

Методические особенности наблюдения за многолетней динамикой малых уровней трития в окружающей среде

В.С. Репин, К.В. Варфоломеева, С.А. Зеленцова, К.А. Седнев, Г.В. Архангельская

Санкт-Петербургский научно-исследовательский институт радиационной гигиены имени профессора П.В. Рамзаева, Федеральная служба по надзору в сфере защиты прав потребителей и благополучия человека, Санкт-Петербург, Россия

В статье рассмотрены методические особенности обеспечения многолетних наблюдений за динамикой изменений малых уровней трития в водных объектах окружающей среды, расположенных в местах потенциального выноса трития. На примере измерений трития на низкофоновом жидкостном сцинтилляционном альфа-, бета- радиометре излучения «Quantulus 1220-003» показано, что точность оценки абсолютных значений удельной активности трития в исследуемых пробах при его малых уровнях существенно связана со скоростью счета фонового образца. При планировании длительных динамических наблюдений за изменениями малых уровней трития в водных объектах необходимо заранее предусмотреть ряд факторов, от которых зависит точность оценок. Одним из наиболее значимых факторов является наличие фонового образца со скоростью счета не более 0,6 имп/мин, который обеспечивает возможность измерения удельной активности трития 1 Бк/л в течение 12 ч. Стабильность и воспроизводимость результатов можно контролировать с помощью эталонного раствора, который должен использоваться на протяжении всего периода динамического наблюдения. Градуировка прибора с помощью эталонного раствора должна предусматриваться каждый раз при смене сцинтилляционного коктейля, поскольку могут быть различия эффективности до 10% при использовании однотипных сцинтилляторов с разным сроком хранения. Для подготовки счетных образцов следует выбирать помещения с минимальными уровнями трития во влаге воздуха и на существенном удалении от помещений, где проводятся работы с повышенными уровнями активности трития. При повторном использовании виал следует иметь в виду, что эффективность регистрации трития может снизиться, поэтому при употреблении таких виал следует также провести градуировочные измерения эталонных растворов.

Ключевые слова: тритий, окружающая среда, малые уровни, жидкостная спектрометрия, мониторинг, длительные динамические наблюдения, фоновый образец, эталонный образец, точность измерений.

Введение

В связи с планируемым сбросом радиоактивной воды в океан из резервуаров АЭС «Фукусима-1», содержащей высокие активности трития, контроль за содержанием данного радионуклида в прибрежных водах, в осадках и открытых водоемах становится актуальным.

Источниками попадания трития в окружающую среду, наряду с космогенным [1, 2], являются атомные станции [3–6], производство и применение изделий на основе трития и тритий-содержащих соединений [7–10], исследования по реализации термоядерного синтеза [11, 12]. К потенциальным источникам поступления больших уровней трития можно отнести отмеченный выше сброс тритиевой воды в океан из резервуаров АЭС «Фукусима-1» [13, 14], а также вынос из мест захоронения особых радиоактивных отходов, образовавшихся при проведении мирных ядерных взрывов и др. [15–19].

Наличие космогенной компоненты характеризовалось концентрацией трития в осадках до начала проведения ядерных взрывов в атмосфере, удельная активность которого составляла $0,3 \pm 0,06$ Бк/л воды. После термоядерных взрывов концентрация трития в осадках превышала это значение в десятки-сотни раз [20].

Среднегодовое значение объемной активности трития в атмосферных осадках на территории Российской Федерации в 2021 г. составляло 1,48 Бк/л, в 2022 г. – 1,8 Бк/л. Колебания годовых выпадений трития связаны с изменчивостью процессов его выведения из атмосферы и поступления в атмосферу от естественных и техногенных источников [21].

В системе радиационного мониторинга Росгидромета на территории Российской Федерации (РФ) имеется 15 пунктов отбора проб трития из рек. Уровни выброса трития атомными станциями РФ одного из основных источников поступления трития в атмосферу достигают,

Репин Виктор Степанович

Санкт-Петербургский научно-исследовательский институт радиационной гигиены имени профессора П.В. Рамзаева
Адрес для переписки: 197101, Санкт-Петербург, ул. Мира, д. 8; E-mail: v.repin@mail.ru

по данным [21], единиц и десятков терабеккерель (ТБк), но не превосходят разрешенных уровней – сотен и тысяч ТБк. Суммарный годовой выброс и сброс атомных станций достигает 44 ТБк.

По данным, представленным в [22], общее количество трития, содержащегося в радиоактивной воде, хранящейся в резервуарах АЭС «Фукусима-1», по состоянию на январь 2020 г. составляет 860 трлн беккерелей (трлн Бк), что намного превосходит суммарный выброс всех АЭС РФ, поэтому может повлиять на уровни трития в океане и в окружающей среде.

По данным Росгидромета [21,23], как в осадках, так и в речной воде в период с 2006 по 2021 г. наблюдаются колебания трития с тенденцией к постепенному снижению. Можно также судить о глобальном характере распространения трития в РФ и в мире.

Несмотря на значительные выбросы данного радионуклида в атмосферу, диапазон измеряемых величин вне мест выбросов и сбросов радиационных объектов, благодаря процессам атмосферного разбавления и перемешивания, невелик – от 1 до 5 Бк/л. Измерение таких уровней в динамике требует использования особых методических подходов, тогда как при измерении высоких уровней содержания трития в местах выброса, наблюдения за динамикой не вызывают измерительных трудностей [24]. Опыт, приобретенный при измерении малых уровней трития на низкофономом жидкостном сцинтилляционном спектрометрическом альфа-, бета-радиометре излучения спектрометрическом «Quantulus 1220-003», позволил выявить ряд существенных факторов, от которых может зависеть точность измерений при проведении длительных динамических наблюдений.

Цель исследования – оценка влияния различных факторов на чувствительность и точность измерений малых уровней трития в ходе длительных динамических наблюдений.

Материалы и методы

Все измерения проб трития выполнялись на низкофономом жидкостном сцинтилляционном спектрометрическом альфа-, бета- радиометре излучения спектрометрическом «Quantulus 1220-003» производства фирмы PerkinElmer (Нидерланды). Счетные образцы готовились в соответствии с методикой выполнения измерений активности альфа-, бета-излучающих радионуклидов в жидких и твердых пробах с использованием радиометра альфа-, бета-излучения спектрометрического «Quantulus 1220» во ФБУН «Научно-исследовательский институт радиационной гигиены имени профессора П.В. Рамзаева». (свидетельство об аттестации № 45014.15225/RA.RU.311243, аттестована ФГУП «ВНИИФТРИ») (МВИ ФБУН НИИРГ). Содержание трития в пробе воды определяли с использованием радиохимической очистки от сопутствующих радионуклидов с помощью двойной дистилляции. После дистилляции аликвоту пробы счетного образца объемом 10 мл смешивали в специализированной измерительной вials (из полиэтилена высокого давления объемом 20 мл) с 10 мл сцинтилляционного коктейля Optifase HiSafe III производителя PerkinElmer™ (Нидерланды). Приготовленные пробы тщательно перемешивались, выдерживались в холодильной измерительной камере прибора (для подавления фото- и хемолюминесценции) в течение 8–12 ч, после

чего запускали серию измерений. Перед каждой серией измерений и в конце измерений производилось измерение фонового образца и стандарта образца трития, прилегаемого к прибору с целью контроля стабильности условий измерений. Подготовка проб трития, содержащегося в воздушной влаге, осуществлялась методом конденсации на холодной поверхности или методом вымораживания на элементе Пельтье. Статистическая обработка результатов выполнена средствами MS Excel. Графические построения выполнены средствами MS Excel и Matlab 2020 по специально разработанному алгоритму.

Результаты и обсуждение

Исследовалось влияние следующих факторов, от которых предположительно могут зависеть чувствительность и точность измерений малых уровней трития:

1. Скорость счета фонового образца.
2. Тип сцинтиллятора и срок хранения.
3. Помещение для приготовления счетных образцов.
4. Повторное использование виал для подготовки счетных образцов.

Фоновые образцы

При подготовке фонового счетного образца для водных проб используют воду с наименьшей скоростью счета трития. Поиск такой воды осуществляли с момента приобретения прибора. Первоначально фоновый образец был приготовлен из дистиллята воды централизованного водоснабжения. При исследовании содержания трития в водных объектах в некоторых счетных образцах скорость счета трития была меньше используемого фонового образца, поэтому такие пробы становились фоновыми до того момента, пока не появится новый образец с еще меньшей счетностью. Помимо проб окружающей среды, исследовались пробы воды, приобретенные в одном из магазинов розничной торговли («ФрутоНяня», «Агуша» и др.), на этикетках которых указывалось, что данная вода добыта из артезианских скважин. Эффективность регистрации трития оценивалась по эталонному раствору с погрешностью удельной активности трития, равной 2%, из которой готовился промежуточный раствор. Ошибка приготовления счетного эталонного образца из промежуточного раствора оценена величиной 5% (точность мерной посуды и микропипетки).

Результаты исследований проб воды в процессе поиска фонового счетного образца представлены на рисунке 1.

Из рисунка 1 видно, что диапазон скоростей счета исследованных проб воды, которые предполагалось использовать в качестве фоновых, лежит в интервале от 0,6 до 1,2 имп/мин.

Спектр трития, измеренный на Quantulus 1220, при соотношении водного образца и сцинтилляционного коктейля 1:1 расположен между 40 и 270 каналами, тогда как спектр фона простирается вплоть до 1024 канала. Таким образом, фоновую скорость счета целесообразно рассчитывать также в интервале каналов 40–270, что позволяет избежать неоправданного увеличения скорости счета фона (рис. 2). Для дальнейшего снижения фоновой скорости счета выгодно выбирать максимальный канал окна регистрации трития на правом склоне спектра трития (рис. 3), что приводит к незначительному снижению эффективности регистрации, но позволяет заметно снизить фон.

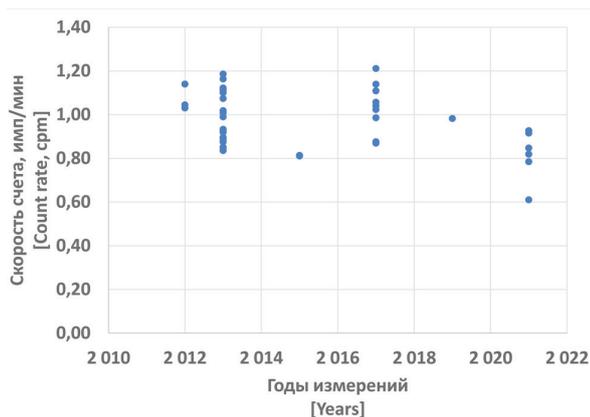


Рис. 1. Скорость счета фоновых проб воды в разные годы исследований

[Fig. 1. The count rate of background water samples in different years of the research]

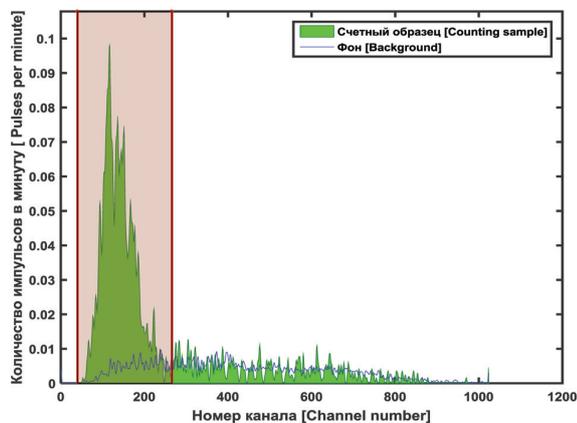


Рис. 2. Спектры счетного и фоновых образцов (границы окна регистрации выделены цветом)

[Fig. 2 Spectra of the counting and background samples (the boundaries of the registration window are highlighted in color)]

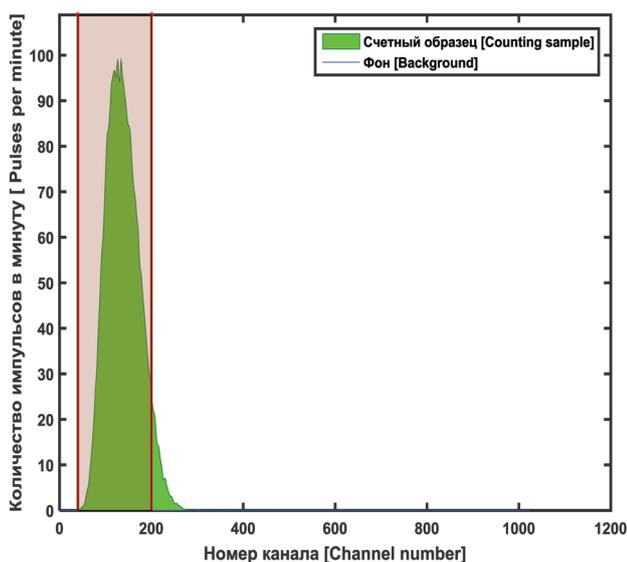


Рис. 3. Спектр счетного образца в окне регистрации от 40 до 200 канала

[Fig. 3. Spectrum of the counting sample in the registration window from 40 to 200 channels]

Важнейшей характеристикой прибора является минимально детектируемая активность (МДА), которая оценивалась по формуле, приведенной в статье [25]:

$$МДА = \frac{3,3 \cdot \sqrt{\frac{2 \cdot N_b}{t}}}{60 \cdot \varepsilon \cdot V} \cdot 1000, \frac{Бк}{л} \quad (1)$$

где N_b – скорость счета фоновго образца, имп/мин;

t – время измерений, мин;

ε – эффективность регистрации, имп.с⁻¹. Бк⁻¹;

V – объем измеряемой пробы воды в виале, мл.;

60 – коэффициент перевода минут в секунды;

1000 – коэффициенты перевода величины МДА к объему 1 л;

3,3 – коэффициент, обеспечивающий 95% доверительную вероятность оцениваемого значения МДА.

Как видно из формулы 1, величина МДА зависит от эффективности счета, скорости счета фоновго образца и времени измерений. На рисунке 4 показаны графики зависимости МДА от времени измерений для 4 значений скорости счетности фоновго образца: 0,6; 0,8; 1,0 и 1,2 имп/мин при эффективности регистрации 23%.

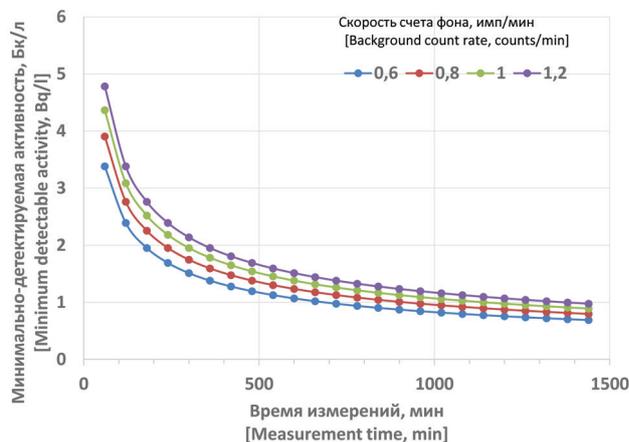


Рис. 4. Зависимость минимально-детектируемой активности трития в воде от времени измерений и скорости счета фона [Fig. 4. Dependence of the minimum detectable activity of tritium in water on the measurement time and background count rate]

Из рисунка 4 видно, что обеспечить измерения трития на уровне 1 Бк/л становится возможным только при наличии фоновго образца со скоростью счета менее 0,6 имп/мин и при времени измерений около 12 ч. Увеличение скорости счета фоновго образца на 0,1 имп/мин приводит к занижению удельной активности трития в счетном образце примерно на 0,5 Бк/л.

В таблице 1 приведены результаты расчета МДА для времени измерений 360 и 720 мин для 3 вариантов окон регистрации счетного образца и фона. Из таблицы 1 видно, что при уменьшении верхнего канала регистрации с 270 до 200 скорость счета фона уменьшается почти в 2 раза, тогда как эффективность регистрации снижается на 1,4%, что позволяет уменьшить МДА до уровня 1,04 Бк/л при времени измерений 720 мин.

Тип сцинтиллятора и сроки хранения

Сцинтилляционный коктейль относится к расходным периодически закупаемым материалам, поэтому счетные свойства могут зависеть от типа сцинтиллятора, доступ-

Зависимость МДА трития в воде от ширины канала регистрации

[Table 1

Dependence of MDA of tritium in water from the registration channel width]

Каналы регистрации [Registration channels]	Скорость счета фона, имп/мин [Background count rate, counts/min]	Эффективность регистрации, % [Registration efficiency, %]	МДА, Бк/л [MDA, Bq/l]	
			Время измерений 360 мин [Measurement time 360 min]	Время измерений 720 мин [Measurement time 720 min]
40–270	0,95	23,9	1,9	1,35
40–240	0,78	23,8	1,73	1,22
40–200	0,54	22,5	1,46	1,04

ного для приобретения, сроков хранения, однородности его свойств в поставляемых партиях.

Сравнение свойств различных типов сцинтиллятора выполнено для рекомендуемого МВИ ФБУН НИИРГ в качестве сцинтилляционного коктейля марки Optiphase HiSafe III (страна-производитель – Нидерланды) и импортозамещающей жидкости сцинтилляционной «ЖС-8» (страна-производитель – Российская Федерация), который был закуплен в период отсутствия поставок «Optiphase HiSafe III». В связи с тем, что жидкость сцинтилляционная «ЖС-8» обладает ограниченной растворимостью в воде, сравнительное исследование выполнено для различных пропорций смешивания эталонного водного раствора и сцинтилляционной жидкости. Зависимость эффективности регистрации от относительного объема эталонного раствора в общем объеме счетного образца для 2 типов сцинтиллятора показана на рисунке 5.

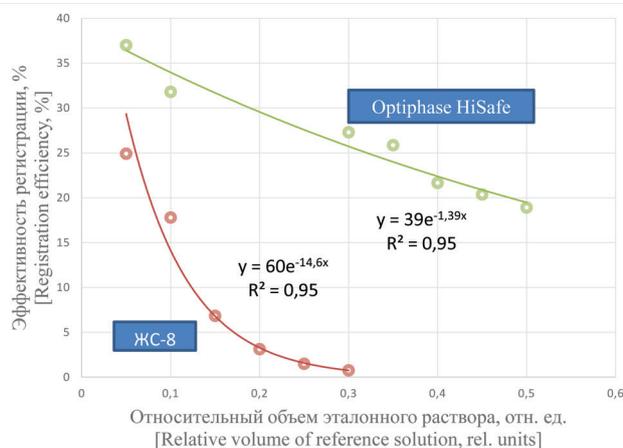


Рис. 5 Эффективность регистрации трития в воде в зависимости от относительного объема эталонного раствора в общем объеме счетного образца

[Fig. 5. Detection efficiency of tritium in water depending on the relative volume of the reference solution in the total volume of the counting sample]

Из рисунка 5 видно, что свойства исследуемых сцинтилляторов существенно различаются, как по эффективности, так и по темпу ее снижения при увеличении объемной доли эталонного раствора в общем объеме счетного образца.

Исследование показало, что МДА при использовании жидкости сцинтилляционной «ЖС-8» не позволяет

измерять пробы с объемной активностью трития менее 5 Бк/л.

Сравнение эффективности регистрации выполнено также для жидкого сцинтиллятора «Optiphase HiSafe III» из разных поставок и различных сроков хранения. Результаты сопоставления приведены в таблице 2.

Из сопоставления результатов, приведенных в таблице 2, следует, что использование каждой новой партии приобретенного жидкого сцинтиллятора требует новой градуировки прибора, а при отсутствии свежих поставок «Optiphase HiSafe III» коктейли с вышедшим сроком годности являются вполне пригодными для использования, но с потерей эффективности на 5–10%.

Место приготовления счетных образцов

При подготовке счетных образцов трития с различными уровнями активности происходят частичное испарение дистиллята и поступление паров в воздух помещения. Дополнительное поступление трития в воздушную среду здания, где ведутся работы, возможен из комнат для хранения проб, поэтому представляет интерес выяснить уровни концентрации трития во влаге воздуха в комнатах, где ведется пробоподготовка, и сравнить их с уровнями на удалении от города и тем самым оценить интенсивность возможного влияния атмосферного трития в помещениях на поступление трития из воздуха в счетные образцы во время пробоподготовки. Для предварительной оценки возможного влияния трития, содержащегося в воздухе помещений, на изменение активности счетного образца были отобраны пробы воздушной влаги в комнате, где ведется пробоподготовка малоактивных проб, в комнате, где готовятся счетные образцы проб повышенной активности, а также пробы атмосферной влаги из сельской местности на расстоянии 50 км от города. Сравнение выполнено с использованием 2 методов отбора проб влаги: методом конденсации на холодной поверхности и методом вымораживания на элементе Пельтье. Первым методом сравнивались уровни скорости счета в пробах, отобранных в помещениях, где ведутся работы. Второй метод позволил сравнить уровни скорости счета в пробах, отобранных в помещении, где ведутся работы, с пробами повышенной активности и в доме, расположенном в сельской местности на удалении 50 км от города. Результаты измерений представлены в таблице 3.

Из таблицы 3 видно, что скорость счета пробы, отобранной в помещении, где ведутся работы с пробами повышенной активности, примерно в 5 раз выше, чем в пробе из комнаты для пробоподготовки малоактивных проб,

Сравнение эффективности регистрации для различных сроков использования жидкого сцинтиллятора «Optiphase HiSafe III»

Таблица 2

Comparison of registration efficiency for different periods of use of the liquid scintillator «Optiphase HiSafe III»

[Table 2]

Вариант сцинтилляционного коктейля [Variant of the scintillation cocktail]	Эффективность регистрации, % [Registration efficiency, %]	Отклонение от первоначального значения эффективности, % [Deviation from the initial efficiency value, %]
Свежий коктейль поставки 2011 г. [Fresh cocktail delivery 2011]	22,8	0
Свежий коктейль поставки 2021 г. [Fresh Cocktail Delivery 2021]	20,8	-8,8
Коктейль поставки 2011 г. (срок годности для применения вышел) [Delivery cocktail 2011 (expiration date for use expired)]	19,8	-13,2
Коктейль поставки 2011 г. (срок годности для применения вышел) [Delivery cocktail 2011 (expiration date for use expired)]	21,7	-4,8

Таблица 3

Сравнение скорости счёта трития в пробах атмосферной влаги в различных помещениях выполнения работ в пределах города и за его пределами

Comparison of the tritium count rate in atmospheric moisture samples in various work areas within the city and outside it

[Table 3]

Место отбора пробы [Sampling location]	Метод отбора пробы [Sampling method]	Объем пробы, мл [Sample volume, ml]	Скорость счёта, имп/мин [Counting rate, counts/min]	Ошибка, % [Error, %]
Город (комната для подготовки низкоактивных проб) – 3 этаж [City (room for sample preparation of low-level samples) – 3rd floor]	Конденсация [Condensation]	10	17,36	1,30
Город (комната для подготовки высокоактивных проб) – 2 этаж [City (room for sample preparation of highly active samples) – 2nd floor]	Конденсация [Condensation]	10	86,38	2,80
Город (комната для подготовки высокоактивных проб) [City (to Sample preparation room for highly active samples)]	Вымораживание на элементе Пельтье [Freezing on the Peltier element]	2	24,43	5,50
Сельская местность (дом) в 50 км от города [Rural area 50 km from the city]	Вымораживание на элементе Пельтье [Freezing on the Peltier element]	2	1,14	7,90

а скорость счёта пробы, отобранной в сельской местности, в 21 раз меньше скорости счёта пробы, отобранной в комнате для работы с высокоактивными пробами. Таким образом, результаты предварительного исследования показывают, что в процессе пробоподготовки не исключается поступление в счетный образец трития, содержащегося во влаге воздуха.

Повторное использование измерительных виал

Измерительные виалы по прошествии 3 лет хранения низкоактивных счетных образцов могут использоваться повторно, однако длительное хранение счетного образца может влиять на оптическую прозрачность стенок виалы и на эффективность регистрации. Для исследования возможного влияния помутнения стенок виалы на эффективность регистрации были проведены сравнительные измерения счетных образцов эталонного раствора в бывших в употреблении (б/у) виалах (3 шт) и в новых виалах

(3 шт). Сопоставление результатов проводилось по скорости счёта эталонного раствора. Результаты измерений представлены в таблице 4

Сравнение средних значений скорости счёта в новых виалах и виалах, бывших в употреблении, показывает, что в новых виалах скорость счёта выше. Достоверность различий средних значений по критерию Стьюдента показывает, что различия статистически значимы, то есть можно утверждать, что эффективность регистрации в новых виалах примерно на 1,5% выше.

Заключение

Планируемый сброс радиоактивной воды из резервуаров японской АЭС «Фукусима-1», увеличение мощностей атомных станций, наращивание исследований по реализации термоядерного синтеза, потенциальная опасность выноса трития в водоносные горизонты из мест размещения особых радиоактивных отходов, обра-

Сравнение средних значений скорости счета в новых виалах и виалах, бывших в употреблении

Comparison of average count rates for new and used vials

Номер виалы [Vial number]	Виалы, бывшие в употреблении [Used vials]				Новые виалы [New vials]	
	1	2	3	4	5	6
Скорость счета, имп/мин [Counting rate, counts/min]	12 561	12 595	12 446	12 651	12 701	12 806
Среднее [Average]	12 534				12 720	
Стандартная ошибка [Standard error]	45				46	

зававшихся при проведении мирных ядерных взрывов, делают актуальной задачу длительного контроля за содержанием трития в окружающей среде на уровне фоновых значений.

При планировании длительных динамических наблюдений за изменениями малых уровней трития в водных объектах необходимо заранее предусмотреть ряд факторов, от которых зависит точность оценок.

Одним из наиболее значимых факторов является наличие фонового образца со скоростью счета не более 0,6 имп/мин, который обеспечивает возможность измерения удельной активности трития – 1 Бк/л. Оптимальные условия регистрации малых уровней трития могут быть достигнуты также путем выбора каналов регистрации.

Стабильность и воспроизводимость результатов могут контролироваться с помощью эталонного раствора, который должен использоваться на протяжении всего периода динамического наблюдения.

Градуировка прибора с помощью эталонного раствора должна предусматриваться также каждый раз при смене сцинтилляционного коктейля, поскольку различия эффективности при использовании однотипных сцинтилляторов с разным сроком хранения могут достигать 10%.

Для подготовки счетных образцов трития следует выбирать помещения с минимальными уровнями трития во влаге воздуха и на существенном удалении от помещений, где проводятся работы с повышенными уровнями активности трития.

При использовании бывших в употреблении виал следует иметь в виду, что эффективность регистрации трития может снизиться, поэтому рекомендуется провести градуировочные измерения эталонных растворов.

Сведения о личном вкладе авторов в работу над статьей

Репин В.С. – разработал концепцию исследования, руководил выполнением исследований, осуществил систематизацию первичных материалов исследования и анализ полученных данных, написал текст статьи, оформил ее окончательный вариант для публикации в журнале.

Варфоломеева К.В. – выполнила редактирование промежуточного варианта текста статьи, оформила текст статьи для представления в редакцию журнала.

Зеленцова С.А. – выполнила редактирование промежуточного варианта текста статьи.

Седнев К.А. – выполнил анализ литературных данных, провел градуировку спектрометра, участвовал в создании библиотеки градуировочных спектров и выполнил верификационные измерения.

Архангельская Г.В. – выполнила редактирование промежуточного варианта текста статьи.

Информация о конфликте интересов

Авторы заявляют об отсутствии конфликта интересов.

Сведения об источнике финансирования

Работа выполнена в рамках отраслевой программы Роспотребнадзора на 2021–2025 гг. «Научное обоснование национальной системы обеспечения санитарно-эпидемиологического благополучия, управления рисками здоровью и повышения качества жизни населения России» по теме: «Совершенствование и развитие методов мониторинга объектов окружающей среды в районах проведения мирных ядерных взрывов. Радиационно-гигиеническая характеристика источников питьевого водоснабжения».

Литература

1. Зубачева А.А., Каткова М.Н., Тарасенко А.О., и др. Уровни содержания трития в поверхностной и питьевой воде города Обнинска и его окрестностей. Современные проблемы радиобиологии, радиоэкологии и агроэкологии: сборник докладов международной молодежной конференции, Обнинск, 03–04 октября 2019 года. Обнинск: Федеральное государственное бюджетное научное учреждение «Всероссийский научно-исследовательский институт радиологии и агроэкологии», 2019. С. 140–143.
2. Макаров В.Н. Тритий в снежном покрове мерзлотных ландшафтов. Современные проблемы геохимии, геологии и поисков месторождений полезных ископаемых: материалы Международной научной конференции, посвящённой 110-летию со дня рождения академика Константина Игнатьевича Лукашёва (1907–1987), Минск, 23–25 мая 2017 года. Том Часть 2. Минск: Право и экономика, 2017. С. 96–98.
3. Мажейка Й.В., Пятрошюс Р.И., Скуратович Ж.Л. и др. Тритий в окружающей среде Игналинской АЭС за период ее эксплуатации // Региональная экология. 2018. № 1. С. 20–30. DOI:10.30694/1026-5600-2018-1-20-30.
4. Панов А.В., Трапезников А.В., Коржавин А.В. и др. Радиационный мониторинг питьевой воды в районе Белоярской АЭС // Радиационная гигиена. 2021. Т. 14, № 1. С. 86–101. DOI: 10.21514/1998-426X-2021-14-1-86-101.

5. Янов А.Ю., Востротин В.В., Финашов Л.В. Тритий в окружающей среде Уральского региона: обзор современного состояния и анализ перспектив изучения с позиций радиологической защиты // Человек. Спорт. Медицина. 2016. Т. 16, № 2. С. 85-99. <https://doi.org/10.14529/hsm160209>.
6. Ульянов В.Ю., Елохин А.П. Мониторинг трития как возможного индикатора утечек из спецтрубопроводов и других водонесущих коммуникаций на площадке АЭС «Бушер-1» // Глобальная ядерная безопасность. 2016. Т. 21, № 4. С. 7-15.
7. Ливанцова С.Ю., Снакин В.В. Техногенный тритий в окружающей среде // Жизнь Земли. 2014. Т. 35-36. С. 261-269.
8. Eyrolle F., Ducros L., Le Dizès S., et al. An updated review on tritium in the environment // Journal of Environmental Radioactivity. 2018. Vol. 181. P. 128-137. DOI: 10.1016/j.jenvrad.2017.11.001.
9. Бондарева Л.Г. Исследование содержания трития в некоторых компонентах экосистемы р. Енисей на участке среднего течения // Радиохимия. 2015. Т. 57, № 5. С. 475-480.
10. Голубев А.В. Поведение трития в окружающей среде // Вестник Мининского университета. 2015. № 2. С. 1-1.
11. Akata N., Tanaka M., Iwata C., et al. Isotope composition and chemical species of monthly precipitation collected at the site of a fusion test facility in Japan // International Journal of Environmental Research and Public Health. 2019. Vol. 16. No. 20. DOI: 10.3390/ijerph16203883.
12. Tanaka M., Iwata C., Nakada M., et al. Levels of atmospheric tritium in the site of fusion test facility // Radiation Protection Dosimetry. 2022. Vol. 198, №. 13-15. P. 1084-1089 DOI: 10.1093/rpd/ncac059/
13. Matsumoto H., Shimada Y., Nakamura A.J., et al. Health effects triggered by tritium: how do we get public understanding based on scientifically supported evidence? // Journal of Radiation Research. 2021. Vol. 62, No. 4. P. 557-563. DOI:10.1093/jrr/rrab029.
14. Kaizer J., Kontul' I., Povinec P.P. Impact of the Fukushima Accident on 3H and 14C Environmental Levels: A Review of Ten Years of Investigation // Molecules. 2023. Vol. 28, №. 6. DOI: 10.3390/molecules28062548/
15. Турченко Д.В. Лукашенко С.Н., Айдарханов А.О., Ляхова О.Н. Исследование содержания трития в снежном покрове в местах проведения подземных ядерных взрывов // Радиационная биология. Радиоэкология. 2018. Т. 58, № 2. С. 174-182. DOI: 10.7868/S0869803118020066/
16. Артамонова С.Ю. Тритий как индикатор радиоэкологической обстановки в районе мирного подземного ядерного взрыва» Кристалл» // Астраханский вестник экологического образования. 2019. № 4 (52). С. 4-13.
17. Рамзаев В.П., Библин А.М., Репин В.С. и др. Загрязнение тритием поверхностных и подземных вод в месте проведения мирных подземных ядерных взрывов серии «Днепр» // Радиационная гигиена. 2022. Т.15, № 1. С. 6-26. DOI: 10.21514/1998-426X-2022-15-1-6-26.
18. Polivkina Ye.N., Larionova N.V., Lukashenko S.N., et al. Assessment of the tritium distribution in the vegetation cover in the areas of underground nuclear explosions at the Semipalatinsk test site // Journal of Environmental Radioactivity. 2021. Vol. 237. P. 67-85. DOI: 10.1016/j.jenvrad.2021.106705.
19. Ramzaev V., Repin V., Medvedev A., et al. Radiological investigations at the "Taiga" nuclear explosion site: Site description and in situ measurements // Journal of environmental radioactivity. 2011. Vol. 102. P. 672-680. DOI: 10.1016/j.jenvrad.2011.04.003/
20. Махонько К.П., Ким В.М., Катрич И.Ю., Волокитин А.А. Сравнительное поведение трития и ¹³⁷Cs в атмосфере // Атомная энергия. 1998. Т. 85, № 4. С. 313-318.
21. Радиационная обстановка по территории России и сопредельных государств в 2022 г. Ежегодник. НПО «Тайфун». Обнинск, 2022. URL: https://www.rpatyphoon.ru/upload/medialibrary/ezhegodniki/ro/ezhegodnik_ro_2022.pdf (Дата обращения 28.07.2023).
22. Buesseler K.O. Opening the floodgates at Fukushima // Science. 2020. Vol. 369, №. 6504. P. 621-622. DOI: 10.1126/science.abc1507.
23. Радиационная обстановка по территории России и сопредельных государств в 2009 г. Ежегодник. НПО «Тайфун». Обнинск, 2009. URL: https://www.rpatyphoon.ru/upload/medialibrary/ezhegodniki/ro/ezhegodnik_ro_2009.pdf (Дата обращения 28.07.2023).
24. Varlam C., Stefanescu I., Dului O.G., et al. Applying direct liquid scintillation counting to low level tritium measurement // Applied Radiation and Isotopes. 2009. Vol. 67, No. 5. P. 812-816. DOI: 10.1016/j.apradiso.2009.01.023.
25. Arun B., Vijayalakshmia I., Sivasubramaniana K., Jose M.T. Optimization of liquid scintillation counter for tritium estimation in water samples // Radiochemistry. 2019. Vol. 61, No. 1. P. 61-65. DOI: 10.1134/S1066362219010090.

Поступила: 24.07.2023 г.

Репин Виктор Степанович – доктор биологических наук, заведующий лабораторией экологии Санкт-Петербургского научно-исследовательского института радиационной гигиены имени профессора П.В. Рамзаева Федеральной службы по надзору в сфере защиты прав потребителей и благополучия человека. **Адрес для переписки:** 197101, Россия, Санкт-Петербург, ул. Мира, д. 8; E-mail: V.Repin@mail.ru

Варфоломеева Ксения Владимировна – младший научный сотрудник лаборатории экологии Санкт-Петербургского научно-исследовательского института радиационной гигиены имени профессора П.В. Рамзаева Федеральной службы по надзору в сфере защиты прав потребителей и благополучия человека, Санкт-Петербург, Россия

Зеленцова Светлана Александровна – младший научный сотрудник лаборатории экологии Санкт-Петербургского научно-исследовательского института радиационной гигиены имени профессора П.В. Рамзаева Федеральной службы по надзору в сфере защиты прав потребителей и благополучия человека, Санкт-Петербург, Россия

Седнев Константин Андреевич – исполняющий обязанности младшего научного сотрудника лаборатории экологии Санкт-Петербургского научно-исследовательского института радиационной гигиены имени профессора П.В. Рамзаева Федеральной службы по надзору в сфере защиты прав потребителей и благополучия человека, Санкт-Петербург, Россия

Архангельская Генриэтта Владимировна – доктор медицинских наук, главный научный сотрудник лаборатории экологии Санкт-Петербургского научно-исследовательского института радиационной гигиены имени профессора П.В. Рамзаева Федеральной службы по надзору в сфере защиты прав потребителей и благополучия человека, Санкт-Петербург, Россия

Для цитирования: Репин В.С., Варфоломеева К.В., Зеленцова С.А., Седнев К.А., Архангельская Г.В. Методические особенности наблюдения за многолетней динамикой малых уровней трития в окружающей среде // Радиационная гигиена. 2023. Т. 16, № 3. С. 91-100. DOI: 10.21514/1998-426X-2023-16-3-91-100

Methodological features of monitoring the long-term dynamics of low levels of tritium in the environment

Viktor S. Repin, Kseniya V. Varfolomeeva, Svetlana A. Zelentsova, Konstantin A. Sednev, Genrietta V. Arkhangelskaya

Saint-Petersburg Research Institute of Radiation Hygiene after Professor P.V. Ramzaev, Federal Service for Surveillance on Consumer Rights Protection and Human Wellbeing, Saint-Petersburg, Russia

The article considers the methodological features of long-term observations of the dynamics of changes in low levels of tritium in water bodies of the environment located in places of potential contamination by tritium. The experience of measurements of tritium on the low-background liquid scintillation alpha-, beta-radiometer "Quantulus 1220-003" has shown, that the accuracy of estimating the absolute values of the specific activity of tritium in the samples under study at its low levels is significantly related to the counting rate of the background sample. When planning long-term dynamic observations of changes in low levels of tritium in water bodies, it is necessary to foresee a number of factors that affect the accuracy of the estimates. One of the most significant factors is the presence of a background sample with a count rate of not more than 0.6 imp/min, which makes it possible to measure the activity concentration of tritium at a level of 1 Bq/l for 12 hours. The stability and reproducibility of the results can be monitored using a reference solution, which must be used throughout the entire period of dynamic observation. Calibration of the device using the reference solution should be provided each time the scintillation cocktail is changed, since there may be differences in efficiency up to 10% when using the same type of scintillators with different shelf life. For the preparation of counting samples, rooms with minimal levels of tritium in air moisture and at a significant distance from rooms where work with elevated levels of tritium activity is carried out should be chosen. When reusing vials, it should be borne in mind that the efficiency of tritium detection may decrease, therefore, when using such vials, calibration measurements of standard solutions should also be carried out.

Key words: tritium, environment, low levels, liquid spectrometry, monitoring, long-term dynamic observations, background sample, reference sample, measurement accuracy.

Information about the personal contribution of the authors to the article

Repin V.S. – developed the concept of the study, supervised the implementation of the studies, systematized the primary materials of the study and analyzed the data obtained, wrote the text of the article, designed its final version for publication in the journal.

Varfolomeeva K.V. – edited the intermediate version of the text of the article, designed the text of the article for submission to the editors of the journal.

Zelentsova S.A. – edited the intermediate version of the text of the article.

Sednev K.A. – performed the analysis of literature data, calibrated the spectrometer, participated in the creation of a library of calibration spectra and performed verification measurements.

Arkhangelskaya G.V. – edited the intermediate version of the text of the article.

Conflict of interests

Authors declare the absence of conflict of interest.

Information about the source of funding

The work was carried out within the framework of the sectoral program of Rospotrebnadzor for 2021–2025. "Scientific substantiation of the national system for ensuring sanitary and epidemiological well-being, managing health risks and improving the quality of life of the population of Russia" on the topic: "Improving and developing methods for monitoring environmental objects in areas where peaceful nuclear explosions are carried out. Radiation-hygienic characteristics of sources of drinking water supply.

Victor S. Repin

Saint-Petersburg Research Institute of Radiation Hygiene after Professor P.V. Ramzaev

Address for correspondence: Mira Str., 8, Saint-Petersburg, 197101, Russia. E-mail: V.Repin@mail.ru

References

- Zubacheva AA, Katkova MN, Tarasenko AY, Shesterikova EM. Levels of tritium content in the top and drinking water of the city of Obninsk and its environs. Modern problems of radiobiology, radioecology and agroecology; 2019. P. 140-143. (In Russian).
- Makarov VN. Tritium in the snow cover of permafrost landscapes. Modern problems of geochemistry, geology and prospecting for mineral deposits.; 2017. P. 96-98. (In Russian).
- Mazeika JV, Petrošius RI, Skuratovich ZhL, Efanova OV. Tritium in the environment of the Ignalina NPP for the period of its operation. *Regionalnaya ekologiya = Regional ecology*. 2018;1: 20-30. (In Russian).
- Panov AV, Trapeznikov AV, Korzhavin AV, Geshel IV, Korovin SV, Edomskaya MA. et al. Radiation monitoring of drinking water in the area of the Belayarsk NPP. *Radiatsionnaya Gygiena = Radiation Hygiene*. 2021;14(1): 86–101. DOI: 10.21514/1998-426X-2021-14-1-86-101. (In Russian).
- Yanov AY, Vostrotnin VV, Finashov LV. Tritium in the environment of the Ural region: a review of the current state and analysis of the prospects for studying from the standpoint of radiological protection. *Chelovek. Sport. Meditsina = Human. Sport. Medicine*. 2016;16(2): 85-99. (In Russian).
- Ulyanov VY, Elokhin AP. Monitoring of tritium as a possible indicator of leaks from special pipelines and other water-carrying communications at the site of the Bushehr-1 NPP. *Globalnaya yadernaya bezopasnost = Global Nuclear Safety*. 2016; 21(4): 7-15. (In Russian).
- Livantsova SY, Snakin VB. Technogenic tritium in the environment. *Zhizn Zemli = Life of the Earth*. 2014;35:261-269. (In Russian).
- Eyrolle F, Ducros L, Le Dizès S, Beaugelin-Seiller K, Charmasson S, Boyer P, et al. An updated review on tritium in the environment. *Journal of Environmental Radioactivity*. 2018;181: 128–137. DOI: 10.1016/j.jenvrad.2017.11.001.
- Bondareva LG. Study of the content of tritium in some components of the ecosystem of the Yenisei River in the area of the middle course. *Radiokhimiya = Radiochemistry*. 2015;57(5): 475-480. (In Russian).
- Golubev AB. Study of tritium in the environment. *Vestnik Mininskogo universiteta = Bulletin of Minin University*. 2015;2: 1-1. (In Russian).
- Akata N, Tanaka M, Iwata Ch, Kato A, Nakada M, Kovács T, et al. Isotope composition and chemical species of monthly precipitation collected at the site of a fusion test facility in Japan. *International Journal of Environmental Research and Public Health*. 2019;16(20).
- Tanaka M, Iwata C, Nakada M, Kato A, Akata N. Levels of atmospheric tritium in the site of fusion test facility. *Radiation Protection Dosimetry*. 2022;198(13-15): 1084-1089.
- Matsumoto H, Shimada Y, Nakamura AJ, Usami N, Ojima M, Kakinuma Sh, et al. Health effects triggered by tritium: how do we get public understanding based on scientific-ly supported evidence? *Journal of Radiation Research*. 2021;62(4): 557–563. DOI:10.1093/jrr/rrab029.
- Kaizer J, Kontu I, Povinec PP. Impact of the Fukushima Accident on 3H and 14C Environmental Levels: A Review of Ten Years of Investigation. *Molecules*. 2023;28(6).
- Turchenko DB, Lukashenko SN, Aidarkhanov AO, Lyakhova OA. Study of the content of tritium in the snow cover in the places of underground nuclear explosions. *Radiatsionnaya biologiya. Radioekologiya = Radiation biology. Radioecology*. 2018. T. 58, No 2. P. 174-182 (In Russian).
- Tritium as an indicator of the radioecological situation in the area of a peaceful underground nuclear explosion "Kristal". *Astrakhanskiy vestnik ekologicheskogo obrazovaniya = Astrakhan Bulletin of Environmental Education*. 2019; 4: 4-13. (In Russian).
- Ramzaev VP, Biblin AM, Repin VS, Khrantsov EV, Varfolomeeva KV. Tritium contamination of surface and ground waters at the "Dnepr" peaceful underground nuclear explosions site. *Radiatsionnaya Gygiena = Radiation Hygiene*. 2022;15(1): 6-26. (In Russian).
- Polivkina YeN, Larionova NV, Lukashenko SN, Lyakhova ON, Abisheva MT, Subbotina LF, et al. Assessment of the tritium distribution in the vegetation cover in the areas of underground nuclear explosions at the Semipalatinsk test site. *Journal of Environmental Radioactivity*. 2021;237:67-85. DOI: 10.1016/j.jenvrad.2021.106705.
- Ramzaev V, Repin V, Medvedev A, Khrantsov E, Timofeeva M, Yakovlev V. Radiological investigations at the "Taiga" nuclear explosion site: Site description and in situ measurements. *Journal of environmental radioactivity*. 2011;102: 672-680.
- Makhonko KP, Kim VM, Katrich IYu, Volokitin AA. Comparative behavior of tritium and 137Cs in the atmosphere. *Atomnaya energiya = Atomic energy*. 1998;85(4): 313-318. (In Russian).
- Radiation situation on the territory of Russia and neighboring countries in 2022. Yearbook. NPO "Typhoon". Obninsk, 2022. Available from: https://www.rpatyphoon.ru/upload/medialibrary/ezhegodniki/ro/ezhegodnik_ro_2022.pdf (Accessed 28.07.2023) (In Russian).
- Buesseler KO. Opening the floodgates at Fukushima. *Science*. 2020;369(6504): 621-622.
- Radiation situation on the territory of Russia and neighboring states in 2009. Yearbook. NPO Typhoon. Obninsk, 2009. Available from: https://www.rpatyphoon.ru/upload/medialibrary/ezhegodniki/ro/ezhegodnik_ro_2009.pdf (Accessed 28.07.2023). (In Russian).
- Varlam C, Stefanescu I, Dului OG, Faurescu I, Popescu I. Applying direct liquid scintillation counting to low level tritium measurement. *Applied Radiation and Isotopes*. 2009;67(5): 812-816.
- Arun B, Vijayalakshmia I, Sivasubramaniana K, Jose MT. Optimization of liquid scintillation counter for tritium estimation in water samples. *Radiochemistry*. 2019;61(1): 61–65.

Received: July 24, 2023

For correspondence: Viktor S. Repin – Doctor of Biological Sciences, Head of Ecology Laboratory of Saint-Petersburg Research Institute of Radiation Hygiene after Professor P.V. Ramzaev, Federal Service for Surveillance on Consumer Rights Protection and Human Well-Being (Mira Str., 8, Saint-Petersburg, 197101, Russia; E-mail: V.Repin@mail.ru)

Kseniya V. Varfolomeeva – Junior Researcher, Laboratory of Ecology, Saint-Petersburg Research Institute of Radiation Hygiene after Professor P.V. Ramzaev, Federal Service for Surveillance on Consumer Rights Protection and Human Well-Being, Saint-Petersburg, Russia

Svetlana A. Zelentsova – Junior Researcher, Laboratory of Ecology, Saint-Petersburg Research Institute of Radiation Hygiene after Professor P.V. Ramzaev, Federal Service for Surveillance on Consumer Rights and Human Well-Being, Saint-Petersburg, Russia

Konstantin A. Sednev – Acting Junior Researcher, Saint-Petersburg Research Institute of Radiation Hygiene after Professor P.V. Ramzaev, Federal Service for Surveillance on Consumer Rights Protection and Human Well-Being, Saint-Petersburg, Russia

Genrietta V. Arkhangelskaya – Doctor of Medical Sciences, Chief Researcher, Laboratory of Ecology, Saint-Petersburg Research Institute of Radiation Hygiene after Professor P.V. Ramzaev, Federal Service for Surveillance on Consumer Rights and Human Well-Being, Saint-Petersburg, Russia

For citation: Repin V.S., Varfolomeeva K.V., Zelentsova S.A., Arkhangelskaya G.V., Sednev K.A. Methodological features of monitoring the long-term dynamics of low levels of tritium in the environment. *Radiatsionnaya Gygiena = Radiation Hygiene*. 2023. Vol. 16, No. 3. P. 91-100. (In Russian). DOI: 10.21514/1998-426X-2023-16-3-91-100