районе г.Киева и с.Сухолучье (Киевское водохранилище)

Отдельный интерес представляют результаты обследования Киевского водохранилища, проведенного в конце апреля 1991г, (см. Рисунок 49.) Содержание ^{90}Sr по водохранилищу неравномерное - отчетливо прослеживается то, что источником выноса ^{90}Sr является р.Припять (см. пробы 3405, 3406, 3408 Таблица 29). Выток р.Днепр (выше водохранилища) в это время содержал минимальное количество ^{90}Sr (проба 3407).

Проведенные исследования основных радионуклидов в некоторых водоемах 30-км зоны ЧАЭС летом 1991 г. (см. Таблица 30.) показывают, что содержание ^{90}Sr значительно выше содержания ^{137}Cs , что также подтверждает вывод о том, что основным вкладом в загрязнение днепровской воды являются притоки с водосбором на прилегающих к АЭС территориях.

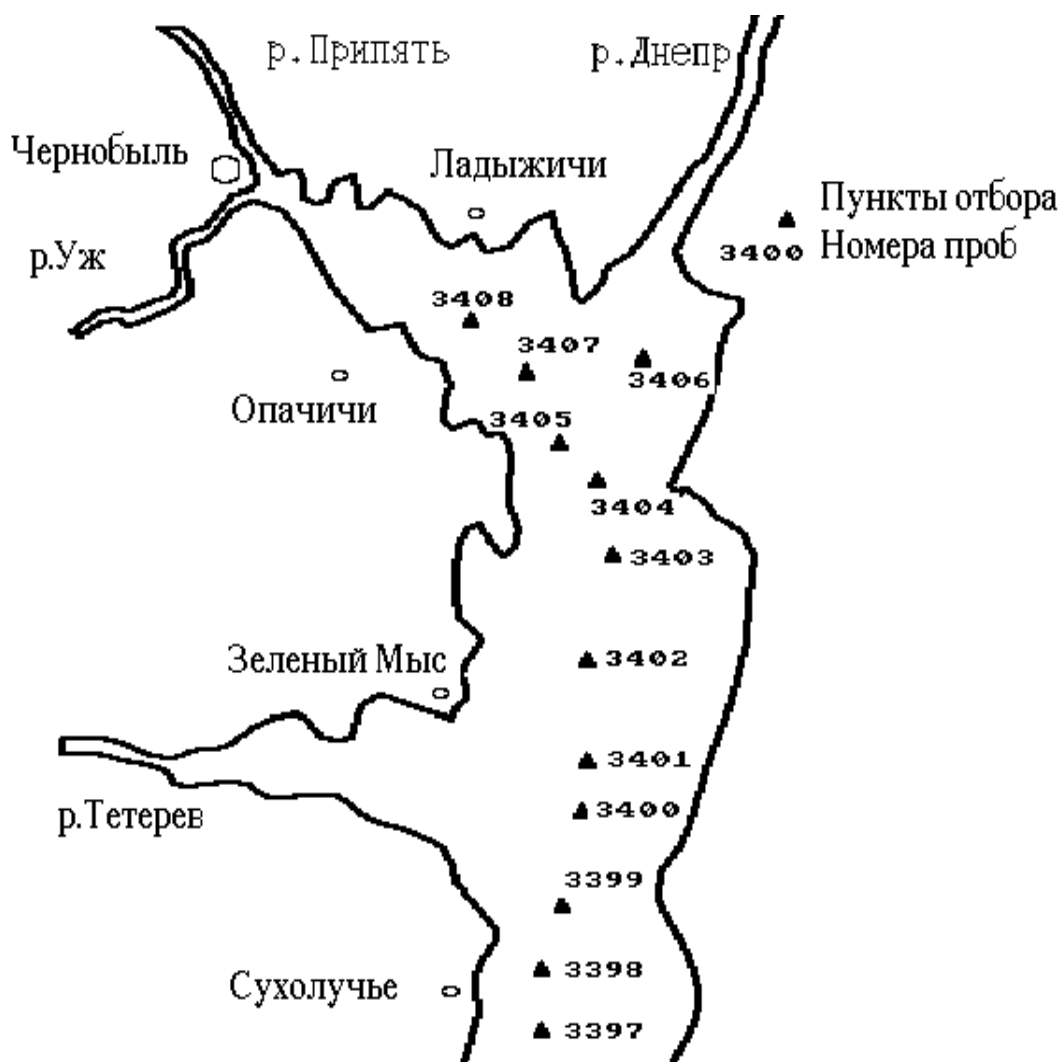


Рисунок 49. Точки отбора воды при обследовании Киевского водохранилища.

Таблица 29.

Удельная активность ^{90}Sr в пробах воды Киевского водохранилища, отобранных 30 апреля 1991 г

N	3397	3398	3399	3400	3401	3402
A	0.53	0.36	0.46	0.26	0.23	0.13
N	3403	3404	3405	3406	3407	3408
A	0.17	0.57	0.57	0.52	0.12	0.68

Примечание: N - Номер пробы

A - Удельная активность пробы Бк.л⁻¹.

Таблица 30.

Содержание ^{137}Cs и ^{90}Sr в ряде водоемов 30-км зоны

№	Место отбора	^{137}Cs	^{90}Sr	Соотношение
3877	Чернобыльская АЭС канал 1	2.93	5.83	0.50
3878	Чернобыльская АЭС канал 2	6.44	9.16	0.70
3879	р.Припять	0.16	0.23	0.70
3880	Чернобыльская АЭС пруд	12.6	4.92	2.56
3881	р.Припять старик	3.20	8.35	0.38
3882	колодец	0.53	< 0.10	

Измерения содержания радиоактивности в воде пруда охладителя Чернобыльской АЭС, проведенные в 1993 г., показали, что соотношение основных радионуклидов: ^{90}Sr и ^{137}Cs изменилось в пользу ^{137}Cs (см. Рисунок 50. и Таблица 30. и Таблица 31.).

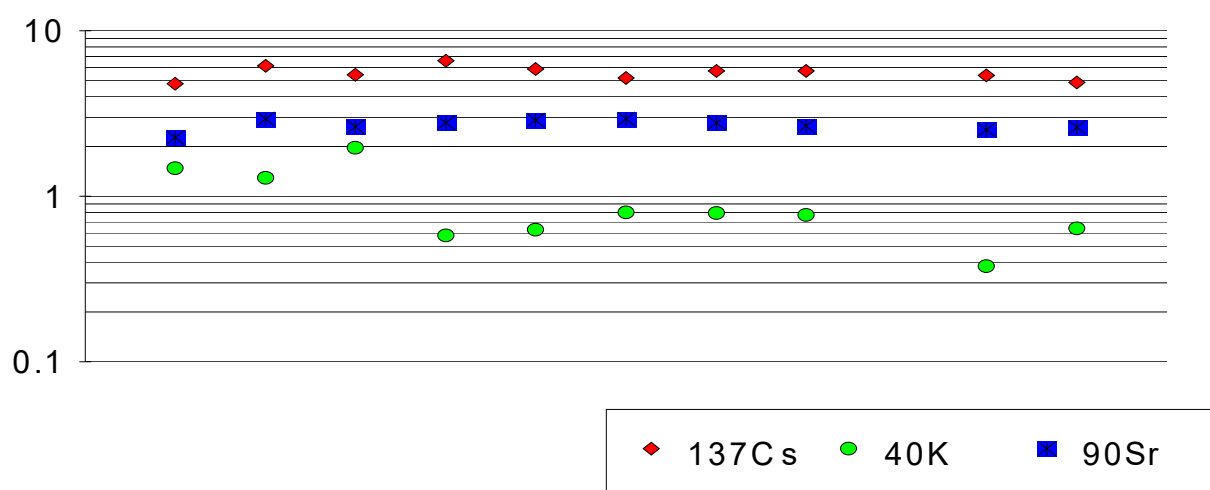


Рисунок 50. Удельная активность ^{90}Sr в воде пруда охладителя ЧАЭС.

Приведенное выше говорит о том, что для большей полноты информации о качестве воды, используемой для водоснабжения г.Киева и для своевременного принятия решения о водозащитных мероприятиях в случае

повышения концентраций ^{90}Sr в р.Днепр, необходимо вести контроль воды не только в точке Днепровского водозабора, но и выше по течению, например, в устье р.Припять.

Таблица 31.

Содержание ^{137}Cs , ^{40}K и ^{90}Sr в пруде охладителе ЧАЭС (июнь 1993)

№	^{137}Cs	^{40}K	^{90}Sr	Соотношение
4893	4.78	1.48	2.26	2.12
4894	6.12	1.29	2.94	2.08
4895	5.43	1.97	2.64	2.06
4896	6.61	0.58	2.79	2.37
4897	5.86	0.63	2.88	2.03
4898	5.20	0.80	2.93	1.77
4899	5.75	0.79	2.77	2.08
4900	5.74	0.77	2.66	2.16
4901	2.27	0.15	1.32	1.72
4902	5.37	0.38	2.52	2.13
4903	4.87	0.64	2.62	1.86

Для проверки возможности использования спектрометрического метода измерений содержания ^{90}Sr , проведен разовый пробоотбор воды в низовьях р.Днепр и р.Буг в сентябре-октябре 1991г (см. Рисунок 51). Результаты показали, что активность ^{90}Sr в пробах воды р.Буг находится на уровне ниже МДА метода - 0.1 Бк.л^{-1} , что требует использования для этих проб более чувствительного метода, а особенности изменения активности ^{90}Sr в пробах воды р.Днепр отчетливо видны, (см. Рисунок 52). Полученные результаты позволяют использовать описанный β - спектрометрический метод для мониторинга ^{90}Sr , на всей протяженности р.Днепр подверженной влиянию Чернобыльской АЭС.

Для цели мониторинга в Днепровской воде опробован оптимизированный метод Черенковского счета, описанный в п.п.2.5.3. Касаясь

его применимости, характерно отметить, что метод на основе Черенковского счета практически нечувствителен к сезонным колебаниям ^{137}Cs , ^{40}K , прежде всего, благодаря существенному отличию в эффективности их регистрации по отношению к ^{90}Sr (см. Рисунок 9. и Рисунок 10. и Таблица 10.), а также "благодаря" относительно высокому содержанию ^{90}Sr в воде по отношению к содержанию ^{137}Cs , ^{40}K , и тем более других радионуклидов (см. Таблица 10). Следует отметить и чисто практическую сторону рассматриваемой проблемы: для Черенковского счета используется проба, полученная предварительным концентрированием 1 литра воды, тогда как для счета на основе ЖСС метода используется только 0.1 литра (речь идет об экспресс-методе).

Выводы.

Как видно, применяемые экспресс-методы определения ^{90}Sr , хорошо зарекомендовали себя при анализе различных проб окружающей среды в условиях аварийного и пост-аварийного загрязнения и, что особенно следует отметить, в реальном масштабе времени.

Метод β -спектрометрии дает возможность получать результаты об уровнях загрязнения как ^{90}Sr , так и другими β -излучателями в пробах при соотношении активностей радионуклидов компонент смеси в интервале 0.05-20. Причем для ряда проб позволяет анализировать образцы практически без какой-либо подготовки (горячие частицы и молоко). Для других проб требует простой подготовки - концентрирования (вода), а для целого ряда типов проб только разрушения (растворения) - зола, почва и т.д.

Экспресс-метод на основе Черенковского счета позволяет определять ^{90}Sr более эффективно, чем β -спектрометрический в присутствии более мягких β -излучателей, но в условиях преобладания его активности в 2 и более раз над другими β -излучателями.

Полученные результаты позволяют сделать вывод о безусловной применимости и ряде достоинств используемых методов определения ^{90}Sr в различных объектах окружающей среды.

Основными результатами следует назвать круглогодичный мониторинг ^{90}Sr в р.Днепре (район г.Киева), результаты одномоментного определения уровня ^{90}Sr в р.Днепре от г.Киева и до устья (1991 и 1993гг.), динамику изменения уровня ^{90}Sr в молоке в с.Оташев (30 км зона), ^{90}Sr и других радионуклидов в горячих частицах и пробах растительности 1986 года.

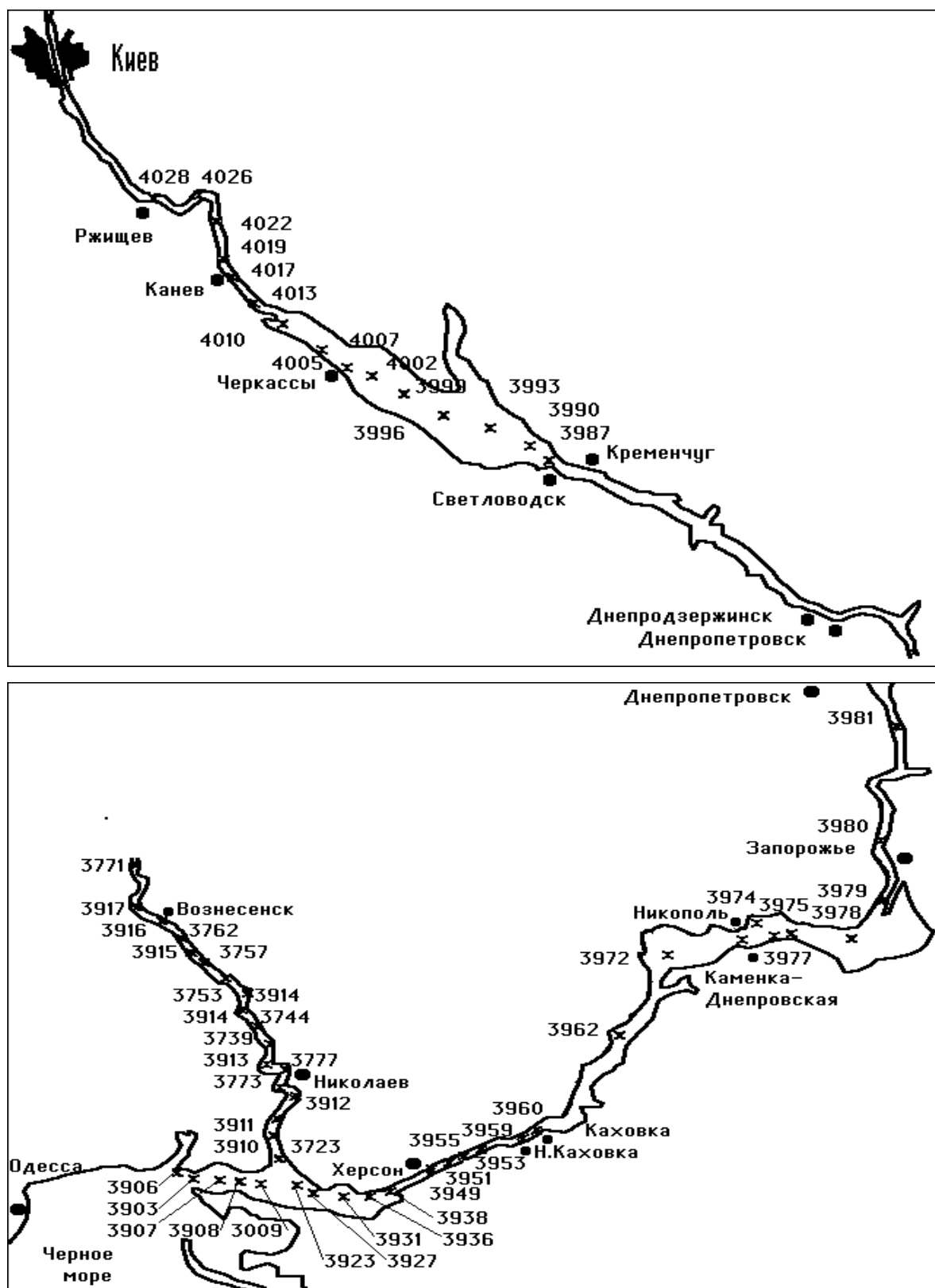


Рисунок 51. Схема отбора проб воды низовий р.Днепр и Южный Буг.

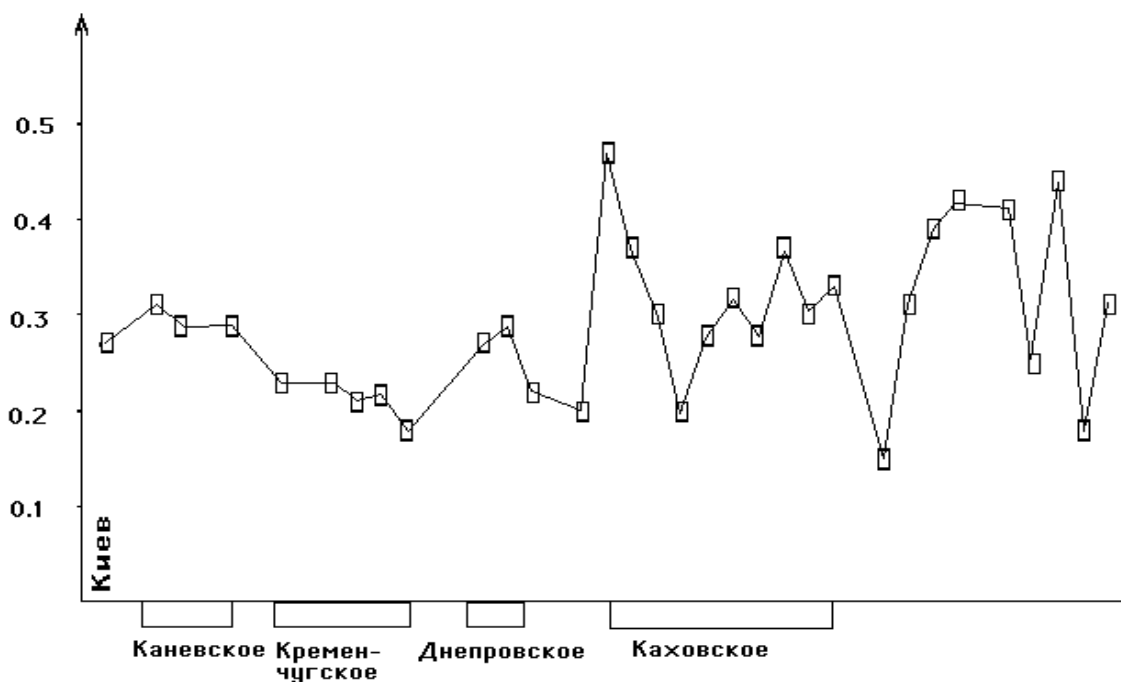


Рисунок 52. Содержание ^{90}Sr в воде р.Днепр в сентябре 1991 года (Бк.л $^{-1}$).

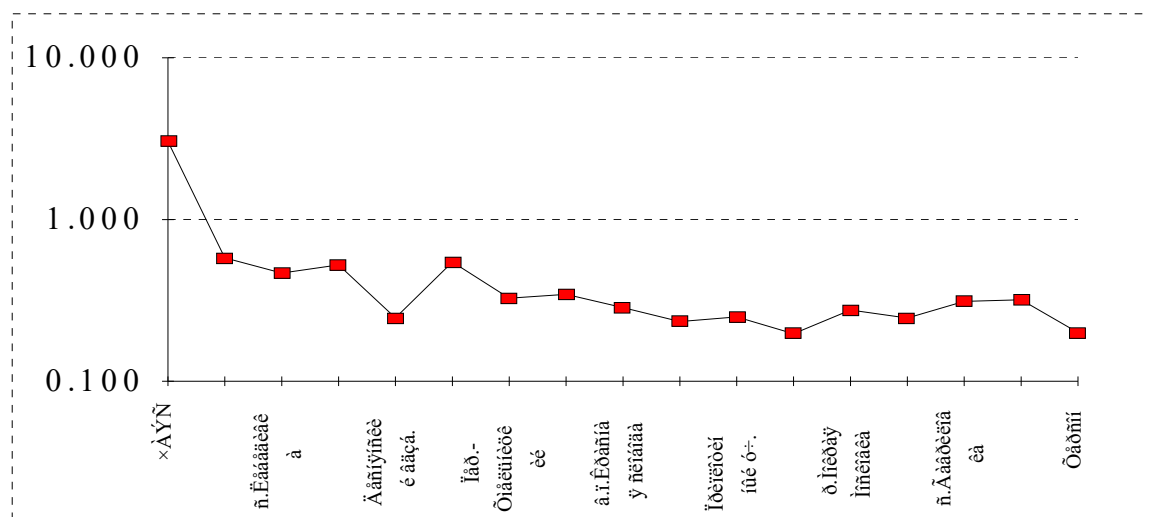


Рисунок 53. Содержание ^{90}Sr в воде р.Днепр зоны влияния ЧАЭС (Бк.л $^{-1}$).
Пробоотбор выполнен в июле-августе 1993 года.

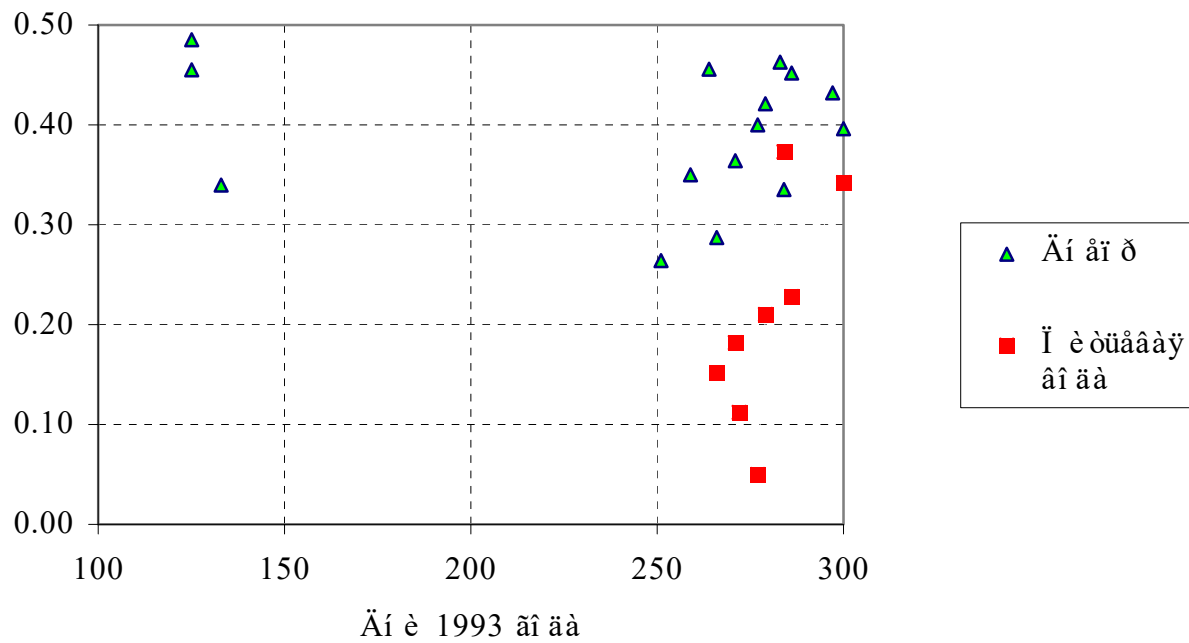


Рисунок 54. Колебания ^{90}Sr в воде в районе г.Киева (Бк.л⁻¹).

Глава 6. ЗАКОНОМЕРНОСТИ РАСПРЕДЕЛЕНИЯ ^{241}Pu В ОБЪЕКТАХ ОКРУЖАЮЩЕЙ СРЕДЫ

Измерение содержания ^{241}Pu , материнского радиоизотопа, является наиболее эффективным для прогнозирования уровней максимального загрязнения объектов окружающей среды ^{241}Am , поскольку его активность превышает активность всех α -излучающих изотопов плутония в сумме в несколько десятков раз. Это определяет актуальность работ по определению содержания ^{241}Pu в объектах окружающей среды.

Для данной цели традиционно использование методов жидкостно-сцинтилляционного счета / 146, 147, 148, 149, 150, 151, 152 /. Некоторой разновидностью метода ЖСС является метод измерений α - и β -излучения, электроосажденного на подложки плутония, используя традиционную технологию подготовки проб для твердотельной α -спектрометрии. Регистрация ведется непосредственно с подложки при ее погружении в измерительную емкость со сцинтилляционной жидкостью в геометрии 2π /149/. При этом удается проводить достаточно эффективную регистрацию практически незагашенных образцов неразрушающим методом, что позволяет сохранять подложки для последующих повторных измерений. Качество такого рода измерений зависит прежде всего от качества и воспроизводимости технологии подготовки проб, толщины слоя.

6.1 Соотношение активностей изотопов плутония в различных пробах окружающей среды

Для исследований выбраны следующие образцы: горячие частицы, пробы растительности 1986 года, собранные в г.Киеве, любезно предоставленные нам Республиканским гигиеническим центром, и пробы почв.

Горячие частицы.

Исследования показали, что соотношение между активностью чистого β -излучателя ^{241}Pu и суммой активностей α -излучающих $^{238}\text{Pu}+^{239}\text{Pu}+^{240}\text{Pu}$ для проб горячих частиц лежит в интервале от 54.6 до 72.6, при среднем значении около 60.2, (см. Таблица 32.) Экстракционная технология подготовки проб для ЖСС дает существенные преимущества, что выражено в улучшении энергетического разрешения α -спектра, и повышении эффективности регистрации β -излучения ^{241}Pu в 2-3 раза, что очень важно при анализе содержания ^{241}Pu . α - и β -спектры излучения плутония одной частицы приведены на Рисунок 29.

Таблица 32.

Содержание изотопов плутония в некоторых горячих частицах (Бк) в пересчета на момент аварии

№	^{241}Pu	$^{238,239,240}\text{Pu}$	β/α
1	110.4	2.0	54.7
2	1041.0	18.2	57.0
3	0.85	0.02	56.2
4	484.1	8.4	57.3
5	19.5	0.26	73.1
6	43.8	0.71	61.1
7	183.3	2.9	62.5
		Среднее	60.2

"Свежие" выпадения.

Для проб растительности (см. Таблица 33.) характерно низкое значение для соотношения ^{241}Pu к суммарной α -активности изотопов плутония - от 10.2 до 43.6 при среднем 28.0.

Пробы почвы.

Измерены содержания ^{241}Pu в контрастных пробах почвы некоторых территорий Украины. По данным о содержании изотопов плутония в этих пробах (см. Таблица 34.) видно, что содержание ^{241}Pu колеблется в пределах от 11.9 до

$480 \text{ Бк}\cdot\text{кг}^{-1}$, а соотношение активности ^{241}Pu к суммарной активности $^{239}\text{Pu}+^{240}\text{Pu}$ колеблется от 11.8 до 245 при среднем 115. Для проб почвы с относительно низким содержанием ^{241}Pu очень важно достижение высокой степени очистки проб от естественных β -излучающих радионуклидов, таких как ^{228}Ra , которые могут быть зарегистрированы совместно с ^{241}Pu . Очевидно, что в пробах почвы следует ожидать колебания β/α соотношения изотопов плутония в широком интервале. Следовательно, прогнозируемые уровни накопления ^{241}Am колеблются в широких пределах. Поэтому работа по определению содержания ^{241}Pu в пробах почв является весьма актуальной.

Таблица 33.

Содержание плутония в пробах растительности 1986 г ($\text{Бк}\cdot\text{кг}^{-1}$). Активность приведена на момент аварии

№	Вид пробы	Дата отбора	^{241}Pu	$^{238,239,240}\text{Pu}$	β/α
435	листья	03.05.86	5312.5	130.5	40.7
438	трава	03.05.86	4585.5	136.0	33.7
3299	хвоя	25.07.86	206.8	16.1	12.8
3300	листья (липа)	28.07.86	1768	40.6	43.6
3306	разнотравье	28.07.86	387	10.4	37.3
3476	хвоя	11.08.86	1015.1	89.5	17.9
3580	листья (липа)	26.08.86	2614.1	255.5	10.2
				Среднее	28.0

6.2 Содержание ^{241}Pu в пробах почвы

6.2.1. Уровни ^{241}Pu в почвах

Проведено измерение содержания ^{241}Pu более чем в 500 пробах почв Украины. В Таблице 34 приведены данные, отражающие основные моменты расчетов активности и β/α соотношения для нескольких проб. Для анализа результатов всех проб приведены следующие данные: представительность выборки проб по областям (см. Таблица 35.), средние значения и среднее

квадратическое отклонение по представительным выборкам, (см. Таблица 36.) и средние значения для представительных выборок (см. Рисунок 55.). По всем пробам среднее геометрическое равно $20.5^{+35.2}_{-12.9}$ Бк на кг. Среднее значение для β/α соотношения изотопов плутония для всей выборки проб почвы составило 49.6.

6.2.2. Прогноз накопления ^{241}Am

Прогнозный усредненный уровень накопления ^{241}Am (как для Украины, так и для представительных выборок по областям) определен как уровень максимального накопления ^{241}Am вследствие распада ^{241}Pu (см. Рисунок 1.) на основе данных о средних уровнях содержания ^{241}Pu (см. Таблица 36. и Рисунок 55.). Он составит около 3% от уровня исходной активности ^{241}Pu (см. Таблица 37. и Рисунок 56.). По всем пробам среднее геометрическое для прогнозного уровня накопления ^{241}Am равно $0.6^{+1.0}_{-0.4}$ Бк на кг.

Таблица 34.

Содержание плутония в пробах почвы (Бк·кг⁻¹)

№	^{241}Pu текущая по пробе	δ ^{241}Pu (метка)	^{241}Pu на момент аварии	Хим. выход %	Сумма α - активности плутония	Соотно- шение β/α
1	2	3	4	5	6	7
2207	326	1.2	444	30	2.90	153.1
2209	151.8	1.6	205.3	39	1.10	186.7
2247	352	0.6	480.5	25	2.30	208.9
2295	72.4	0.7	98	46	1.20	81.7
2303	76.2	1.9	101.7	77	3.70	27.5
2359	88.8	0.9	120.2	59	2	60.1
2364	40.7	0.7	54.6	46	0.60	91
2506	24.2	0.9	31.8	60	0.20	159
2596	112	0.9	151.9	60	4.50	33.8
2621	9.9	1.2	11.9	79	0.11	108.3
2623	18	1.1	23	74	1.60	14.4
2633	27	0.9	35.8	57	0.50	71.5
2634	50.3	0.9	67.6	60	1.20	56.3
2635	25.9	1.1	33.9	74	0.15	226.0
2636	60	1.3	80.3	85	0.45	178.4
2637	72.9	1.1	98.2	70	0.40	245.4
2641	11.7	1	14.7	64	1.50	9.8
2643	88.9	0.7	120.6	47	0.70	172.3
2645	45.6	0.8	61.3	50	5.20	11.8

2646	57.1	0.9	76.8	58	0.34	229.1
2662	34.5	0.9	45.9	60	0.40	114.8
2665	26.9	0.7	35.8	45	0.80	44.8
2711	45.7	1	61	69	0.30	203.3
2718	17.5	1.2	22.3	81	0.07	229.9
4112**	347	10.6	459.9	66	16.30	28.2
					Среднее	117.9

** Проба донных отложений.

Таблица 35.

Представительность проб почв, проанализированных на содержание ^{241}Pu по областям Украины

№	Область	Проб	№	Область	Проб
1	Киевская	169	11	Хмельницкая	10
2	Житомирская	67	12	Волынская	10
3	Ровенская	64	13	Черновицкая	9
4	Черниговская	56	14	Днепропетровская	9
5	Винницкая	21	15	ИваноФранковская	9
6	Черкасская	20	16	Луганская	7
7	Донецкая	13	17	Полтавская	3
8	Харьковская	12	18	Запорожская	3
9	Тернопольская	11	19	Николаевская	2
10	Сумская	10			

Таблица 36.

Усредненное содержание ^{241}Pu в пробах почвы Украины, Бк на кг

Место отбора проб	Арифм. среднее	СКО
Украина	32.7	32.3
Винницкая обл.	49.6	37.3
Киевская обл.	35.2	38.0
Житомирская обл.	22.5	15.0
Ровенская обл.	26.9	23.1
Черкасская обл.	55.2	41.0
Черниговская обл.	15.6	17.5

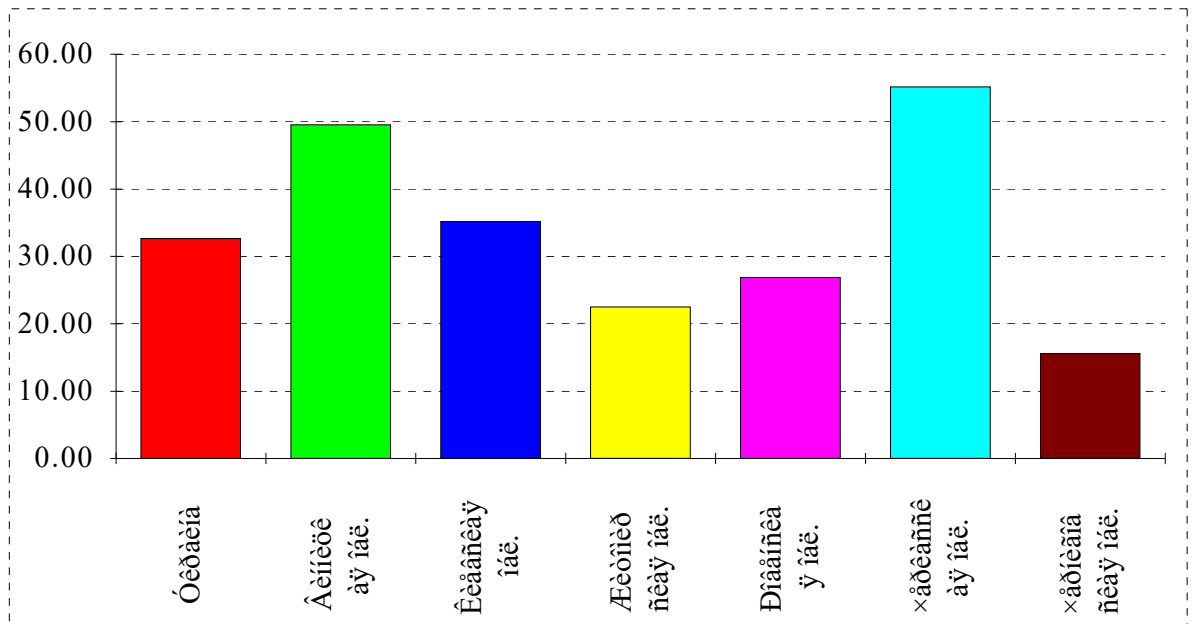


Рисунок 55. Усредненное содержание ^{241}Pu в пробах почвы Украины, Бк на кг

Таблица 37.

Прогноз накопления ^{241}Am в почве Украины за счет распада ^{241}Pu (максимальное значение, через 50 лет после аварии на ЧАЭС), Бк на кг

Место отбора проб	Среднее	СКО
Украина	0.98	0.97
Винницкая обл.	1.49	1.12
Киевская обл.	1.06	1.14
Житомирская обл.	0.68	0.45
Ровенская обл.	0.81	0.69
Черкасская обл.	1.66	1.23
Черниговская обл.	0.47	0.53

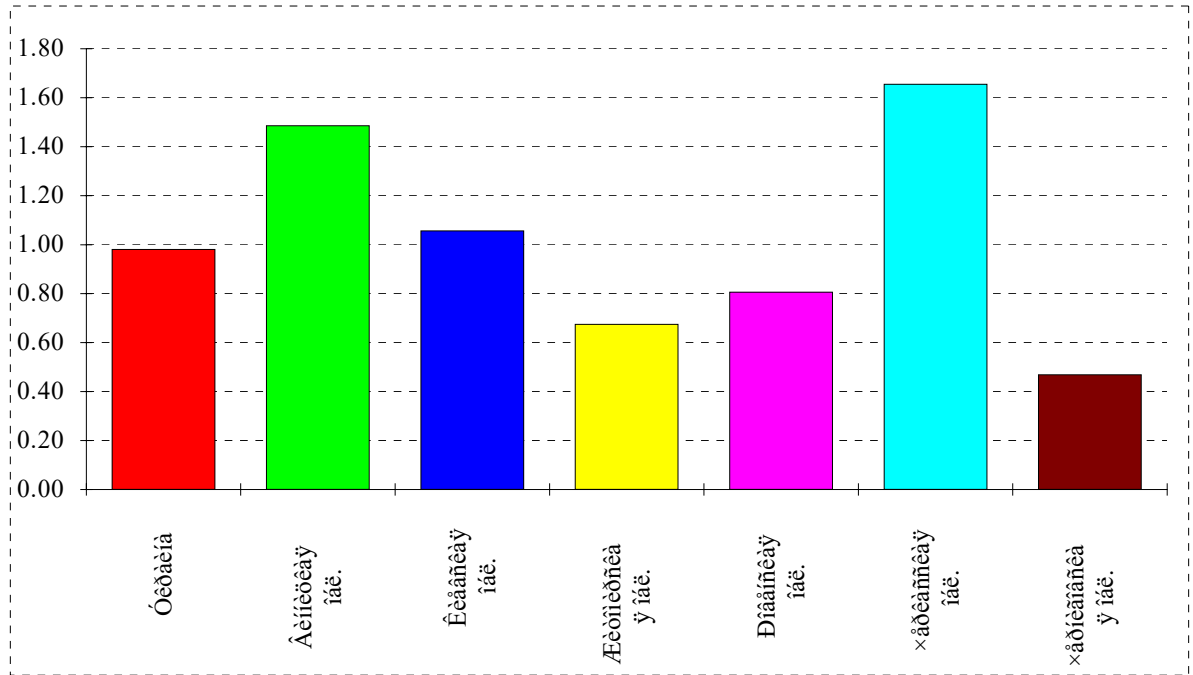


Рисунок 56. Прогноз накопления ^{241}Am в почве Украины за счет распада ^{241}Pu (максимальное значение, через 50 лет после аварии на ЧАЭС), Бк на кг

Выводы

Экстракционная технология подготовки проб для ЖСС дает существенные преимущества, что выражено в повышении эффективности регистрации β -излучения ^{241}Pu в 2-3 раза и улучшении энергетического разрешения, что очень важно при анализе содержания ^{241}Pu . Для проб почвы с относительно низким содержанием ^{241}Pu очень важно достижение высокой степени очистки проб от естественных β -излучающих радионуклидов, таких как ^{228}Ra , которые могут присутствовать в пробе и могут быть зарегистрированы совместно с ^{241}Pu . Для определения содержания ^{241}Pu в объектах окружающей среды эффективно использование неразрушающих методов измерения подложек, подготовленных для α -спектрометрии.

Из анализа β/α соотношения для горячих частиц, отобранных в пределах 30-километровой зоны, среднее составляет 60.2, что очень близко к соотношению, полученному по суммарной расчетной наработке этих радионуклидов в топливе /162, 38/. Для проб растительности, характеризующих "свежие" выпадения 1986 г. в г.Киеве, соотношение β/α ниже расчетного, определенного для реактора. Что же касается проб почвы, то соотношение β/α активности для них довольно широкое как для случая контрастных проб (см. Таблица 34.), так и для случая

полной выборки. Колебание объясняется широким интервалом удельной активности проб почвы, различной кампанией наработки разрушенных ТВЭЛов 4-го энергоблока ЧАЭС, а также наличием в почве "бомбового" ^{241}Pu . Прогнозируемые уровни максимального накопления ^{241}Am могут колебаться в широких пределах и составят до 3% от выпавшей активности ^{241}Pu , (см. Рисунок 1.), а максимальное накопление ^{241}Am для проб почвы по выборке составит 4.6 Бк на кг. По всем пробам среднее геометрическое для прогнозного уровня накопления ^{241}Am составляет $0.6^{+1.0}_{-0.4}$ Бк на кг.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Система мониторинга загрязнений объектов окружающей среды β -излучателями постоянно совершенствовалась и развивалась, о чем свидетельствуют существенные продвижения в развитии как техники β -счета, так и техники отбора и подготовки образцов. Развитию техники β -счета способствовало создание и совершенствование различных методов регистрации β -излучения, создание спектрометрического оборудования, включающего в себя анализаторы длительности и амплитуды импульсов, развитие современных высокостабильных высокочастотных узлов электроники.

Техника отбора и подготовки образцов ориентирована как на решение задач прецизионных измерений, так и на проведение экспрессной оценки уровней аварийного загрязнения больших территорий или огромного числа объектов. Отбор образцов всегда ориентирован на применение доступного оборудования и соответствующие методы подготовки образцов к измерениям. В зависимости от постановки задачи определяется количество и периодичность отбора. Повышение точности и чувствительности техники позволяет варьировать (по возможности упрощать технику) подготовки образцов. Оптимизация измерений включает в себя *“разумное”* использование оборудования (поточные исследования - достоверный результат при использовании 1-2 часов для измерения одной пробы и прецизионные исследования - достоверный результат при использовании от 3-5 до 10 часового измерения). При этом, в зависимости от измеряемой величины и в зависимости от требований точности определяется объем пробы, метод ее обработки: концентрирование, обогащение, экстракция и количество требуемых процедур обогащения.

Для решения названной задачи мониторинга β -излучателей в объектах окружающей среды применяются следующие типы детекторов: твердотельный сцинтилляционный, газопроточный и пропорциональный, полупроводниковый, а также методы жидкостно-сцинтилляционного и Черенковского счета. Для решения комплекса всевозможных задач β -счета, включая регистрацию β -

излучения в широком энергетическом диапазоне, применение Черенковского счета, измерения в 2π и 4π геометрии, реализацию β -спектрометрических и экспрессных методов измерения ряда чистых β -излучателей больше всего подходят методы жидкостно-сцинтилляционного счета, реализованные на современном спектрометрическом оборудовании.

Совершенствование ЖСС β -счета можно вести по следующим направлениям традиционного развития ЖСС: повышение эффективности регистрации β -излучения (применение высокоэффективных сцинтилляторов), понижения фона (электроника, активная и пассивная защита, применение наиболее эффективных материалов с низким содержанием радиоактивных элементов), применение сцинтилляционных смесей, позволяющих повышать соотношение проба-сцинтиллятор, а также нетрадиционных направлений, таких как стандартизация Черенковского счета и развитие метода ЖСС β -спектрометрии.

Для решения задач мониторинга ряда β -излучателей в объектах окружающей среды выполнена следующая методическая работа:

- проведена калибровка ЖСС для регистрации трития в воде на основе следующих ЖС: ЖС-8, ЖС-84, Optiphase Hisave 3, Luma Gell, Quickscint 400;
- проведена калибровка ЖСС для регистрации радиоуглерода в форме бензола при измерении в 7 типах виал;
- изготовлены виалы для регистрации α и β -излучателей 7 типоразмеров;
- разработаны и изготовлены милливиалы объемом 0.8 мл;
- разработан метод стандартизации Черенковского счета для регистрации жестких β -излучателей, позволяющий упростить процессы подготовки образцов, что позволило реализовать экспресс-метод определения ^{90}Sr в воде, в том числе и в присутствии других β -излучателей;
- разработан современный метод β -спектрометрии, для регистрации и анализа спектра смеси жестких β -излучателей, включающий необходимые элементы стандартизации, позволяющий реализовать экспресс-метод определения ^{90}Sr

воде, молоке, моче практически без подготовки пробы, а также в других пробах, при подготовке жидкой счетной формы, обеспечивающий возможность получения результата по каждому разрешаемому элементу смеси β -излучателей;

- проведена калибровка ЖСС для регистрации ^{241}Pu в форме водного раствора и в органической фазе на основе следующих ЖС: ЖС-8, ЖС-1, Optiphase Hisave 3, Optiphase Hisave 2;
- проведена калибровка ЖСС для измерения любых α - и β -излучателей в 2 π -геометрии при регистрации активности, нанесенной на металлическую пластинку.

Исследования, касающиеся мониторинга различных β -излучателей, выполнены в следующем объеме:

- тритий в воде - 5000;
- тритий в осадках - 1000;
- радиоуглерод - 200;
- ^{90}Sr в воде - более 250;
- ^{90}Sr в молоке - свыше 600;
- ^{241}Pu в почвах - более 500 измерений;
- ^{241}Pu в других пробах >30 проб;
- проведено комплексных исследований (^{90}Sr , ^{14}C , ^{241}Pu) - 20 образцов;
- послеаварийный мониторинг ^{90}Sr в молоке в с.Оташев в 30-ти км зоне;

По материалам исследований опубликовано работ - 24 из них в зарубежной изданиях -7. Получено 2 приоритетные справки, касающиеся применяемых методов исследований.

На основе анализа данных проведенных исследований получены следующие основные результаты:

Уровни содержания трития в источниках питьевого водоснабжения в настоящее время составляют 3-7 Бк \cdot л $^{-1}$ и определяются прежде всего процессами глобального обмена воды, в пользу чего свидетельствуют сезонные

колебания уровней содержания трития в осадках. Тенденция к снижению уровня содержания трития отслеживается как по поверхностной воде, так и по осадкам. Исследования уровней содержания трития в воде скважин представляют в большей степени гидрогеологический интерес, а величина уровней определяется прежде всего доступностью поверхностной воды и степенью потребления воды каждой конкретной скважины и в настоящее время составляет от долей до единиц Бк·л⁻¹. Тритий является наиболее чувствительным методом контроля качества технологии АЭС, степени влияния на объекты окружающей среды. Влияние выбросов трития атомными электростанциями лучше всего отслеживается в случае осуществления сбросов в малые реки.

Усвоение ¹⁴C в составе CO₂ воздуха растительностью и существующие методы радиоуглеродных исследований позволяют решать задачи определения пространственного распределения избыточного радиоуглерода ($\Delta^{14}\text{C}$) в районе размещения Чернобыльской АЭС как за период штатной работы, так и для аварийного выброса. Уровни выброса ¹⁴C в окружающую среду вследствие аварии на ЧАЭС оценены величиной 28-56 ТБк. Существенная величина аварийного выброса ¹⁴C, ее усвоение растительностью позволяет решать задачи пространственного распределения радиоуглерода аварийного выброса $\Delta^{14}\text{C}$ на расстоянии вплоть до 50-60 км от ЧАЭС. Это, в свою очередь, дает возможность рассматривать корреляционные связи уровней накопления избыточного радиоуглерода с аварийными выбросами других радионуклидов. Одногодичная растительность 1986 года (пробы, гербарии) пригодны для целей ретроспективного определения аварийной компоненты $\Delta^{14}\text{C}$ только при условии использования покомпонентного анализа: графит (поверхностное загрязнение) и усвоенная компонента.

Уровни ⁹⁰Sr в воде р.Днепр в зоне влияния аварии на ЧАЭС колеблются в течении года на уровне 0.25-0.45 Бк·л⁻¹. Паводковое повышение уровня воды в устье р.Припять (1991 год) может привести к дополнительному смыву радиоактивности, прежде всего ⁹⁰Sr, что может привести к повышению уровня радиоактивного загрязнения питьевой воды р.Днепр по ⁹⁰Sr в 10-20 раз.

Существующая система водообеспечения г.Киева, как видно по данным 1991 года, способна обеспечивать для водоснабжения воду в 5-10 раз чище по содержанию ^{90}Sr , чем вода р.Днепр, за счет использования воды р.Десна и технологических процессов подготовки и очистки воды.

Исследования содержания ^{90}Sr в молоке в наиболее загрязненных населенных пунктах зоны жесткого радиационного контроля показали, что для ближней зоны влияния аварии: Овручский и Народичский р-н Житомирской области это загрязнение может быть сопоставимо с загрязнением за счет ^{137}Cs (речь идет о зоне отчуждения). Уровни загрязнения молока по ^{90}Sr в с.Оташев (Чернобыльский р-н 30-км зона ЧАЭС) очевидно следует рассматривать как максимально возможные: максимальная величина загрязнения почвы и максимальные коэффициенты перехода. Особенности изменения величины загрязнения за время после аварии говорят о том, что идет увеличение доступной части активности ^{90}Sr почвы аварийных выпадений.

Полученны результаты по уровням загрязнения почв Украины ^{241}Pu , что дает возможность вести оценку величины доз, получаемых населением за счет этого радионуклида, а кроме этого, оценить величину компоненты прогнозного накопления ^{241}Am , получаемого в результате распада ^{241}Pu .

ВЫВОДЫ И ПРЕДЛОЖЕНИЯ

По итогам исследований получены следующие основные результаты:

1. Разработан комплекс методов мониторинга основных β -излучающих радионуклидов (^3H , ^{14}C , ^{90}Sr , ^{241}Pu) в объектах окружающей среды, подтверждена точность методов сличением результатов интерсличений с МАГАТЭ [IAEA/AL/045, 1991].
2. Изготовлено 6 типоразмеров алюминий-тефлоновых и медно-тефлоновых виал для жидкостно-сцинтилляционного счета, позволяющих существенно - до 2-3 раз снижать значение фона прибора и до 2-х раз улучшать энергетическое разрешение. Разработаны милливиалы и начато их изготовление для измерений радиоуглерода как вариант оптимизации прибора для определения активности образцов малого объема.
3. На основании результатов измерения трития на всей территории Украины подтверждена тенденция к снижению уровня содержания трития в окружающей среде после глобальных испытаний оружия. В местах размещения АЭС содержание его выше глобальных значений может быть сотни-тысячи раз, составляя 300-10000 Бк·л⁻¹. Показано, что тритий является наиболее чувствительным индикатором качества технологии АЭС, что требует его непрерывного мониторинга.
4. Выброс ^{14}C в окружающую среду вследствие выгорания графита в результате аварии на ЧАЭС нами оценен величиной 28-56 ТБк. Усвоение ^{14}C в составе CO_2 воздуха растительностью позволяет решать задачи определения избыточного радиоуглерода $\Delta^{14}\text{C}$ в районе размещения ЧАЭС с целью восстановления динамики выбросов как за период штатной работы, так и в период аварийного выброса. Последнее позволяет решать задачи определения пространственного распределения $\Delta^{14}\text{C}$ аварийного выброса на расстоянии свыше 50-60 км от ЧАЭС, что дает возможность использования данных $\Delta^{14}\text{C}$ в качестве репера для ретроспективного определения аварийных газообразных выбросов других радионуклидов.

5. Впервые обеспечен непрерывный мониторинг ^{90}Sr в воде р.Днепр в реальном масштабе времени позволив отслеживать динамику изменения ^{90}Sr в воде и оперативно ею управлять; определить особенности динамики в зависимости от сезона года и метеорологических факторов. В зоне влияния аварии на ЧАЭС уровни ^{90}Sr в воде р.Днепр колеблются в течении года в диапазоне 0.25-0.45 Бк·л⁻¹. В период паводкового повышения уровня воды за счет смыва ^{90}Sr с территории водосбора рек может повыситься уровень ^{90}Sr в 10-20 раз к исходной, так и в питьевой воде, что подтверждает важность непрерывного мониторинга в практике радиационной защиты населения.
6. Исследования содержания ^{90}Sr в молоке наиболее загрязненных населенных пунктов зоны жесткого радиационного контроля показали: для ближней зоны влияния аварии (Овручский и Народичский р-н Житомирской области, зона отчуждения) загрязнение сопоставимо с загрязнением за счет ^{137}Cs . Особенности изменения величины загрязнения молока по ^{90}Sr в с.Оташев (Чернобыльский р-н 30-км зона ЧАЭС) за время после аварии говорят о том, что идет увеличение доступной части активности ^{90}Sr в почве. Это является подтверждением необходимости мониторинга ^{90}Sr .
7. Получены результаты об уровнях загрязнения почв жилых территорий Украины ^{241}Pu на большом количестве проб (более 500). Показано, что уровни составляют в среднем $20.5^{+35.2}_{-12.9}$ Бк на кг, что лежит в пределах колебания его величины для умеренной полосы северного полушария, анализ бета/альфа соотношения активности плутония говорит о существенном вкладе “свежих” выпадений, который более значителен в местах прилегающих к территории ЧАЭС. Оценка максимальной накопленной активности ^{241}Am почвы Украины определена средней величиной $0.6^{+1.0}_{-0.4}$ Бк на кг.

Искренняя благодарность руководителям работы доктору биологических наук, И.П.Лось и доктору физико-математических наук, профессору И.А.Лихтареву за постоянную помощь в выполнении работы; дирекции Центра за поддержку работы на всех ее этапах, сотрудникам лабораторий радиоэкологии и лаборатории

радиохимии Центра, сотрудникам ПГО “Севукргеология” и Отделения радиогеохимии окружающей среды АН Украины - участникам совместных исследований.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Вредные химические вещества. Радиоактивные вещества: Справ. изд./ В.А.Баженов, Л.А.Булдаков, И.Я.Василенко и др.; Под ред. В.А.Филова и др.- Л.: Химия, 1990. - 464 с.
2. Балонов М.И. Дозиметрия и нормирование трития. - М.: Энергоатомиздат, 1983. - 152 с.
3. Гришмановский В.И. Тритий. М.: Атомиздат, 1985., - 243 с.
4. United Nations. Sources and Effects of Ionizing 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. - 280 p.
5. Rank D., Rainer V., Lust G. Evidence of local tritium releases in the drainage area of the River March (Morava). //Rare Nuclear Processes. / Proceedings of 14th Euvrophysics Conference on Nuclear Physics. Bratislava, Czechoslovakia 22-26 October 1990. World Scientific Publishing Co.Pte.Ltd. 1992. - p. 367-370.
6. Rank D., Rainer V., Lust G. Tritium in Precipitation: "Altitude effect" in the Alps ?. //Rare Nuclear Processes. / Proceedings of 14th Euvrophysics Conference on Nuclear Physics. Bratislava, Czechoslovakia 22-26 October 1990. World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd. 1992. - pp. 371-375.
7. Behavior of Tritium in the Environment. Proceedings of a Symposium San Francisco, 16 - 20 October, 1978 y. - Vienna, IAEA, 1979. - 711 p.
8. Петросьянц А.М. Атомная энергия в науке и промышленности. М.: Энергоатомиздат, 1984. - 35 с.
9. Москалев Ю.А. Минеральный обмен. М.: Медицина, 1985. - 287 с.
10. Катрич И.Ю. Тритий в природных водах после аварии на Чернобыльской атомной электростанции. // Метеорология и гидрология., 1990, N5, С. 92-97.
11. Москалев Ю.И. Радиобиология инкорпорированных радионуклидов. - М.: Энергоатомиздат, 1989. - 264 с.

12. Shunichi Hisamatsu, Yukio Takizawa et al. Fallout H-3 in Human Tissue at Akita, Japan. //Health Physics. Vol.57, No 4, 1989 - P. 559-563.
13. Taylor D.M. An Approach to the Proposal of an Annual limit of Intake for the General Public (ALIgr) for Organically Bound Tritium. Radiation Protection Dosimetry. Vol. 27. No.3. 1989 - P.211-213.
14. Нормы радиационной безопасности НРБ - 76/87 и основные санитарные правила работы с радиоактивными веществами и другими источниками ионизирующих излучений ОСП - 72/87. / Минздрав СССР. - 3-е изд., перераб. и доп. - М.: Энергоатомиздат, 1988. - 160 с.
15. Selected Radionuclides. World Health Organization. 1983. - 238 p.
16. Suess H.E. // Science. Vol.120, N 3105. 1954. - P. 5-7.
17. Ионизирующие излучения: источники и биологические эффекты. НКДАР при ООН. Нью-Йорк. 1982. Т.1. 882 с.; Т.2. 780 с.; источники и действие ионизирующей радиации. НКДАР при ООН. Нью-Йорк. 1978. Т.1. 382 с.
18. International Atomic Energy Agency. Power reactors in member states. IAEA, Vienna, 1980. - 125 p.
19. McCartney M., Scott E.M. Carbon-14 Discharges from the Nuclear Fuel Cycle: 1. Global Effects. J. Environ. Radioactiv. 8. 1988. - P. 143-155.
20. McCartney M., Scott E.M. Carbon-14 Discharges from the Nuclear Fuel Cycle: 2. Local Effects. J. Environ. Radioactiv. 8. 1988 - P. 157-171.
21. Бегичев С.Н., Боровой А.А., Бурлаков Е.В. и др. Топливо реактора 4-го блока ЧАЭС. (Краткий справочник.) // Препринт ИАЭ-5268/3.М., 1990.- 21 с.
22. Пределы поступления радионуклидов для работающих с ионизирующим излучением. Публ.30 МКРЗ. Ч.1. М.: Энергоатомиздат, 1982. - 135 с.
23. Изотопный состав атмосферных осадков в центральной и восточной Европе. // Материалы метеорологических исследований. №12. Москва. 1987. Межведомственный геофизический комитет АН СССР. 1987. - 88 с.
24. Маркелова В.Ф., Мазюкевич Н.П. /Контроль за содержанием трития в сбросных водах и объектах окружающей среды некоторых АЭС СССР. //Гигиена и санитария. 1990. №2. - С. 42-45.

25. Dominici G., Risposi L., Behavior of Tritium Oxide in the Environment Inside J.R.C. of ISPRA. Abstracts of International Conference on Advances in Liquid Scintillation Spectrometry. September 14-18,1992. Vienna, Austria. 88 p.
26. Sushil K. Gupta, Henry A. Polach. Radiocarbon Dating Practices at ANU. Handbook. Radiocarbon laboratory, Research School of Pacific Studies. ANU, Canberra, 1985. - 174 p.
27. Rublevskii V.P., Zyкова A.S., Turkin A.D.: Atomic Power Stations as Sources of Carbon-14 Discharges. Proc. 3rd Int. Cong. Rad. Prot. Assoc., Washington D.C., 1973. - P. 296-300.
28. Рублевский В.П., Голенецкий С.П., Кирдин Г.С.: Радиоактивный углерод в биосфере., Москва, 1979, Атомиздат, 134 с.
29. Соботович Э.В., Ковалюх Н.Н., Чебаненко С.И.: //Дендрорадиоэкология в зоне влияния Чернобыльской АЭС. /"Принципы и методы ландшафтно-геохимических исследований миграции радионуклидов", Москва, 1989, - С 125.
30. Арсланов Х.А.: Радиоуглерод: геохимия и геохронология., Из-во Ленинградского Университета, 1987. - 295 с.
31. Salonen L. Carbon-14 and Tritium in Air in Finland after the Chernobyl Accident. Radiochimica Acta 41,1987. - P. 145-148.
32. М.Г. Бузынный, А.В. Зеленский., Н.Н. Ковалюх, В.В. Скрипкин., Е.В. Санин. / Ретроспективное восстановление уровня аварийного выброса ^{14}C 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.
33. Бузынный М.Г., Лось И.П., Зеленский А.В., Ковалюх Н.Н., Скрипкин В.В. / 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: 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.
34. Дементьев В.А. Измерение малых активностей радиоактивных препаратов. - М.: Атомиздат, 1967. - 200 с.
35. Ровинский Ф.Я., Йохельсон С.Б., Юшкан Е.И. Методы анализа загрязнения окружающей среды. Токсические металлы и радионуклиды / Под. ред. докт. хим. наук Ф.Я. Ровинского. - М.: Атомиздат, 1976. - 264 с.
36. Использование β -спектрометрии для массового анализа проб на содержание Sr-90 / И.П. Лось, А.В. Зеленский, Ю.И. Федоренко, Л.И. Наговицына // Итоги работы научных и практических учреждений здравоохранения по ликвидации последствий аварии в 1986 году: Сборник материалов / Всесоюзный симпозиум, 25 - 26 июня 1987 г. - М., 1987. - С. 284 - 289.
37. Бузынный М.Г., Цыганков./ Использование жидкостно-сцинтилляционного счета для измерения радионуклидов осажденных на металлические подложки.//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. 50.
38. Бузынный М.Г., Цыганков Н.Я., Зеленский А.В., Сорока С.В., Лебедева Л.И./ Измерение ^{241}Pu в объектах окружающей среды.// Проблемы радиационной медицины. Республиканский межведомственный сборник. Выпуск 5. Киев. 1993.- 48-56с.
39. Peng C.T. Sample preparation in liquid scintillation counting // Revue / The Radiochemical Centre Amersham, England. - 1975. - N 17. - P. 111.
40. Birks J.B. and Conte J.C. Proc. Royal Soc., Ser A (London), A303, 85, 1968.
41. Georghiou S. and Munro I.H. in Organic Scintillators and Liquid Scintillation Counting. Proc.Conf. 1970. (D.L.Horrocks, C.T.Peng, eds.). New York, Academic Press, 1971, pp.339 1078.
42. Voltz R., Klein J., Heisel F., Lami H., Laustriat G. and Coche A. J. Chim. Phys., 63, 1259, 1966.

43. Laustrian G. Voltz R., Klein J. p.13 in *The Current Status of Liquid Scintillation Counting*. (E. D. Bransome, ed.), New York, Grune and Stratton, 1970, 394 p.
44. Timo Oikary, Jari Suontausta, Stuart Webb and Laury Kaichola. *Use of A New Meltable Scintillator for Solid Scintillation Counting by LSC*. A paper submitted to American Nuclear Society Winter Meeting, San Francisco, November 10-14, 1991.
45. Jari Suontausta, Timo Oikary and Stuart Webb. *A Meltable Thermoplastic Scintillator*. International Conference on Advances in Liquid Scintillation Spectrometry. September 14-18, 1992. Vienna, Austria. Radiocarbon 1993.
46. Laury Kaichola, Timo Oikary and Jari Suontausta. *Direct Detection of Radon Gas in Air with A Liquid Scintillation Counter*. Presented at the 3rd International Conference on Nuclear and Radiochemistry, Vienna, September 7-11, 1992
47. Зеленский А.В., Бузынный М.Г. / Совершенствование метода измерения Rn-222 в воздухе на основе использования термопластичного сцинтиллятора Meltilex™. //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. 122-123.
48. Бондаренко О.А., Сорока С.В., Фризюк М.А. /Исследования микродозиметрических характеристик горячих частиц после аварии на Чернобыльской АЭС.//Проблемы радиационной медицины. Республиканский межведомственный сборник. - Киев, Здоровья, 1992. - Вып. 4. - С. 32 - 40.
49. Horrocks D.L. *Nature*, 202, 78,1964.
50. Higashimura, T., Yamada, O., Nohara, N. and Shidei, T. *Int. J. Appl. Radiat. Isotopes*, 13, 308, 1962.
51. Fleischman, D.G. and Glasunov, V.V. *Pribory i Teknika Eksperimenta*, 7, 55 1962.
52. Kaihola L. *Cosmic particle spectrum as a quench monitor in low level liquid scintillation spectrometry*. *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. A00* (1993) NIM 04125. North-Holland. In press.

53. Measuring extremely low levels of alpha and beta activity. 1220 Quantulus. LKB Wallac: Prospect. - 1987. - 8 p.
54. Kaichola, I., Kojola, H. and Heinonen, A., A Minivial for Small Sample C-14 Dating, 14th International Radiocarbon Conference, Tucson, AZ, May 20-24, 1991.
55. Hogg, A., Assesment of 0.3 ml Minivials for Liquid Scintillation Counting of benzene, 14th International Radiocarbon Conference, Tucson, AZ, May 20-24, 1991. In press.
56. Henry Polach. Perspectives in radiocarbon dating by radiometry. Preprint as accepted for publications in Nuclear Instruments and Methods, 1987. Based on lecture given at AMS'87, ANNO DECIMO.
57. McDonnell W.J. Alfa Counting and Spectrometry Using Liquid Scintillation Methods NAS-NS-3116 (DE86 007601). - New York: Technical Information Center, Office of Scientific and Technical Information, US DOE, 1986. - 108 p.
58. Rolf-Diter Wilken and Sewak R. Joshi. Rapid Methods for Determining ^{90}Sr , ^{89}Sr and ^{90}Y in Environmental Samples: A Survey. 90
59. Piltingsrud, H.V. and J.R. Stencel, "Determination of ^{90}Y , ^{90}Sr and ^{89}Sr in samples by use of liquid scintillation beta spectroscopy", Health Physics 23 (1972) P. 121-126.
60. Buchtella, K. and Tschurlovits, M., Eine Methode zur Bestimmung von Sr-89, Sr-90 and Y-90 (in wasserliger Lasung mittels Flussig szintillation). Int. J. Appl. Radiat. Isot. 26, P. 333-335.
61. Jelly, J.V. Cerenkov Radiation and its Application. London, Pergamon Press, 1958, 304 p.
62. Marshall, J.Phys. Rev., 86,685, 1952.
63. Belcher, H. Proc. Roy. Soc. (London), A216,90, 1953.
64. Tamm, I.E. Amer. Sci., 47, 169, 1959.
65. Tamm, I.E. Science, 131, 206, 1960.
66. Gelsema W.J., De Ligny C.L., Luten J.B. and Vossenberg F.G. A. Int. J.Appl. Radiat. Isotopes, 26, 1975. P. 443-446
67. Ross, H.H. //Anal.Chem. - 1969. N41, P.1260-1265.

68. Baillon P., Declais Y., Ferro-Luzzi M., French B., Jenni P., Perreau J. and Ypsilantis T. //Nucl. Instr. Methods -1975 N13, P. 126-129.
69. Francois B. //Int. J. Nucl. Med. Biol.- 1973. N1, P. 1-8.
70. Haberer, K. // Atomwirt.-1966. N10, P.36-42, (an English translation appeared as Packard Technical Buletin No.16 January 1966).
71. Kamp, A.J. and Blanchard, F. A. // Anal. Biochem. -1971. N44, P. 369-375.
72. Haviland, R. T. and Bieber, L.L. // Anal. Biochem. - 1970. N33, P.323-328.
73. Hulsen, W. and Prenzel, U. // Anal. Biochem. - 1968. N26, P.483-486.
74. Lauchli, A. //Int. J. Appl. Radiat. Isotopes - 1969. N20, P. 265-268.
75. Elrich R.H., Parker R.P. //Int. J. Appl. Radiat. Isotopes - 1968. - N19, - P. 263.
76. The Application of Cherenkov Counting to the Determination of Pb-210. Patrick C. Klarce, Malcolm B. Cooper. LSC92. Abstracts of International Conference on Advances in Liquid Scintillation Spectrometry. September 14-18, 1992. Vienna, Austria. 88 p.
77. Randolph, R.R. Determination of Strontium-90 and Strontium-89 by Cherenkov and Liquid-Scintillation Counting, //Int. J. Appl. Rad. Isotop. -1975. N26, P. 9-16.
78. Mink, H.F., "Experiments to the β -Spectroscopy in the Low Level Area by a Surface Barrier Detector" -"Kernforschung zur β -Spectroscopie im Low Level-Bereich mit einem Oberflächensperrschichtzähler,"- Bericht Nr. 0326, (1980) (in German).
79. Catalog Supplement. EG&G ORTEC. Fall 1989. Oak Ridge. 1989. 172 p.
80. Instruments Catalog. Edition nine. Canberra -Nuclear. Meridan. 1990. 338 p.
81. Catalog of Scientific Instrumentation. The Nucleus inc. The Tennelec inc. 1987.- 200 p.
82. Bicon Radiation Detectors Instruments: Instruments Catalog.- 1985.-50 p.
83. Harshaw Radiation Detectors: Instruments Catalog.- 1984.-60 p.
84. Horrocks, D.L., Pulse shape discrimination with organic liquid scintillation solutions. // Appl. Spectrosc.- 1970. N24, V4, P.397-402
85. Oikary, T., Kojola, H., Nurmi, J., and Kaichola, L., Simultaneous counting of low alpha- and beta-particle activities with liquid-scintillation spectrometry and pulse shape analysis. // Int. J. Appl. Radiat. Isot. -1987. N38, P.875-882.

86. Zelensky A.V., Buzinny M.G., Los' I.P. Measurement of Radium-226, Radon-222, and Uranium-238,234 in Underground Water of the Ukraine with Ultra Low-Level Liquid Scintillation Counter. In Liquid Scintillation Spectrometry 92. Edited by J.E. Noakes, Franz Schonhofer & H.A. Polach. International Conference on Advances in Liquid Scintillation Spectrometry 1992. (1992: Vienna, Austria). Radiocarbon 1993. P. 405-411.
87. Lucas H.F. //Rev. Sci. Instr.- 1957. N28, P.68-76.
88. Schonhofer F., Henrich E. Recent progress and application of low level liquid scintillation counting. // Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Articles, 1987. Vol. 115, N2P. 317-333.
89. Hayes F.N., Williams D. L., Rogers B. // Phys. Rev.- 1953. Vol. 92, N2. P. 512-513.
90. Arnold J.R. //Science.- 1954. Vol. 119, N3083. P.155-157.
91. Старик И.Е., Арсланов Х.А., Жарков А.П. // Радиохимия. 1960. Т.2, Вып.2. С.259 - 260.
92. Старик И.Е. Ядерная геохронология. Л., 1961.162 с.
93. Старик И.Е., Арсланов Х.А., Кленер И.Р. // Радиохимия. 1963. Т.5, вып.2. С. 198-205.
94. Tamers M.A., Stipp J.J., Collier J. // Geochim. et Cosmochim. Acta. 1961. Vol. 24, N 3/4. P.266-267.
95. Noakes J.E., Isbell A.S., Hood W.D. // Geochim. et Cosmochim. Acta. 1963. Vol. 27, N3. P.797-804.
96. Barker H. // Nature. 1953. Vol.172, N4379. P. 631-632.
97. Hubbs C.L., Bien G.S. // Radiocarbon. 1967. Vol. 9. P. 261-294.
98. Tamers M.A. // Radiocarbon. 1969. Vol. 11, N 2. P.396-422.
99. Арсланов Х.А. // Геохимия. - 1978. N 8. С.1157-1164.
100. Radnell C.J., Miller A.B. // Radiocarbon. 1980. Vol. 22, N 2. P.479-486.
101. Протопопов Х.В., Бутомо С.В. // Советская археология. - 1959. N 2. С.7-34.
102. Tamers M.A. // Science. 1960. Vol. 132, N 3428. P.668-669.
103. Tamers M.A., Stipp J.J., Colier J. // Geochim. et Cosmochim. Acta. 1961. Vol.24, N 3/4. P. 266-267.

104. Reppe W., Schweckendick W. // *Annal.Chem.* 1948. Bd 560, N 1-2. S.104-116.
105. Lutz E.F. // *J. Amer. Chem. Soc.* 1961. Vol. 83. P.2551-2554.
106. Арсланов Х.А. // Бюлл. комис. по опред. абс. возр. геол. форм. М., 1967. Вып.8. С. 154-163.
107. Арсланов Х.А., Громова Л.И. // Авт. свид. N 225870. Бюлл. изобр. 1968. N 28.
108. Арсланов Х.А., Громова Л.И. // *Кинетика и катализ.* 1969. Е.10. С.313-317.
109. Арсланов Х.А. // *Дендроклиматохронология и радиоуглерод.* Каунас, 1972. С.249 - 270.
110. Ильвес Э.О. // *Радиоуглерод.* Вильнюс, 1971. С.181-182.
111. Noakes J.E., Kim S.M., Stipp J.J. // *Proc. 6th Intern. Conf. Radiocarbon and Tritium Dating.* Washington, 1965. P.68 - 98.
112. Алексеев В.А., Смирнов И.В. *Радиоуглерод.* Вильнюс, 1971.С.143-146.
113. Методические рекомендации по санитарному контролю за содержанием радиоактивных веществ в объектах внешней среды / Под ред. А.Н. Марeya, А.С.Зыковой. - М., 1980. - 335 с.
114. Harley, D.H. Ed., HASL 300 Procedures Manual. "Determination of Strontium-90 by Solvent Extraction-rapid Method." U.S. Atomic Energy Commission, New York, (1975). 90 p.
115. Suomela, J. and Walberg, L. Rapid Determination of ⁸⁹Sr and ⁹⁰Sr in Milk. *Proc. XV th Regional Congress of the International Association for Radiation Protection, Visby, September 10 - 14, 1989.* 1990. P.461 - 463,).
116. Carmon, B. The Use of Cerenkov Radiation for the Assay of Radio - Strontium in Aqueous Solutions. // *Int. J. Appl. Rad. Isotop.* -1979, N30, P.97-100.
117. Durham, R.W. and Joshi, S.R. Dose Equivalent Commitments From Fallout Radionuclides in the Open Waters of the Great Lakes 1973-1981. // *Environ. Monit. Assessment* -1984. N4, P.405-417.
118. Butler, F.E. Strontium-90 Monitoring at the Savannah River Plant.// *Health Physics.*- 1962. N8, P.273-277.
119. Butler, F.E. Separation of Calcium and Strontium by Liquid Ion Exchange. // *Anal. Chem.*- 1963. N35, P.2069-2071.

120. Baratta, E.J. and Reavey, T.C. Rapid Determination of Strontium-90 in Tissue, Food, Biota, and Other Environmental Media by Tributyl Phosphate. // J. Agric. Food Chem. - 1969. N17, P.1337-1339.
121. Borcherding, J. and Nies, H. An Improved Method for the Determination of ^{90}Sr in Large Samples of Seawater.// J. Radional. Nucl. Chem.-1986. N98. P.127-131.
122. Bunzl, K. and Kraske, W. 'A Simple Radiochemical Determination of ^{90}Sr in Environmental. // J. Radional. Nucl. Chem.-1991. N148, P.115-119.
123. Borus-Boszormenyi, N. and Kovas, J. Determination of the Content of the ^{89}Sr and ^{90}Sr in Samples of Animal and Plant Origin, 'Bestimmung des Gehaltes an ^{89}Sr und ^{90}Sr in Proben tierischer und pflanzlicher Herkunft. //' J. Radioanal. Chem. - 1982 N68, P.23-38.
124. Kramer, G.H. and Davies, J.M. Isolation of Strontium-90, Yttrium-90, Promethium-147 and Cerium-144 from Wet Ashed Urine by Calcium Oxalate Coprecipitation and Sequential Solvent Extraction. //Anal. Chem.-1982. N54, P.1428-1431.
125. Mundschenk, H. Enrichment and Determination of Small Amounts of $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ in Water-Samples. Deutsch. Gewasserk. Mitteil.-1979. N23, P.64-72.
126. Koprda, V.; Scasnar, V.; Galan, P. Separation of ^{137}Cs and ^{90}Sr From Mineralizates of Biological Materials by Dicarbolide of Cobalt. // J. Radioanal. Chem.,-1983. N80. P.55-62.
127. Scasnar, V. Determination of Strontium-90 in Urine by Extraction Without Ashing. // Anal. Chem., -1984. N56, P.605-608.
128. Kimura, t.,et al. Separation of Strontium-89 and -90 from Calcium in Milk with a Macrocyclic Ether. // Anal. Chem. -1979. N51. P.1113-1116.
129. Blasius, Klein, W.; Schon, U. On the Reliability of Strontium from Nuclear Waste Solutions by Solvent Extraction With Crown Ethers.// J. Radional. Nucl. Chem. - 1989. N89. P.389-398.
130. Mikulaj, V.; Hlatky, J.; Vasekova, L. An Emulsion Membrane Extraction of Strontium and Its Separation From Calcium Utilising Crowns and Picric Acid. //J. Radioanal. Nucl. Chem., -1986. N101, P.51-57.

131. Vaney, B.; et al., Rapid Trace Determination of Radiostrontium in Milk and Drinking Water. // J. Radioanal. Nucl. Chem.- 1989. N134, P.87-95.
132. Wai, C.M.; Du, H.S. Separation of Yttrium-90 and Strontium-90 on Papers Impregnated with Ionizable Crown Ethers. // Anal. Chem.-1985. N62:2412-2414.
133. Bryant, E.A.; Sattizahn, J.E.; Warren, B. 'Strontium-90 by an Ion Exchange Method. // Anal. Chem.-1959. N31: P.334-337.
134. Knapstein, H.Z. Determination of Strontium-90 in Water Samples by Ion Exchange Procedures, Zur Bestimmung von Strontium-90 in Wasserproben Durch Ionenaustauschverfahren. //Anal. Chem.-1960. N175, P.255-265.
135. Hinzpeter, A. Measurement of Small β -Activities (Fallout) in Water and Ashes after Preconcentration by Selective Ion Exchange. Messung Kleinster β -Aktivitäten (Fallout) in Wasser und Aschen nach Anreicherung Durch Selektiven Ionenaustausch. // Atompraxis -1970. N16, P.414-419.
136. So, Le Van; Tam, Tran Minh; Nghia, Tu Van. The Determination of Strontium-90 by Ion Exchange Method Using Silica Gel Supported Hydrous Magnese Dioxide.// Radiochem. Radioanal. Lett.,-1983. N59: P.101-110.
137. Stadlbauer, E.A.; et al. Ultrapurification of Radiostrontium Samples by Ion Chromatography. Int. J. Anal. Chem.-1988. N330, P.1-7.
138. Силантьев А.Н. Спектрометрический анализ радиоактивных проб внешней среды.-Л.-Гидрометеиздат,1969.-184с.
139. Knat'ko V.A., Ugolev I.I., Sokolovsky F.S., Zamozdik M.E. A spectrometric method for determining the SR-90 activity in environmental samples//Environmental contamination following a major nuclear accident: Proceedings of a symposium, Vienna, 16-20 October 1989. - Vienna: International Atomic Energy Agency, 1990. - Vol. 1. - P. 306-307.
140. Palazzolo M., Prati P., Ricco G. and Taiuti M. A beta spectrometer for monitoring environmental matrices. Health.Phys.-1992. N62(2): P.155-161.
141. Vapirev E. I. and Hristova A. V. Quantitative analysis of a mixture of beta-emitters. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research. 00 (1991) NIM 06500. In press.

142. Sutherland J. K. A Spreadsheet Method for ^{90}Sr and ^{89}Sr Interpretation. *Health Phys.* -1988. Vol.54. №1. 1988. P. 69-72.
143. 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, -1991. Oak Ridge, P. 529-535.
144. Regan, J.G. and Tyler, J.F. Determination of Strontium-90 and Strontium-89 in Water Without Separation of Strontium from Calcium.// *Analyst*-1976. N101, P.32-38.
145. 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*.-1982. N42, P.529-530.
146. Horrocks D.L., and Studies M.H. Low Level Plutonium-241 Analysis by Liquid Scintillation Techniques. *Analytical Chemistry*, -1959. Vol. 30, No 11, P. 1747-1750.
147. Miglio J.J., Willis L.C. Simultaneous Liquid Scintillation Determination of ^{239}Pu and ^{241}Am in Tissue. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Articles*, -1988. Vol. 123, No. 2. P. 517-528.
148. Parus J.L., Raab, W., Radoszewski. On the Application of Liquid Scintillation Counting for the Determination of Plutonium and/or Americium Concentration. International Conference on Advances in Liquid Scintillation Spectrometry, LSC92, Vienna, Austria, Sept. 14-18, 1992. *Radiocarbon* 1993. P.233-237.
149. Ryan, T.P., Mitchell, P.I., Vives i Batlle, J., Sanchez-Cabeza, J.A. and McGarry, A low-level Pu-241 Analysis by Supported Disc Liquid Scintillation Counting. International Conference on Advances in Liquid Scintillation Spectrometry, LSC92, Vienna, Austria, Sept. 14-18, 1992. *Radiocarbon* 1993. P.75-82.
150. Seidel A. and Volf V. Rapid Determination of Some Transuranium Elements in Biological Material by Liquid Scintillation Counting. *International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, -1972, Vol. 23, No. 2. P.1-4.

151. Yu-fu, Yu, Salbu, B., Bjornstad, H.E., Lien, H., Improvement for - Energy Resolution in Determination of Low Level Plutonium by Liquid Scintillation Counting. //J. Radioanal. Nucl. Chem., Letters-1990. N145(5), P.345-353.
152. Yu-fu, Yu, Salbu, B., Bjornstad, H.E., Review: Recent Advances in the Determination of Low Level Plutonium in Environmental and Biological materials. J. Radioanal. Nucl. Chem. -1991. 148(1), P.163-174.
153. Kojola, H., H. Polach, J. Nurmi, T. Oikari and E. Soni. High Resolution Low Level Liquid Scintillation β Spectrometer. Int. J. Rad. Isotopes, -1984. N35: P.948-952.
154. Polach H., Galf G., Harkness D., Hogg A., L. Kaihola and S. Robertson. Performance of New Technology Liquid Scintillation Counters for ^{14}C Dating. Preprint, Nuclear Geophysics, 1988, V2. No. 2.
155. Разработка единых методических подходов, метрологического обеспечения, способов сличения и интерпритации результатов экологических и радиометрических исследований: Отчет по НИР/Всеозюзный научный центр радиационной медицины (ВНЦРМ АМН СССР); Руководитель И.А. Лихтарев, отв. исп. И.П. Лось. - № ГР 01.9.000 19843; Инв. N 02.9.000 19063. - Киев, 1989. - 28 с.
156. The International Chernobyl Project. The Radiological Consequences in the USSR of the Chernobyl Accident: Assessment of Health and Enviromental Effects and Evaluation of Protective Measures / International Advisory Committee Technical Report. - Vienna: IAEA, 1991. - Vol. 1-3. - 1200 p.
157. The International Chernobyl Project. The Radiological Consequences in the USSR of the Chernobyl accident: Assessment of Health and Environmental Effects and Evaluation of Protective Measures. International Advisory Committee Technical Report. (Unedited final Version). Presented at the International Conference on the International Chernobyl Project Vienna, 21-24 may 1991. Volume 1.(Fig. D14).
158. Лось И.П., М.Г.Бузынный, А.В.Зеленский, О.А.Бондаренко, Ю.С.Савин, О.А.Теодорович. Неоднородности радиационного загрязнения после аварии

- на ЧАЭС. Проблемы радиационной медицины Республиканский межведомственный сборник. Киев. "Здоровья".1989. С. 26-36.
159. Оценка вклада "горячих" частиц в корневое поступление радионуклидов / И.П. Лось, В.С. Репин, О.А. Бондаренко и др. // Актуальн. вопросы медицины: Матер. респуб. науч. конф., Киев, 17-19 окт. 1989 г. - Киев: АН УССР, 1989. - С. 82-88.
160. И.П. Лось, А.В. Зеленский, О.А. Бондаренко и др. Распространенность "горячих" частиц на территории УССР после аварии на ЧАЭС. // Тезисы докладов / I Всес. радиоэкол. съезд, Пушино, 21-27 авг. 1989 г. - М.: АН СССР, 1989. - Т. 2. - С. 34-36.
161. И.П. Лось, Н.К. Шандала, Г.М. Гулько и др. /Радиационная обстановка // Медицинские последствия аварии на Чернобыльской атомной станции: Информационный бюллетень. - Киев: ВНЦРМ АМН СССР, 1991. - Разд. 1. - С. 9 - 68.
162. Лось И.П., 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.
163. Н.Н. Ковалюх и В.В.Скрипкин. Химическая подготовка образцов для радиоэкологических исследований радиоуглерода. // Радиоизотопы в экологических исследованиях. Киев: Академия наук Украины. Институт геохимии и физики минералов. Отделение радиогеохимии окружающей среды. Киев. 1992. Наукова думка. С. 93-101.
164. Бондаренко О.А., А.В.Зеленский, В.С.Репин. / Пути совершенствования и развития использования ^{90}Sr β -спектрометрического метода после аварии на Чернобыльской АЭС // Проблемы радиационной медицины. Республиканский межведомственный сборник. Вып. 5. Киев. 1993.- С. 44-47.
165. Schonhofer F. Determination of Sr-90 by ultra low level liquid scintillation counting: Inform. letter / Wallac Oy. - Turku: Finland, 1989. - 5 p.

166. П. с. Кл. G 01 T 1/16 Способ определения ^{90}Sr в жидких пробах / М.Г.Бузынный, А.В.Зеленский, И.П.Лось (Украина).-N 4920561/25 (24167) (109267) Заявлено 21 марта 1991; Опубликовано 30.10.91 - 23 с.
167. П. с. Кл. G 01 N 33/00 Консервант проб молока для исследований на содержание радионуклидов/М.Г.Бузынный, А.В.Зеленский, И.П.Лось (Украина).-N 4903491/13 (109267) Заявлено 11.11.90 г.; Опубликовано 30.10.91 - 5 с.
168. Бузынный М. Г. Мониторинг ^{90}Sr в окружающей среде: метод жидкостно-сцинтилляционной β -спектрометрии, возможности и перспективы. //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.37.
169. Бузынный М.Г., А.В.Зеленский, И.П.Лось. Использование жидкостного α -/ β -спектрометра для спектрометрических измерений ^{90}Sr в воде. // Материалы конференции Чернобыль'92. Зеленый Мыс. Май 1992г. / Доклады 3-го Всесоюзного совещания по итогам ликвидации последствий аварии на Чернобыльской АЭС. Радиационный мониторинг. т1.ч.2. С.361-371.
170. Бузынный М.Г., А.В.Зеленский, И.П.Лось и др. Мониторинг ^{90}Sr в верховье р.Днепр. // Проблемы радиационной медицины. Республиканский межведомственный сборник. Вып. 5. Киев. 1993.-С.60-67.
171. 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. Edited by J.E. Noakes, Franz Schonhofer & H.A. Polach. International Conference on Advances in Liquid Scintillation Spectrometry 1992. (1992: Vienna, Austria). Radiocarbon 1993. P.439-446.
172. Санин Е.В., Лось И.П., Бузынный М.Г. Мониторинг трития на Украине // Актуальные проблемы ликвидации последствий аварии на Чернобыльской АЭС: Тез.докл. Украинской науч.-прак.конф., Киев, 21-23 апр. 1992 г. - Киев, 1992. - С.195.

173. Машинные методы математических вычислений. Дж. Форсайт, М.Мальком, К. Моулер. "Мир". М. 1980. 367 с.
174. PC-Matlab for MS-DOS Personal Computers. Version 3.2-PC. June 8, 1987. by Cleve Moler, John Little and Steve Bangert. Users Guide. 120 p.
175. Бета - и антинейтринное излучение радиоактивных ядер: Справочник / В.Г.Алексакин, С.В.Родичев, П.М.Рубцов, П.А.Ружанский, Ф.Е.Чукреев. - М.: Энергоатомиздат, 1989. 800 с.
176. Немец.О.Ф., Гофман Ю.В. Справочник по ядерной физике. Киев. "Наукова думка". 1975. 427 с.
177. Радиоэкологические последствия чернобыльской аварии./Под ред. И.И.Крышева.-М.: ИАЭ им. И.В.Курчатова, 1991г.- 190 с.
178. Виноградов А.П., Девирц Л.Р., Добкина Э.И.: Стратосферные концентрации ^{14}C в 1967-1969 гг., Доклады АН СССР, 1972, т.205, N 4, С.824-826.
179. Расценки Минчернобыля Украины на проведение работ по уточнению радиационной обстановки вследствие аварии на Чернобыльской АЭС. 1992 1 марта 1992. 3с.
180. Michael Buzinny, Nikolaj Kovaluch, Ilja Likhtarjov, Ivan Los', Valerij Nesvetajlo. M. F.Pazdur, Emlen Sobotovich, Vadim Skripkin. CE-09: Ecological chronology of nuclear fuel cycle sites. 15th International Radiocarbon Conference. Glasgow. 15-19 August 1994. Abstract. Book of abstracts. 115 p.
181. Michael Buzinny, Ivan Los', Nikolay Tsigankov and Sergej Soroka. Monitoring of ^{241}Pu in soil of Ukraine. Abstract. LSC-94 - Advances in Liquid Scintillation counting. Glasgow. 8-12 August 1994. Book of abstracts. LSC-94/12. 67 p.