

Сравнение сцинтилляционных коктейлей «Ultima Gold AB» и «ЛИРА-1» при жидкосцинтилляционной спектрометрии радионуклида тритий

В статье представлены результаты сравнительного исследования счетных характеристик зарубежного жидкосцинтилляционного коктейля «Ultima Gold AB» фирмы Perkin Elmer (США) и отечественного сцинтилляционного коктейля «ЛИРА-1», разработанного специалистами ВНИИРАЭ (г. Обнинск). Показана возможность использования сцинтилляционного коктейля «ЛИРА-1» в качестве аналога коктейля «Ultima Gold AB» при проведении жидкостной сцинтилляционной спектрометрии радионуклида тритий.

Н.А.Еремина¹, С.Н.Лукашенко²,
А.В.Михайлов², Д.А.Кондаков²,
В.Г.Барчуков¹, П.П.Сурин¹,
Д.И.Кабанов¹

¹ ФГБУ ГНЦ ФМБЦ им. А.И. Бурназяна ФМБА России, г. Москва

² ФГБУ «Всероссийский научно-исследовательский институт радиологии и агроэкологии НИЦ «Курчатовский институт», г. Обнинск

Ключевые слова:

сцинтилляционный коктейль,
жидкосцинтилляционная спектрометрия,
импортозамещение, радиационная
безопасность, тритий, радиоуглерод.

Актуальность работы

Тритий относится к числу важнейших дозообразующих радионуклидов, характеризующих и определяющих радиационную обстановку в районе расположения предприятий ядерного топливного цикла [1]. Важность тритиевой проблемы для атомной энергетики подтверждает наличие отдельного документа [2], посвященного обращению с отходами, содержащими этот радионуклид. В данном документе особо отмечено такое свойство трития как сложность детектирования и анализа его содержания в различных средах. Кроме того, важность тритиевой проблемы обусловлена также высокой миграционной способностью данного радионуклида и невозможностью удерживать его очистными

барьерами [3-6]. При этом за счет длительного периода полураспада (12,3 лет) тритий накапливается в объектах окружающей среды, органах и тканях живых организмов и таким образом является глобальным загрязнителем природных компонентов [7,8].

После поступления в организм человека с воздухом, водой или пищевыми продуктами тритий распределяется в водной фазе организма, активно включается в состав биологической ткани, становясь внутренним источником ионизирующего излучения и вызывая мутагенные нарушения за счет бета-излучения средней энергии 5,7 кэВ. В отличие от внешнего проникающего излучения, такого как рентгеновское и гамма-излучение, внутреннее облучение, обусловленное тритием, в зависимости от химических и биохимических структур, в которые он включен, а также от того, в каких формах он находится (оксид трития или органические соединения) в клетке, может привести к неоднородному (гетерогенному) распределению дозы. Это существенно повышает его радиационную опасность [9].

Поэтому актуальной является задача контроля за образованием трития при работе предприятий атомной отрасли, за содержанием трития в выбросах и сбросах АЭС, а также за последующим распределением этого радионуклида в окружающей среде.

Эффективным способом измерения активности трития в различных пробах является метод жидкосцинтилляционной спектроскопии, основанный на определении числа и яркости световых вспышек, возбуждаемых ионизирующим излучением при прохождении через специальную сцинтиллирующую среду (коктейль). Лидером рынка и основным производителем сцинтилляционных коктейлей на сегодняшний день является компания Perkin Elmer (США): «Ultima Gold AB», «Ultima Gold LLT», «Ultima Gold XR», «Optiphase HiSafe 3», «Flo-Scint» и др. Единственные

отечественные сцинтилляционные коктейли, которые производились еще во времена СССР, ЖС-7 и ЖС-8 на основе диоксана в качестве растворителя, обладали низкой совместимостью с водой (~10:2) и являлись сильными канцерогенами из-за наличия в составе коктейля довольно высоких концентраций нафталина [10].

Сцинтилляционные коктейли серии «Ultima Gold» фирмы Perkin Elmer активно используются и специалистами лаборатории «Радиационной безопасности персонала» ФГБУ ГНЦ ФМБЦ им. А.И. Бурназяна ФМБА России для проведения измерения активности бета-излучающих радионуклидов тритий и углерод-14 в различных пробах: пищевые продукты, пробы воздуха, пробы поверхностных вод окружающей среды в районе расположения предприятий атомной отрасли, а также водные пробы и пробы воздуха из технологических систем и помещений предприятий атомной отрасли [11,12].

Однако в связи со сложившейся геополитической обстановкой в мире и действующими в отношении Российской Федерации санкциями сильно усложнилась возможность закупки и поставки сцинтилляционных коктейлей фирмы Perkin Elmer. Поэтому на сегодняшний день особенную актуальность приобретает работа по созданию эффективных отечественных сцинтилляционных коктейлей с удовлетворительными счетными характеристиками. В связи с этим специалистами НИЦ «Курчатовский институт» – ВНИИРАЭ (г. Обнинск) и ФГБУ ГНЦ ФМБЦ им. А.И.Бурназяна ФМБА России в настоящее время проводятся экспериментальные исследования по разработке отечественных сцинтилляционных коктейлей для измерения активности радионуклидов тритий и радиоуглерод, а также исследования по сравнению счетных характеристик разрабатываемых сцинтилляционных коктейлей и их зарубежных аналогов.

Объект исследования

В ходе настоящего исследования сравнивались два сцинтилляционных коктейля: зарубежный «Ultima Gold AB» (Perkin Elmer, США), на котором откалибровано большинство ЖС-спектрометров в РФ [6], и отечественный аналог «ЛИРА-1», разработанный специалистами НИЦ «Курчатовский институт» – ВНИИРАЭ (патент РФ на изобретение № 2815227, МПК-G01T 1/204, G09K 11/06, от 12.05.2023 г. [13]).

Сцинтиллирующая среда (коктейль) обычно имеет основу из растворителя, содержащего органические ароматические молекулы, например, псевдокумол, толуол, ксилол (ароматические углеводороды). В жидких сцинтилляторах энергия возбуждения проявляется в форме кинетической энергии ионизирующей частицы. Все первичные возбуждения приводят к образованию возбужденных молекул растворителя [14]. Чтобы избежать поглощения испущенных фотонов, в растворитель обычно добавляют сцинтилляционные добавки, которые поглощают излучение основного сцинтиллятора и излучают свет в более длинноволновом диапазоне. Это делает сцинтилляционную среду более прозрачной для фотонов, повышая их способность перемещаться на большие расстояния, что позволяет детектировать их с помощью фотоэлектронных умножителей, между которыми помещают счетный образец со сцинтилляционной средой.

Табл.1. Примерное процентное соотношение компонентов в составе сцинтилляционного коктейля «ЛИРА-1» [13].

| Вещество | мас. % |
|---|-----------|
| Ксилол | 40–55 |
| ДБГ (бутилцеллозольв) | 10–20 |
| Неонол (оксиэтилированный нонилфенол) | 20–50 |
| Нафталин | 0,5–2,5 |
| РРО (2,5-дифенилоксазол) | 0,05–5 |
| РОРОР (1,4-ди-(2-(5-фенил-оксазолил))-бензол) | 0,005–0,1 |

Также необходимым компонентом сцинтилляционных коктейлей являются поверхностно-активные вещества, которые обеспечивают смешиваемость водной пробы с коктейлем.

Как правило, основой сцинтилляционных коктейлей «Ultima Gold» служат диизопропилнафталин, линейный алкилбензол или псевдокумол (1,2,4-триметилбензол). Согласно паспорту безопасности [15], компонентами сцинтилляционного коктейля «Ultima Gold AB» являются: изомеры диизопропилнафталина 40–60 мас.%, полигликолевый эфир алкилфенола 20–40 мас.%, 2-2(бутоксизэтокси) этанол мас.10–20%, алкифенольный полигликолевый эфир 2,5–10 мас.%, фосфат нонилфенилового полиоксиэтиленового эфира ≤ 2,5 мас.%, 2,5 дифенилоксазол (РРО) ≤ 2,5 мас.%, 1,4-Бис (2-метилстирил) бензол ≤ 2,5 мас.%.

Сцинтилляционный коктейль «ЛИРА-1» содержит в качестве ароматического растворителя ксилол, в качестве поверхностно-активного вещества – неонол (оксиэтилированный моноалкилфенол), а в качестве добавок для повышения световой отдачи нафталина содержит два сцинтиллятора – 2,5-дифенилоксазол (РРО) и 1,4-ди-[2-(5-фенил)-оксазолил]бензол (РОРОР), один из которых является первичным, а другой вторичным. Дополнительно в состав вводят бутилцеллозольв при соотношении компонентов, указанных в табл.1. При этом все ингредиенты сцинтилляционного коктейля «ЛИРА-1» представлены на рынке РФ. Себестоимость реагентов для производства 1 литра коктейля «ЛИРА-1» составляет около 1000 рублей.

Данное сравнительное исследование проводилось на жидкосцинтилляционном спектрометре Tri-Carb 3180 TR/SL на базе ФГБУ ГНЦ ФМБЦ им. А.И. Бурназяна ФМБА России. В качестве исследуемых параметров использовались следующие показатели:

- смешиваемость сцинтилляционного коктейля (приводит ли смешивание коктейля с пробой к образованию прозрачного гомогенного счетного образца, пригодного для измерения) с различными типами проб;
- устойчивость сцинтилляционного коктейля к цветовому гашению – определение объема гасящего агента, при добавлении которого в счетный образец, эффективность счета (регистрации сцинтилляций в образце) спектрометра уменьшается в два раза;
- параметр гашения tSIE (transformed Spectral Index of External Standard), отражающий световой выход сцинтилляции и величину аналитического сигнала в диапазоне энергий бета-частиц трития, связанных с энергетическим распределением фотонов в комптоновском спектре, возбуждаемом в препарате внешним γ -излучением (в спектрометре Tri-Carb 3180 TR/SL в качестве внешнего стандарта используется ^{133}Ba);
- скорость счета CPM (count per minute – число импульсов в минуту, которые улавливает спектрометр) в энергетическом диапазоне трития (0–18,6 кэВ).

Кроме того, в ходе данного исследования проведено сравнение результатов измерения счетных образцов, подготовленных на основе сцинтилляционных коктейлей «Ultima Gold AB» и «ЛИРА-1», с добавленными в них аликвотами растворов трития с известными активностями трех порядков.

Проверка смешиваемости сцинтилляционных коктейлей с различными типами проб

Первым этапом сравнительного исследования являлась проверка смешиваемости коктейля «ЛИРА-1» с различными типами проб и сравнение полученных результатов с результатами смешивания применяемого в настоящее время коктейля «Ultima Gold AB» с теми же пробами. Смешивание проводилось

в соотношениях проба/коктейль, равных 1/10 мл и 5/10 мл. Объем сцинтилляционного коктейля 10 мл используется исходя из того, что для низкоэнергетического бета-излучателя трития достаточно небольшого количества сцинтилляционной среды, чтобы преобразовать его энергию в сцинтилляцию, так как пробег бета-частиц трития лежит в диапазоне от нескольких микрометров до нескольких миллиметров.

После смешивания счетные образцы выдерживались в течение суток, периодически проверялось их состояние. Температура воздуха во время наблюдений составляла от 23 °С до 26 °С. На рис. 1–4 представлен внешний вид счетных образцов после смешивания сцинтилляционных коктейлей «Ultima Gold AB» и «ЛИРА-1» с некоторыми типами проб: раствор 0,1 М HNO_3 , раствор метоксипропиламина 95%, раствор 1 М NaOH , раствор моноэтаноламина 100%.

В образцы, которые после смешивания стали мутными, добавляли 1 мл солубилизатора Soluene-350. Это сильная органическая основа, содержащая толуол. Он позволяет солубилизовать водные гомогенаты тканей, белки, нуклеотиды, растительный материал и другие вещества в раствор, совместимый с жидкими сцинтилляционными коктейлями. Мутные (непрозрачные) образцы, подготовленные на основе коктейля «Ultima Gold AB», после добавления солубилизатора Soluene-350 становятся прозрачными. Данный способ был проверен для помутневших счетных образцов, подготовленных на основе коктейля «ЛИРА-1». Результаты проверки смешиваемости сцинтилляционных коктейлей с различными типами проб представлены в табл. 2.

Как видно из табл. 2, результатом смешивания различных типов проб с коктейлем «ЛИРА-1» становится гомогенный прозрачный счетный образец в большем числе случаев (83% при соотношении 1/10 мл и 50% при

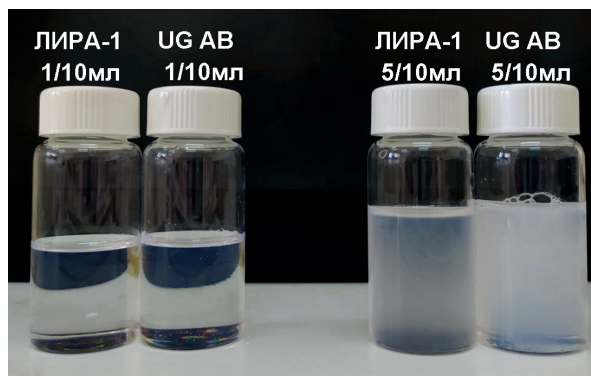


Рис.1. Раствор 0,1 М HNO₃.

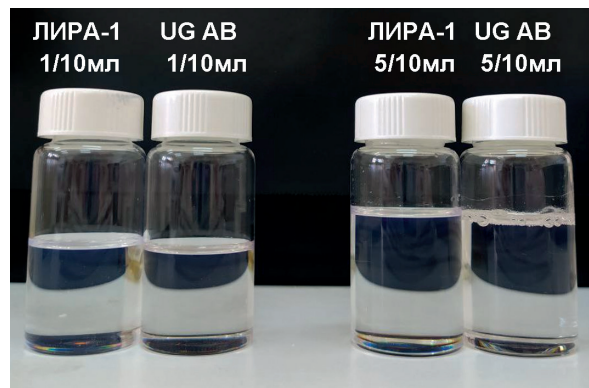


Рис.2. Раствор метоксипропиламина 95%.

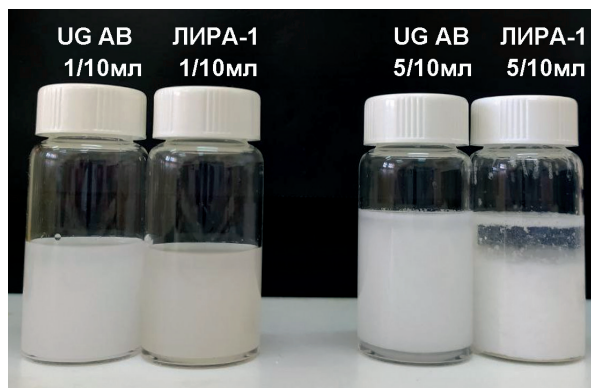


Рис.3. Раствор 1 М NaOH.

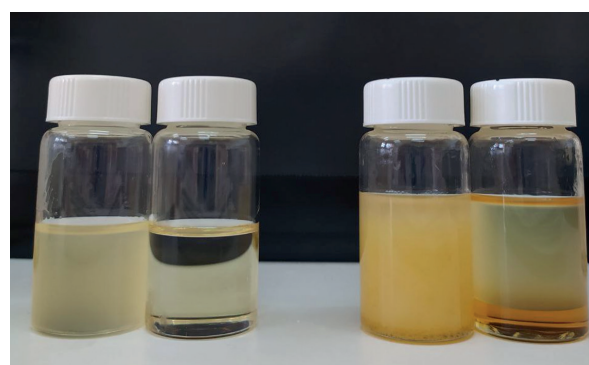


Рис.4. Раствор моноэтаноламина 100%.

соотношении 5/10 мл), чем при смешивании проб с коктейлем «Ultima Gold AB» (67% при соотношении 1/10 мл и 17% при соотношении 5/10 мл). И для «Ultima Gold AB», и для «ЛИРА-1» в случаях, когда счетные образцы мутнеют, добавление 1 мл солиubilизатора Soluene-350 делает их прозрачными. Исключением стали счетные образцы с агрессивной пробой 1М NaOH и со 100% раствором моноэтаноламина, который приводит к сильному расслоению при соотношении 5/10 мл (рис. 3–4).

Сравнение устойчивости сцинтилляционных коктейлей к гашению и характеристик при построении кривых гашения

В сцинтилляционных коктейлях могут происходить процессы, приводящие к снижению доли энергии ионизирующей частицы, затрачиваемой на сам сцинтилляционный процесс, т. е. к уменьшению квантового выхода флу-

оресценции – гашению. В результате генерируется меньшее количество фотонов на кЭВ энергии бета-частицы, что приводит к снижению сцинтилляционной интенсивности, воспринимаемой фотоумножительными трубками жидкостного сцинтилляционного счетчика и, как правило, снижается эффективность счета. Существуют различные типы гашения: химическое, физическое, цветное, оптическое.

Способом оценки устойчивости сцинтилляционного коктейля к цветному гашению является определение объема гасителя, при добавлении которого в счетный образец эффективность счета спектрометра уменьшается в два раза. Оценка устойчивости сцинтилляционных коктейлей к цветному гашению обусловлена тем, что одним из типов проб, измеряемых специалистами ФМБЦ им. А.И. Бурназяна, являются пробы мочи работников атомной промышленности, обладающие высокой

Табл.2. Результаты проверки смешивания сцинтилляционных коктейлей с различными типами проб.

| Тип пробы | Соотношение проба/ЖСК, мл | Физическое состояние счетного образца с «Ultima Gold AB» | Физическое состояние счетного образца с «ЛИРА-1» |
|---|---------------------------|---|---|
| Дистиллированная вода | 1/10 | Гомогенный, прозрачный | Гомогенный, прозрачный |
| Дистиллированная вода | 5/10 | Гомогенный, мутный (после добавления 1 мл Soluene-350 – гомогенный, прозрачный) | Гомогенный, прозрачный |
| Конденсат воздуха помещения тритиевого производства | 1/10 | Гомогенный, прозрачный | Гомогенный, прозрачный |
| Конденсат воздуха помещения тритиевого производства | 5/10 | Гомогенный, мутный (после добавления 1 мл Soluene-350 – гомогенный, прозрачный) | Гомогенный, прозрачный |
| Раствор 0,1 М HNO ₃ | 1/10 | Гомогенный, прозрачный | Гомогенный, прозрачный |
| Раствор 0,1 М HNO ₃ | 5/10 | Расслоение, мутный (после добавления 1 мл Soluene-350 – гомогенный, прозрачный) | Гомогенный, мутный (после добавления 1 мл Soluene-350 гомогенный, прозрачный) |
| Раствор 1 М NaOH | 1/10 | Гомогенный, мутный (после добавления 1 мл Soluene-350 – без изменения) | Гомогенный, мутный (после добавления 1 мл Soluene-350 без изменения) |
| Раствор 1 М NaOH | 5/10 | Расслоение, мутный (после добавления 1 мл Soluene-350 – без изменения) | Расслоение, мутный (после добавления 1 мл Soluene-350 без изменения) |
| Раствор метоксипропиламина 95% | 1/10 | Гомогенный, прозрачный | Гомогенный, прозрачный |
| Раствор метоксипропиламина 95% | 5/10 | Гомогенный, прозрачный | Гомогенный, прозрачный |
| Раствор моноэтаноламина 100% | 1/10 | Гомогенный, мутный (после добавления 1 мл Soluene-350 – гомогенный, прозрачный) | Гомогенный, прозрачный |
| Раствор моноэтаноламина 100% | 5/10 | Расслоение, мутный (после добавления 1 мл Soluene-350 – без изменения) | Расслоение, мутный (после добавления 1 мл Soluene-350 – без изменения) |

оптической плотностью, что является причиной цветового гашения счетных образцов.

Для проведения исследования по сравнению характеристик счета и устойчивости сцинтилляционных коктейлей «Ultima Gold AB» и «ЛИРА-1» к цветовому гашению были построены 8 кривых гашения спектрометра Tri-Carb 3180 TR/SL для стеклянных и пластиковых виал и с одинаковыми добавленными в набор стандартов гашения аликвотами 1 мл раствора трития с известной активностью 48 Бк/мл. Кривые гашения были построены в двух режимах счета образцов: 4 кривых гашения в режиме счета образцов Normal, подходящем для измерения образцов с активностью ради-

онуклидов более 100 СРМ (~5 Бк/мл) и 4 кривых гашения в режиме счета образцов Low Level, подходящем для высокочувствительных измерений образцов с низкой активностью менее 100 СРМ. Режим Low Level характеризуется более жесткой дискриминацией фона при счете образцов, что позволяет получить более точные результаты при измерении низкоактивных проб и более низкую минимально детектируемую активность (МДА).

Кривые гашения были построены как для стеклянных, так и для пластиковых виал, исходя из того, что эффективность счета радионуклидов в счетных образцах на спектрометре Tri-Carb 3180 TR/SL зависит от типа виал

(стекло или пластик) и типа сцинтилляционного коктейля.

Согласно руководству к спектрометру Tri-Carb 3180 TR/SL [16], корректный выбор виал для измерения проб при низких уровнях активности радионуклидов является очень важным для обеспечения низкого уровня фона и высокой счетной чувствительности образцов. При измерении низких уровней активности радионуклида тритий рекомендуется применять пробирки из стекла с низким содержанием калия (поскольку ^{40}K , содержащийся в стекле, увеличивает фон измерения) или пластиковые виалы.

В настоящем сличительном исследовании использовались два типа виал:

1) виалы объемом 20 см^3 из боросиликатного стекла и с низким содержанием калия (примерно 80% диоксида кремния, 13% оксида бора, 4% оксида натрия или оксида калия и 2–3% оксида алюминия). Стекло предотвращает проникновение растворителей в стенки виал и обеспечивает химическую инертность при отличной видимости.

2) виалы объемом 20 см^3 из первичного полиэтилена, полученного из нефтехимических продуктов, оказывающих минимальное влияние на фон измерений.

Набор стандартов для построения кривой гашения состоит из 10 счетных образцов, каж-

дый из которых содержит одно и то же количество сцинтилляционного коктейля (10 мл) с добавленной одинаковой аликвотой (1 мл) раствора известной активности трития и с добавленными различными аликвотами гасителя (в данном исследовании это 0,1% раствор метилоранжа). Аликвоты гасителя, добавленные в стандарты гашения, указаны в табл.3.

Сравнение характеристик счета кривых гашения, построенных для наборов стандартов гашения на основе исследуемых сцинтилляционных коктейлей, с различным материалом виал, в двух режимах счета спектрометра Tri-Carb 3180 TR/SL представлено в табл.4.

Из результатов, представленных в табл.4, можно сделать следующие выводы.

1. Устойчивость к гашению коктейля «ЛИРА-1» оказалась на 10–23% ниже, чем у коктейля «Ultima Gold AB». При этом «ЛИРА-1» обладает более высоким (на 30% выше, чем у «Ultima Gold AB») начальным гашением, обусловленным, по всей видимости, самим составом коктейля (химическое гашение). Устойчивость к гашению сцинтилляционных коктейлей «Ultima Gold AB» и «ЛИРА-1» при счете в режиме Normal оказалась на 3–6% выше, чем при счете в режиме Low Level. Это обусловлено более высокой чувствительностью измерения стандартов гашения при счете в режиме Low Level.

Наблюдается зависимость устойчивости сцинтилляционных коктейлей к гашению от типа виал: при использовании стеклянных виал устойчивость коктейлей к гашению оказалась на 7–10% выше, чем при использовании пластиковых виал. Это, вероятно, обусловлено так называемым «эффектом стены», имеющим значение при использовании пластиковых виал. Данный эффект заключается в диффузии счетного образца во внутреннюю поверхность виал, что препятствует либо детектированию сцинтилляций, либо тщательному перемешиванию органической и водной

Табл.3. Аликвоты раствора метилоранжа, добавленные в стандарты гашения.

| Номер стандарта | Добавка метилоранжа, мкл |
|-----------------|--------------------------|
| 1 | 0 |
| 2 | 1 |
| 3 | 1,5 |
| 4 | 3 |
| 5 | 5 |
| 6 | 10 |
| 7 | 30 |
| 8 | 70 |
| 9 | 120 |
| 10 | 250 |

Табл.4. Характеристики кривых гашения для сцинтилляционных коктейлей «Ultima Gold AB» и «ЛИРА-1».

| Режим счета | ЖСК | Материал виал | Эфф-ть, % | 2S% | tSIE | Объем гасителя, при котором эфф-ть счета снижается вдвое |
|-------------|----------------|---------------|-----------|-----|------|--|
| Normal | Ultima Gold AB | стекло | 35 | 1,1 | 650 | ~25 мкл |
| | | пластик | 36 | 1,1 | 672 | ~20 мкл |
| Normal | ЛИРА-1 | стекло | 26 | 1,3 | 443 | ~20 мкл |
| | | пластик | 28 | 1,3 | 507 | ~18 мкл |
| Low Level | Ultima Gold AB | стекло | 28 | 1,3 | 670 | ~28 мкл |
| | | пластик | 29 | 1,3 | 666 | ~21,5 мкл |
| | ЛИРА -1 | стекло | 23 | 1,4 | 468 | ~21,5 мкл |
| | | пластик | 23 | 1,4 | 438 | ~18 мкл |

Примечание: 2S% – неопределенность значения суммарного уровня радиоактивности, выраженная в процентах

фаз, необходимому для эффективной передачи энергии от ионизирующих частиц молекулам сцинтиллятора. Диффузия сцинтилляционного коктейля в стенки пластиковой виалы вносит вклад в комптоновский спектр внешнего источника, что влияет на эффективность и методы коррекции гашения, основанные на внешнем стандарте (tSIE). Энергетический спектр искажается добавлением этого эффекта в области низких энергий (до 40 кэВ).

2. Эффективность счета для наборов стандартов гашения, подготовленных на основе сцинтилляционного коктейля «ЛИРА-1», оказалась в 1,2÷1,3 раза ниже, чем эффективность счета для набора стандартов гашения, подготовленных на основе коктейля «Ultima Gold AB».

Эффективность счета при использовании стеклянных виал и для сцинтилляционного коктейля «Ultima Gold AB», и для «ЛИРА-1» оказалась в среднем на 3% ниже, чем при использовании пластиковых виал. Это, вероятно, обусловлено тем, что присутствие ^{40}K в стеклянных виалах увеличивает фон измерений, тем самым приводя к снижению эффективности подсчета сцинтилляций. Эти события имеют равномерное распределение в широком диапазоне энергий. При этом вклад материала пластиковых виал в фон измерений минимален.

3. Среднеквадратичное отклонение 2S% при измерении стандартов гашения, подготовленных на основе сцинтилляционного коктейля «ЛИРА-1», оказалось больше на 7–15%, чем при измерении образцов, подготовленных на основе сцинтилляционного коктейля «Ultima Gold AB». Это обусловлено большим гашением в стандартах, подготовленных на основе коктейля «ЛИРА-1», влияющем на эффективность счета.

Сравнение параметра гашения tSIE и характеристик счета при измерении счетных образцов на основе сцинтилляционных коктейлей «Ultima Gold AB» и «ЛИРА-1»

Для проведения сравнительного исследования параметра гашения tSIE, скорости счета (СРМ) и измерения активности трития были подготовлены счетные образцы (в конфигурации 10 мл коктейля + 1 мл пробы) с добавленными аликвотами растворов трития с известными активностями трех порядков. Всего было подготовлено 60 счетных образцов. Значения активности растворов трития, добавленных в счетные образцы, а также количество счетных образцов для каждого сцинтилляционного коктейля представлены в табл.5.

Табл.5. Количество подготовленных счетных образцов для каждого сцинтилляционного коктейля.

| Активность, Бк/мл | Количество счетных образцов | |
|-------------------|-----------------------------|----------------------|
| | Ultima Gold AB | ЛИРА-1 |
| 0,048 | 5 стекло + 5 пластик | 5 стекло + 5 пластик |
| 0,96 | 5 стекло + 5 пластик | 5 стекло + 5 пластик |
| 48,2 | 5 стекло + 5 пластик | 5 стекло + 5 пластик |

Счетные образцы для каждого сцинтилляционного коктейля были подготовлены как в стеклянных, так и в пластиковых виалах для подбора наилучшей конфигурации счетного образца для разных порядков активности трития и типа сцинтилляционного коктейля.

Результаты измерения параметра гашения tSIE, скорости счета и активности трития в счетных образцах представлены в табл.6.

Из табл.6 видно, что при измерении образцов с низкими активностями трития 0,048 Бк/мл и 0,96 Бк/мл результаты (активность и, соответственно, значения СРМ) для стеклянных виал завышены и для «Ultima Gold AB», и для «ЛИРА-1», что обусловлено вкладом ⁴⁰К, входящего в состав стеклянных виал, в фоновые подсчеты. В связи с этим

не рекомендуется использовать стеклянные виалы при измерении низкоактивных проб (от 1 Бк/мл и ниже). Результаты измерений известной активности трития 0,048 Бк/мл и 0,96 Бк/мл в счетных образцах в пласти-

ковых виалах и для «Ultima Gold AB», и для «ЛИРА-1» совпадают в пределах погрешности со значениями измеряемой активности. При этом результаты измерений для «Ultima Gold AB» и для «ЛИРА-1» совпадают в пределах погрешности (погрешности рассчитаны с использованием коэффициента Стьюдента при малом числе измерений $n < 10$). При измерении образцов с активностью трития 48,2 Бк/мл значения СРМ при использовании стеклянных виал оказались ниже, чем при использовании пластиковых: для «Ultima Gold AB» на 2,6%, а для «ЛИРА-1» на 2,4%. Значения СРМ при измерении счетных образцов с коктейлем «ЛИРА-1» при использовании как стеклянных, так и пластиковых виал, оказались меньше на 23%, чем значения СРМ при измерении

Табл.6. Счетные характеристики измерения трития в счетных образцах на основе коктейлей «Ultima Gold AB» и «ЛИРА-1».

| ЖСК | Параметр счета | Добавленная активность/материал виал | | | | | |
|---------------------------------|-----------------|--------------------------------------|-------------|------------|------------|------------|-----------|
| | | 0,048 Бк/мл | | 0,96 Бк/мл | | 48,2 Бк/мл | |
| | | стекло | пластик | стекло | пластик | стекло | пластик |
| Ultima Gold AB | Актив-ть, Бк/мл | 0,098±0,049 | 0,036±0,015 | 0,98±0,093 | 0,87±0,04 | 48,3±0,4 | 46,7±1,1 |
| | Eff, % | 29±5 | 28,6±0,2 | 27,6±0,2 | 28,5±0,2 | 34,8±0,6 | 37,0±0,3 |
| | 2S% | 40±7 | 43,6±7 | 15,2±0,6 | 15,4±0,3 | 1,99±0,02 | 1,96±0,02 |
| | tSIE | 651±3 | 678±3 | 652±3 | 675±3 | 653±6 | 683±5 |
| | СРМ | 1,6±0,7 | 1 | 16,4±1,4 | 14,8±1,0 | 1013±4 | 1041±16 |
| ЛИРА-1 | Актив-ть, Бк/мл | 0,068±0,06 | 0,047±0,032 | 0,98±0,1 | 0,93±0,093 | 43,2±1,3 | 47,9±0,5 |
| | Eff, % | 23,5±0,2 | 23,5±0,4 | 23,5±0,3 | 24,1±0,3 | 29,9±0,6 | 27,5±0,5 |
| | 2S% | 37±5 | 39±3 | 16±0,7 | 16±0,7 | 2,28±0,02 | 2,24±0,01 |
| | tSIE | 500±10 | 471±14 | 498±14 | 491±10 | 484±6 | 492±7 |
| | СРМ | 1,2±0,7 | 1 | 14±1,7 | 13,6±1,1 | 774±13 | 793±10 |
| tSIE Ultima Gold AB/tSIE ЛИРА-1 | | 1,3 | 1,4 | 1,3 | 1,4 | 1,3 | 1,4 |
| СРМ Ultima Gold AB/СРМ ЛИРА-1 | | 1,3 | 1 | 1 | 1,1 | 1,3 | 1,3 |

счетных образцов на основе «Ultima Gold АВ», что обусловлено более высоким уровнем начального гашения сцинтилляционного коктейля «ЛИРА-1». При измерении счетных образцов на основе коктейля «Ultima Gold АВ» разница в значениях активности трития в образцах, подготовленных в стеклянных и в пластиковых виалах, составила 2%. В то время, как для коктейля «ЛИРА-1» значения активности трития в образцах в пластиковых виалах оказались на 6–10% выше соответствующих значений для стеклянных виал.

Из табл.6 также видно, что результаты измерения активности раствора трития в счетных образцах, подготовленных на основе сцинтилляционного коктейля «Ultima Gold АВ» и коктейля «ЛИРА-1», совпадают в пределах погрешности в 92% измерений.

Кроме того, в ходе данного сравнительного исследования обнаружена летучесть компонентов сцинтилляционного коктейля «ЛИРА-1» из плотно закрытых пластиковых виал. В результате этого объем счетного образца начинает уменьшаться уже через 2–3 дня, через неделю появляется резкий запах, а спустя два месяца объем счетного образца уменьшился практически вдвое. При этом параметр гашения tSIE существенно зависит от объема сцинтиллятора [17], а также от упомянутого выше «эффекта стены», наблюдаемого при использовании пластиковых виал. Изменения параметров счета с момента приготовления счетного образца на основе сцинтилляционного коктейля «ЛИРА-1», обусловленные летучестью компонентов данного коктейля, представлены

в табл.7. В связи с данным эффектом срок хранения счетных образцов, подготовленных на основе коктейля «ЛИРА-1», ограничен.

Для счетных образцов, подготовленных на основе коктейля «ЛИРА-1» в стеклянных виалах, а также для счетных образцов, подготовленных на основе коктейля «Ultima Gold АВ» в стеклянных и пластиковых виалах, данный эффект не наблюдался.

Из табл.6 видно, что параметр гашения (tSIE) счетных образцов на основе коктейля «ЛИРА-1» также ниже, чем у образцов на основе «Ultima Gold АВ», что говорит о более высоком уровне гашения образцов на основе коктейля «ЛИРА-1», обусловленным, вероятно, самим составом коктейля (химическое гашение). При использовании стеклянных виал отношение значений параметра tSIE образцов с «Ultima Gold АВ» к значениям параметра tSIE образцов с «ЛИРА-1» оказалось равно 1,3 для каждого порядка известной добавленной активности, а при использовании пластиковых виал – 1,4 для каждого порядка активности. Это, вероятно, говорит о том, что «эффект стены» для пластиковых виал оказывается более существенным при использовании сцинтилляционного коктейля «ЛИРА-1» в связи с сильной летучестью его компонентов.

Таким образом, в ходе проведенного сравнительного исследования сцинтилляционных коктейлей «Ultima Gold АВ» и «ЛИРА-1» показано:

1. Сцинтилляционный коктейль «ЛИРА-1» продемонстрировал лучшую смешиваемость

Табл.7. Динамика изменения параметров счета с момента приготовления счетного образца на основе сцинтилляционного коктейля «ЛИРА-1».

| Параметр | Изменение величины параметра счета с момента подготовки счетного образца | | | |
|-----------------------|--|----------|----------|----------|
| | 1 неделя | 2 недели | 3 недели | 2 месяца |
| Скорость счета СРМ | ↓ на 7% | ↓ на 14% | ↓ на 20% | ↓ на 49% |
| Параметр гашения tSIE | ↓ на 10% | ↓ на 21% | ↓ на 32% | ↓ на 47% |
| 2S% | ↑ на 4% | ↑ на 7% | ↑ на 11% | ↑ на 54% |

с различными типами проб, чем сцинтилляционный коктейль «Ultima Gold AB».

2. Устойчивость к гашению коктейля «ЛИРА-1» оказалась на 10–23% ниже, чем у коктейля «Ultima Gold AB». При этом «ЛИРА-1» обладает более высоким (на 30% выше, чем у «Ultima Gold AB») начальным гашением, обусловленным, по всей видимости, самим составом коктейля (химическое гашение).

3. Эффективность счета для наборов стандартов гашения, подготовленных на основе сцинтилляционного коктейля «ЛИРА-1», оказалась в 1,2–1,3 раза ниже, чем эффективность счета для набора стандартов гашения, подготовленных на основе коктейля «Ultima Gold AB».

4. Значения СРМ при измерении счетных образцов с коктейлем «ЛИРА-1» при использовании как стеклянных, так и пластиковых виал, оказались меньше на 23%, чем значения СРМ при измерении счетных образцов на основе «Ultima Gold AB», что обусловлено более высоким уровнем начального химического гашения сцинтилляционного коктейля «ЛИРА-1».

5. Результаты измерения активности растворов трития в счетных образцах, подготовленных на основе сцинтилляционных коктейлей «Ultima Gold AB» и «ЛИРА-1», совпадают в пределах погрешности в 92% измерений. При этом для образцов с низкими активностями трития 0,048 Бк/мл и 0,96 Бк/мл результаты измерений (активность и, соответственно, значения СРМ) для стеклянных виал

завышены и для «Ultima Gold AB», и для «ЛИРА-1», что обусловлено вкладом ^{40}K , входящего в состав стеклянных виал, в фоновые подсчеты.

Заключение

В результате проведенного сравнительного исследования сцинтилляционного коктейля «Ultima Gold AB» фирмы Perkin Elmer (США) и разработанного отечественного коктейля «ЛИРА-1» (РФ) была показана возможность использования коктейля «ЛИРА-1» в качестве аналога коктейля «Ultima Gold AB» при измерении радионуклида тритий методом жидкосцинтилляционной спектрометрии.

Однако в ходе исследования была обнаружена летучесть компонентов сцинтилляционного коктейля «ЛИРА-1» из пластиковых виал. В связи с этим, счетные образцы на основе коктейля «ЛИРА-1» в пластиковых виалах рекомендуется измерять в течение первых двух–трех суток после их подготовки. Стеклянные виалы рекомендуется использовать для измерения счетных образцов на основе «ЛИРА-1» с активностью трития не ниже 1 Бк/мл, поскольку ^{40}K , содержащийся в стекле, увеличивает фон измерения.

Экспериментальные исследования отечественного сцинтилляционного коктейля «ЛИРА-1» будут продолжены изучением возможности его использования в качестве аналогов зарубежных сцинтилляционных коктейлей при измерении радионуклида углерод-14 методом жидкосцинтилляционной спектрометрии.

Литература

1. Екидин А.А., Жуковский М.В., Васянович М.Е. Идентификация основных дозообразующих радионуклидов в выбросах АЭС // Биосферная совместимость: человек, регион, технологии. 2016. № 2 (120). С. 106-108.
2. «Management of Waste Containing Tritium and Carbon-14», *Technical Reports Series*, no. 421. Vienna: International Atomic Energy Agency, 2004.
3. Кочетков О.А., Монастырская С.Г., Кабанов Д.И. Проблемы нормирования техногенного трития (обзор) // Саратовский научно-медицинский журнал. 2013. Т. 9, № 4. С. 815-818.
4. Сурин П.П. Имитационное моделирование миграции и накопления трития на АЭС с ВВЭР. VIII Съезд по радиационным исследованиям. Москва, 12–15 окт. 2021. Дубна: ОИЯИ, 2021, с. 414. ISBN 978-5-9530-0561-6.
5. Барчуков В.Г., Кочетков О.А. Формирование современных подходов к оценке радиационной безопасности трития и его соединений. VIII Съезд по радиационным исследованиям. Москва, 12–15 окт. 2021. Дубна: ОИЯИ, 2021, с. 366. ISBN 978-5-9530-0561-6.
6. Бондаренко Л.Г., Душин В.Н., Садыкин А.Д., Шабалев С.И. Статистическая оценка тритиевой обстановки водных экосистем регионов АЭС // Вопросы радиационной безопасности. 2024. № 1, С. 50-60.
7. Барчуков В.Г., Кочетков О.А., Клочков В.Н., Еремина Н.А., Максимов А.А. Распространение трития и его соединений в окружающей среде при нормальных условиях эксплуатации Калининской АЭС // Медицина труда и промышленная экология. 2021. № 61(9). С. 594-600. URL: <https://doi.org/10.31089/1026-9428-2021-61-9-594-600> (дата обращения: 16.06.2025).
8. Барчуков В.Г., Кочетков О.А., Кабанов Д.И., Максимов А.А., Кузнецова Л.И., Еремина Н.А., Березин С.В. Оценка содержания трития и его соединений в грунте и растительности в регионе АЭС с реакторами типа ВВЭР // Медицина труда и промышленная экология. 2021. № 9(61). С. 605-610.
9. Барчуков В.Г. Органические соединения трития в окружающей среде и организме человека // Медицинская радиология и радиационная безопасность. 2021. Том 66. № 1. С. 13-19.
10. Малиновский С.В., Каширин И.А. Жидкосцинтилляционная спектрометрия. Современное состояние в России // АНРИ. 2024. № 2(117). С. 3-16.
11. Кабанов Д.И., Кочетков О.А., Фомин Г.В., Вайзер В.И., Веселов В.М. К обоснованию контроля органически связанного трития в окружающей среде ядерных установок // Вопросы атомной науки и техники. Серия: термоядерный синтез. 2012. № 1. С. 17-22.
12. Еремина Н.А. Определение удельной активности соединений трития в грунте, растительности и продуктах питания. VIII Съезд по радиационным исследованиям. Москва, 12–15 окт. 2021. Дубна: ОИЯИ, 2021, с. 386. ISBN 978-5-9530-0561-6.
13. Патент № 2815227. Российская Федерация, МПК G01T 1/204 (2006.01), C09K 11/06 (2006.01). Состав жидкого сцинтилляционного коктейля: № 2023112529. Заявл. 12.05.2023. Оpubл. 12.03.2024. Лукашенко С.Н., Михайлов А.В., Томсон А.В., Эдомская М.А.; заявитель НИЦ «Курчатовский институт», ВНИИРАЭ. Информационно-поисковая система ФИПС. URL: <https://fips.ru/iiss/document.xhtml?faces-redirect=true&id=a9f7174b7e380dfa012a0921f3309867> (дата обращения: 13.02.2025).

14. Сидоренков А.Ю. Диссертация на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук. Разработка жидкого сцинтиллятора на основе линейного алкилбензола для экспериментов следующего поколения в астрофизике частиц. ФГБУН «Институт ядерных исследований Российской академии наук». Москва, 2021, 29 с.
15. Safety Data Sheet. URL: https://www.revivity.com/asset-search/sds?part_number=6013301 (дата обращения: 31.01.2025).
16. Руководство пользования прибором Tri-Carb 3180 TR/SL. С. 252. URL: <http://www.kibb.knc.ru/download/Tri-Carb.Руководство%20пользователя.pdf> (дата обращения: 31.01.2025).
17. Алиев Р.А. Автореферат диссертации на соискание ученой степени кандидата химических наук. Определение свинца-210 и ряда природных и техногенных радионуклидов в морских донных осадках. Москва, Московский государственный университет имени М.В. Ломоносова, 2000, 24 с.

Comparison of Scintillation Cocktails «Ultima Gold AB» and «LIRA-1» in Liquid Scintillation Spectrometry of Tritium

Eremina Natalia, Barchukov Valery, Surin Pavel, Kabanov Dmitry (SRC-FMBC, Moscow, Russia)
Lukashenko Sergey, Mikhailov Andrei, Kondakov Denis (NRC «Kurchatov Institute» – RIRAE, Obninsk, Russia)

Abstract. The paper presents the results of a comparative study of the characteristics of a foreign liquid scintillation cocktail «Ultima Gold AB» from Perkin Elmer (USA) and a domestic scintillation cocktail «LIRA-1» developed by VNIIRAE specialists (Obninsk). The possibility of using the «LIRA-1» scintillation cocktail as an analogue of the «Ultima Gold AB» cocktail during liquid scintillation spectrometry of tritium is shown.

Keywords: *scintillation cocktail, liquid scintillation spectrometry, import substitution, radiation safety, tritium, radiocarbon.*

Н.А.Еремина¹ (м.н.с.), С.Н.Лукашенко² (д.б.н., г.н.с.), А.В.Михайлов² (м.н.с.),
Д.А.Кондаков² (лаборант-исследов.), В.Г.Барчуков¹ (профессор, д.мед.н., зав.лаб.),
П.П.Сурин¹ (м.н.с.), Д.И.Кабанов¹ (к.б.н., н.с.)

¹ ФГБУ ГНЦ ФМБЦ им. А.И. Бурназяна ФМБА России, г. Москва

² ФГБУ «Всероссийский научно-исследовательский институт радиологии и агроэкологии
НИЦ «Курчатовский институт», г. Обнинск

Контакты: lukashenko.1962@mail.ru