

В.Н. Клочков, Л.И. Кузнецова, Н.А. Еремина, Д.И. Кабанов, А.А. Максимов,
С.В. Березин, А.А. Андросова, Е.В. Клочкова, П.П. Сурин, В.К. Величко

МЕТОДИЧЕСКИЕ ПОДХОДЫ К МОНИТОРИНГУ УГЛЕРОДА-14 ДЛЯ КОНТРОЛЯ ЕГО РАДИАЦИОННОГО ВОЗДЕЙСТВИЯ НА ПЕРСОНАЛ И НАСЕЛЕНИЕ

Федеральный медицинский биофизический центр имени А.И. Бурназяна ФМБА России, Москва

Контактное лицо: Клочков Владимир Николаевич: vnklochkov22@mail.ru

РЕФЕРАТ

Цель: Анализ современной нормативно-методической базы по мониторингу дозы облучения персонала и населения, проживающего в зоне наблюдения АЭС, за счет поступления ^{14}C . Определение наиболее информативных методов контроля радиационного воздействия ^{14}C на человека.

Материал и методы: Выполнен анализ научной литературы по радиационному воздействию ^{14}C природного происхождения, ^{14}C , поступившего в природную среду в результате испытаний ядерного оружия, и ^{14}C , поступающего в рабочие помещения и зону наблюдения АЭС. Обобщены представленные в материалах МКРЗ, МАГАТЭ и НКДАР ООН дозовые коэффициенты и другие радиационные характеристики ^{14}C .

Результаты: По данным НКДАР ООН, годовая дозовая нагрузка, обусловленная глобальным ^{14}C , является наибольшей (около 80 %) среди дозовых нагрузок, создаваемых четырьмя важнейшими естественными космогенными радионуклидами: ^3H (0,01 мкЗв/год), ^7Be (3,0 мкЗв/год), ^{14}C (12 мкЗв/год) и ^{24}Na (0,2 мкЗв/год). Для ^{14}C основным является алиментарный путь поступления, при котором этот радионуклид поступает в организм человека в составе пищевых продуктов. Годовая доза, обусловленная этим видом поступления глобального ^{14}C , может достигать 40 мкЗв. Аэрогенный (воздушный) путь поступления глобального ^{14}C в организм человека создает годовую дозу не более 1 мкЗв.

Для оценки дозы облучения персонала АЭС и населения, проживающего в зоне наблюдения, наиболее информативными являются методы определения содержания ^{14}C в плодородном слое почвы, в растительности и продуктах питания.

Выводы: При работе АЭС в природную среду в пределах зоны наблюдения поступает значительное количество ^{14}C , приводящее к дозе облучения населения, превышающей дозу от воздействия глобального ^{14}C . Наиболее информативными объектами, характеризующими содержание техногенного ^{14}C в зоне наблюдения АЭС, являются плодородный слой грунта (гумус) и растительность. Метод жидкостной сцинтилляционной спектрометрии, включающий пробоподготовку путем сжигания проб в кислороде с улавливанием образующегося углекислого газа и переводом его в состав органического растворителя, является в настоящее время наиболее технологически приемлемым для массового контроля содержания ^{14}C в пробах плодородного грунта и растительности.

Ключевые слова: радиационная безопасность, углерод-14, методы мониторинга, доза внутреннего облучения, почва, растительность

Для цитирования: Клочков В.Н., Кузнецова Л.И., Еремина Н.А., Кабанов Д.И., Максимов А.А., Березин С.В., Андросова А.А., Клочкова Е.В., Сурин П.П., Величко В.К. Методические подходы к мониторингу углерода-14 для контроля его радиационного воздействия на персонал и население // Медицинская радиология и радиационная безопасность. 2021. Т. 66. № 6. С.10–17.

DOI: 10.12737/1024-6177-2021-66-6-10-17

Введение

Углерод является основой жизни на Земле. Он участвует в большинстве биологических, биохимических и биогеохимических процессов и является основой всей органической материи: содержание углерода в молекулах белков составляет около 52 %, в молекулах ДНК и РНК – около 37 % [1].

Природный углерод содержит три изотопа. Два из них ^{12}C и ^{13}C являются стабильными, которые в естественной смеси изотопов углерода составляют 98,892 % и 1,108 % соответственно. Радиоактивный изотоп ^{14}C (радиоуглерод) составляет около 10^{-10} % по массе [2]. Природный ^{14}C образуется в верхних слоях тропосферы и стратосферы в результате поглощения тепловых нейтронов атомами ^{14}N , которые в свою очередь являются результатом взаимодействия космических лучей и вещества атмосферы [2].

^{14}C имеет период полураспада $5,73 \cdot 10^3$ лет. В результате бета-распада образуется стабильный нуклид ^{14}N . Выделяемая при распаде энергия равна 156,5 кэВ. Максимальная энергия бета-частиц составляет 155 кэВ, средняя энергия – 45 кэВ. Гамма-излучение отсутствует.

Максимальный пробег бета-частиц в воде и биологической ткани составляет 380 мкм, средний пробег равен ~ 50 мкм, что сопоставимо с размерами большинства биологических клеток. Это означает, что при распаде атома ^{14}C , находящегося в биологической ткани, вся энергия бета-частиц поглощается в одной-двух клетках. При распаде атома ^{14}C в межклеточной жидкости бета-частица может и не достичь биологической клетки. Указанные особенности

распада ^{14}C приводят к крайней пространственной неравномерности распределения поглощенной энергии ионизирующего излучения, что накладывает ограничения на применение классических дозиметрических подходов для определения дозы облучения биологических тканей. Для дозиметрии ^{14}C целесообразно применять микродозиметрические подходы, в частности, предложенные В.И. Ивановым и В.Н. Лысцовым [3] и успешно применяемые в аналогичной ситуации для дозиметрии ^3H [4].

Углерод постоянно участвует в обменных процессах в атмосфере, биосфере (растительность, в первую очередь леса), почве (гумус), в осадочных материалах (торф, карбонаты), в поверхностных и глубинных водах океанов. В результате этих сложных обменных процессов равновесное количество природного ^{14}C в атмосфере остается постоянным на уровне $(1,4 - 2,2) \cdot 10^{17}$ Бк [5, 6].

Техногенный радиоуглерод

Мощным источником образования радиоуглерода явились испытания ядерного оружия в 1950–1980 гг., в результате которых количество ^{14}C в природной среде значительно возросло.

Максимальная удельная активность техногенного ^{14}C в атмосфере зарегистрирована в 1965 г., когда его уровень превысил естественный фон примерно в два раза – до 400 Бк/кг [7]. После прекращения испытаний ядерного оружия в атмосфере содержание ^{14}C постоянно снижается и в настоящее время составляет около 238 Бк/кг [8]. Такой быстрый процесс самоочищения атмосферы обусловлен,

Таблица 1

Медианные значения средних годовых удельных показателей выбросов ^{14}C [11, 14–16]
 Median values of average annual specific emission indicators ^{14}C [11, 14–16]

Тип реактора	Медианное значение средних годовых удельных показателей выбросов Бк/(ГВт·ч)	Ориентировочное значение выброса, Бк/год для реактора мощностью 1 ГВт(эл.)	Ориентировочная объемная активность ^{14}C в воздухе, выбрасываемом через вентиляционную трубу, Бк/м ³ *
GCR – газоохлаждаемый реактор	$0,56 \cdot 10^9$	$4,9 \cdot 10^{12}$	1100
РБМК – каналный уран-графитовый реактор		$(0,6 - 4) \cdot 10^{12}$	160 – 1000
AGR – улучшенный реактор с газовым охлаждением	$0,16 \cdot 10^9$	$1,4 \cdot 10^{12}$	320
LWGR – графито-водный ядерный реактор	$0,15 \cdot 10^9$	$1,3 \cdot 10^{12}$	300
BWR – корпусной кипящий реактор	$0,06 \cdot 10^9$	$0,5 \cdot 10^{12}$	120
ВВЭР – водо-водяной реактор	$0,05 \cdot 10^9$	$0,4 \cdot 10^{12}$	100
PHWR – тяжеловодный ядерный реактор	$0,04 \cdot 10^9$	$0,3 \cdot 10^{12}$	80
PWR – водо-водяной ядерный реактор	$0,02 \cdot 10^9$	$0,2 \cdot 10^{12}$	40
FBR – реактор-размножитель на быстрых нейтронах	$0,01 \cdot 10^9$	$0,1 \cdot 10^{12}$	20

Примечание: * – При расчете принят объем выбрасываемого через вентиляционную трубу воздуха $0,5 \cdot 10^6$ м³/ч

в первую очередь, интенсивным массообменом с мировым океаном, а также разбавлением углекислого газа, содержащегося в атмосфере, углекислым газом, образующимся при сжигании ископаемого топлива (уголь, нефть, газ и др.), в котором радиоактивный ^{14}C почти полностью распался. Объемная активность глобального ^{14}C в воздухе равна $0,04$ Бк/м³.

В настоящее время основным источником техногенного ^{14}C является ядерная энергетика. Этот нуклид образуется в активной зоне ядерных реакторов любого типа, где существуют мощные потоки нейтронов, которые взаимодействуют с материалами конструкций реактора, с веществом теплоносителя, замедлителя, топлива и имеющимися в них примесями по реакциям: ^{14}N (n, p) ^{14}C ; ^{17}O (n, α) ^{14}C ; ^{13}C (n, γ) ^{14}C ; ^{235}U (n, f) ^{14}C (тройное деление урана-235 в топливе) [9]. По данным IRSN [8], интенсивность образования ^{14}C зависит от спектра и потока нейтронов, от сечения, взаимодействия и концентрации следующих элементов-мишеней: уран, плутоний, азот и кислород.

Образовавшийся в активной зоне ^{14}C выделяется из теплоносителя первого контура в газообразной форме в виде диоксида углерода (CO_2), оксида углерода (CO), метана (CH_4) и в конечном итоге выбрасывается через систему вентиляции. Возможен выход ^{14}C в окружающую среду в составе сбросов в виде растворенного в воде диоксида углерода или в виде растворенных карбонатов.

По разным оценкам, интенсивность годового образования ^{14}C для легководного реактора (под давлением или с кипящей водой) составляет от $0,5$ до $1,9 \cdot 10^{12}$ Бк/ГВт·год, при этом имеются сведения, что в воде первого контура ^{14}C , главным образом, принимает органические формы, в основном в виде метана [8, 10], который в атмосфере в результате взаимодействия с окислами азота и кислородом постепенно окисляется до углекислого газа. Метан, как легкий газ, также достаточно быстро переносится в верхние слои атмосферы. Таким образом, химический состав соединений ^{14}C , выделяемых в атмосферный воздух в составе выброса АЭС, может быть разнообразным, хотя наиболее устойчивой формой является углекислый газ.

Суммарный выброс ^{14}C в результате деятельности АЭС мира за период их функционирования (1955 – 2016 гг.) составил около 10^{16} Бк, что формирует не более 1 % интегральной активности ^{14}C в атмосфере [11].

Годовой удельный выброс ^{14}C на единицу произведенной энергии различен для АЭС с разными типами реакторных установок. По этому показателю АЭС располагаются в следующей последовательности: GCR > AGR > LWGR(РБМК) > BWR > PHWR > PWR(ВВЭР) [11 – 13]. Обобщение средних годовых удельных показателей выбросов ^{14}C для реакторов различных типов за период с 1995 по 2016 гг. [11–16] позволило получить приведенные в табл. 1 значения среднего выброса на единицу произведенной электроэнергии.

Поскольку радионуклид ^{14}C поступает с АЭС в окружающую среду в основном с выбросом в виде газов, представляется интересным оценить ориентировочную объемную активность ^{14}C в воздухе в вентиляционной трубе АЭС. Приняв ориентировочно объем выбрасываемого через вентиляционную трубу воздуха для энергоблока мощностью 1 ГВт равным $0,5 \cdot 10^6$ м³/час, получили оценки среднегодовой объемной активности воздуха, приведенные в четвертом столбце табл. 1.

Сопоставление результатов данной оценки с указанной выше объемной активностью природного ^{14}C в атмосферном воздухе ($0,04$ Бк/м³) и с установленной НРБ-99/2009 [17] допустимой среднегодовой объемной активностью ^{14}C в атмосферном воздухе для населения (55 Бк/м³) показывает, что с учетом многократного разбавления выбрасываемого из трубы воздуха маловероятно достижение в какой-либо точке зоны наблюдения вокруг АЭС объемной активности ^{14}C , приводящей к значимой дозе ингаляционного поступления радионуклида в организм человека. В статье [16] приведены измеренные значения объемной активности ^{14}C в вентиляционных трубах Смоленской, Ленинградской, Курской и Билибинской АЭС: минимальное значение 24 Бк/м³, максимальное – 3900 Бк/м³, что подтверждает обоснованность наших оценок. При этом показано, что объемная активность ^{14}C в атмосферном воздухе в критических точках местности не превышает $2,7$ Бк/м³. Таким образом, опубликованные результаты исследований свидетельствуют о быстром рассеянии ^{14}C в атмосфере, что приводит к малой значимости ингаляционного поступления ^{14}C в организм лиц из населения, проживающих в зоне наблюдения.

Распоряжением Правительства Российской Федерации от 08.07.2015 № 1316-р [18] радионуклид ^{14}C от-

Таблица 2

Дозовые коэффициенты, пределы годового поступления и допустимая среднегодовая объемная активность соединений ^{14}C [17, 20]
Dose coefficients, limits of annual intake and permissible average annual volume activity of compounds ^{14}C [17, 20]

	Публикация 134 МКРЗ [20]	НРБ-99/2009 [17]		
	Дозовый коэффициент, Зв/Бк	Дозовый коэффициент, Зв/Бк	Предел годового поступления с воздухом, Бк/год	Допустимая среднегодовая объемная активность воздуха, Бк/м ³
Вдыхание газов или паров				
		Для персонала		
Оксид углерода (CO)	$1,8 \cdot 10^{-12}$	$8,0 \cdot 10^{-13}$	$2,5 \cdot 10^{10}$	$1,0 \cdot 10^7$
Диоксид углерода (CO ₂)	$1,3 \cdot 10^{-11}$	$6,2 \cdot 10^{-12}$	$3,2 \cdot 10^9$	$1,3 \cdot 10^6$
Метан (CH ₄)	$5,1 \cdot 10^{-14}$			
Неопределенные	$1,7 \cdot 10^{-10}$			
Элементарный углерод		$5,8 \cdot 10^{-10}$	$3,4 \cdot 10^7$	$1,4 \cdot 10^4$
Вдыхаемые твердые частицы (аэрозоли с АМАД 5 мкм)				
Тип F, карбонат бария	$1,3 \cdot 10^{-11}$			
Тип F	$1,1 \cdot 10^{-10}$			
Тип M, все неопределенные соединения	$5,8 \cdot 10^{-10}$			
Тип S, элементарный углерод, тритид углерода	$6,7 \cdot 10^{-9}$			
Для населения				
Поступление с воздухом		$2,5 \cdot 10^{-9}$ (критическая группа – дети в возрасте 12–17 лет)	$4,0 \cdot 10^5$	$5,5 \cdot 10^1$
Поступление с пищей, все химические формы	$1,6 \cdot 10^{-10}$	$1,6 \cdot 10^{-9}$ (критическая группа – дети в возрасте 1–2 года)	$6,3 \cdot 10^5$	

Примечание: АМАД – аэрозольный медианный активностный диаметр

несен к числу нуклидов, содержание которых должно обязательно контролироваться в атмосферном воздухе и в водных объектах. Согласно результатам радиационно-технических обследований, проведенных на АЭС России, ^{14}C входит в число пятнадцати радионуклидов, определяющих не менее 99 % дозы облучения критической группы населения от источников выбросов АЭС [19].

Воздействие радиоуглерода на человека

Научные данные, характеризующие биологические процессы при поступлении ^{14}C в организм человека и животных, обобщены в Публикации 134 МКРЗ [20].

Ингаляционный путь воздействия оксида углерода, диоксида углерода и метана имеет следующие характеристики.

Оксид углерода. Угарный газ легко проникает через мембраны газообмена. Хотя угарный газ имеет низкую растворимость в биологических жидкостях, после поглощения в легочной циркуляции он связывает молекулы гемоглобина в красных кровяных клетках. При поступлении угарного газа происходит эффективное поглощение 40 % вдыхаемой активности в дыхательных путях с мгновенным поглощением. Предполагается, что ^{14}C -карбоксигемоглобин задерживает и высвобождает ^{14}C в окружающую среду через легкие с биологическим периодом полувыведения 200 мин.

Диоксид углерода. Выведение в окружающую среду углекислого газа, поступающего в кровь в результате метаболизма углерода в тканях, является одной из основных функций дыхательной системы. Из-за очень высокой растворимости диоксида углерода и связанного с ним бикарбоната иона в тканевых жидкостях, углекислый газ

проникает через альвеолярную мембрану в 20 раз быстрее, чем кислород. Поэтому, несмотря на чистый приток диоксида углерода в альвеолярное пространство, вдыхание радиоактивного CO₂ быстро уравнивается диоксидом/бикарбонатом, выводимыми из организма через кровь. Исходя из этого, для диоксида углерода предполагается, что 100 % его задерживается в дыхательных путях с мгновенным поглощением.

Метан. Для метана предполагается, что в дыхательных путях мгновенно поглощается 0,3 % от поступившего количества.

Пероральное поступление с пищей и жидкостями
Поглощение углерода из желудочно-кишечного тракта сильно зависит от его химической формы. В Публикации 30 МКРЗ [21] дана рекомендация, чтобы в отсутствие конкретной информации об органических соединениях, содержащих радиоактивные изотопы углерода, считать, что они полностью всасываются в желудочно-кишечном тракте, и эта рекомендация сохраняется для всех химических форм углерода.

В табл. 2 обобщены значения дозовых коэффициентов и пределов поступления ^{14}C , представленные в Публикации 134 МКРЗ [20] и в НРБ-99/2009 [17].

Как видно из табл. 2, в результате обобщения накопленных знаний о радиационных и радиобиологических характеристиках ^{14}C в международных и российских нормативных документах установлены дозовые коэффициенты, необходимые для оценки дозы внутреннего облучения. Расхождения в значениях дозовых коэффициентов в российских и международных документах обусловлены, главным образом, различием в определении критических групп населения и путей поступления радионуклида в организм.

Таблица 3

Поступление и выведение углерода из организма взрослого мужчины
Intake and excretion of carbon from the body of an adult male

Поступление: 300 г в сутки [24]				
Выведение:				
Выделяемая среда	Выдыхаемый воздух	Моча	Кал	Остальное
Выведение углерода, г в сутки [24]	270	5,0	7,0	18
Выведение природного ¹⁴ C, Бк в сутки (расчет)	71	1,2	1,7	4,2
Условие отбора пробы для достижения содержания в пробе 1 Бк глобального ¹⁴ C (расчет)	Объем воздуха, выдыхаемого не менее чем за 20 минут	Суточное количество	Суточное количество	Нет возможности сбора пробы

По данным НКДАР ООН, содержание ¹⁴C в организме человека составляет порядка 2700 Бк. Обусловленная ¹⁴C дозовая нагрузка является наибольшей (около 80 %) среди дозовых нагрузок, создаваемых четырьмя важнейшими естественными космогенными радионуклидами: ³H (0,01 мкЗв/год), ⁷Be (3,0 мкЗв/год), ¹⁴C (12 мкЗв/год) и ²⁴Na (0,2 мкЗв/год) [22, 23].

Используя приведенные выше данные, можно оценить значимость различных путей поступления глобального радиоактивного углерода в организм человека.

1. Основным является алиментарный путь, при котором этот радионуклид поступает в организм в составе пищевых продуктов. Первоначально радионуклид ¹⁴C инкорпорируется в биомассу растений путем фотосинтеза из углекислого газа, затем из биомассы растений переходит в биомассу животных и далее по пищевым цепочкам из растительных и животноводческих продуктов поступает в организм человека. Ежедневно с пищевыми продуктами в организм условного человека поступает 300 г углерода [24], т.е. 109,5 кг/год, что с учетом приведенного в НРБ-99/2009 дозового коэффициента $1,6 \cdot 10^{-9}$ Зв/Бк (см. выше в табл. 2) приводит к значению эффективной дозы 40 мкЗв/год. Сопоставление этого значения с оценкой дозы в отчете НКДАР ООН [22] показывает, что приведенный в НРБ-99/2009 дозовый коэффициент $1,6 \cdot 10^{-9}$ Зв/Бк установлен для критической группы населения «дети в возрасте 1 – 2 года». Вследствие этого он имеет консервативный запас не менее 3 раз.
2. Аэрогенный (воздушный) путь поступления глобального ¹⁴C в организм человека не имеет сколько-нибудь значимого значения, так как за год человек пропускает через легкие около $8,1 \cdot 10^3$ м³ воздуха [17], в котором содержится около 4,8 кг углекислого газа (1,3 кг углерода), что составляет около 1,2 % от поступившего с пищей. Используя приведенный в НРБ-99/2009 [17] дозовый коэффициент поступления для углекислого газа, получим эффективную дозу 0,75 мкЗв/год.

Однако следует отметить, что полученные в пп. 1) и 2) оценки дозы относятся к глобальному ¹⁴C. Необходимо учитывать, что население, проживающее в зоне наблюдения атомной станции, постоянно дышит воздухом с повышенным содержанием ¹⁴C. При этом пищевые продукты местного производства составляют лишь часть рациона питания. С учетом этого фактора соотношение между дозами за счет перорального и ингаляционного поступления может измениться в сторону увеличения вклада ингаляционного поступления ¹⁴C.

Методы оценки дозы облучения человека за счет воздействия радиоуглерода

Дозу облучения человека за счет поступления радионуклида в организм можно оценивать следующими способами:

1. По результатам оценки среднесуточного содержания ¹⁴C в организме путем измерения излучения, испускаемого телом человека. Данный способ измерения невозможен ввиду отсутствия гамма-излучения при распаде ¹⁴C.
2. По результатам оценки среднесуточного содержания ¹⁴C в организме путем измерения выделяемых организмом биосубстратов (выдыхаемый воздух, моча, кал). В Публикации 23 МКРЗ [24] приведены данные по поступлению и выведению углерода из организма взрослого мужчины. Исходя из приведенных данных, можно рассчитать характеристики сред, выводимых из организма, а также определить требования к методике контроля их удельной активности. Данные из Публикации 23 МКРЗ и результаты наших расчетов представлены в табл. 3. Представленные в табл. 3 расчетные данные об объемах проб воздуха, мочи и кала, позволяющих определить содержание ¹⁴C на уровне более 1 Бк на пробу, показывают, что метод сбора и анализа биосубстратов населения, проживающего в зоне наблюдения АЭС, очень сложен для практического применения и сопряжен с целым рядом трудностей юридического и организационного характера. Он требует больших трудозатрат. Также следует учитывать, что результат измерения содержания ¹⁴C в суточном количестве кала будет включать ¹⁴C, содержащийся в неперевариваемых в кишечнике органических веществах (например, клетчатка, грубые пищевые волокна и т.п.), поступивших с растительной пищей и прошедших транзитом через желудочно-кишечный тракт без создания дозы облучения биологических тканей.
3. Путем оценки поступления радиоуглерода в организм. Для такой оценки необходимо знать удельную активность ¹⁴C в пищевых продуктах, производимых в зоне наблюдения АЭС, а также их вклад в пищевую корзину населения.

Наиболее объективным критерием загрязнения пищевых продуктов, производимых в зоне наблюдения АЭС, является содержание ¹⁴C в плодородном слое грунта (гумусе) и в растительности. Содержание ¹⁴C в мясных и молочных продуктах можно оценить с учетом доли кормов местного производства в общем объеме кормов, используемых в животноводстве.

Плодородная почва (гумус) является долговременным «аккумулятором» ¹⁴C. Переход углерода из углекислого газа воздуха в гумус происходит по цепочке воздух – развивающееся растение – отмершее растение – гумус. Т.е. этот процесс занимает несколько лет, и содержание ¹⁴C в гумусе является усредненной величиной за несколько лет. В то же время содержание ¹⁴C в растениях непосредственно зависит от объемной активности ¹⁴C в атмосферном воздухе и может существенно изменяться в течение вегетационного периода, т.е. эта величина характеризует среднее содержание ¹⁴C в приземном слое воздуха в течение вегетационного периода (4–5 летних месяцев).

Для оценки дозы внутреннего облучения населения по результатам анализа содержания ^{14}C в плодородном слое почвы и в растительности необходимо привлечь информацию о доле пищевых продуктов местного питания в пищевой корзине населения, проживающего в зоне наблюдения АЭС. Официальные данные о годовом потреблении пищевых продуктов городским и сельским населением, проживающим в зоне расположения российских АЭС, представлены в методических указаниях [25]. Частично сведения о доле продуктов местного производства приведены в статье [16].

Методы измерения проб объектов внешней среды для определения активности радиоуглерода

При определении содержания ^{14}C в воздухе и в пробах окружающей среды большие трудности обусловлены широким диапазоном значений удельной активности ^{14}C в пробе: от активности глобального ^{14}C 227 – 240 Бк до значений 10^5 – 10^7 Бк на кг углерода. Это приводит к ряду методических трудностей при организации контроля за содержанием ^{14}C . Измерение проб ^{14}C осложняется низкой энергией бета-частиц ^{14}C , что не позволяет использовать для измерения препараты большого объема вследствие поглощения излучения веществом препарата (самопоглощение).

Неизбежное присутствие посторонних радиоактивных примесей требует тщательной очистки проб и выделения ^{14}C в радиохимически чистом состоянии. Указанные особенности определения ^{14}C должны быть совместимы с требованием оперативности дозиметрического контроля, что подразумевает минимальные затраты времени и средств на отбор и подготовку проб, максимальную простоту выполняемых операций при измерении активности проб, пригодность метода в широком диапазоне активности проб, возможность повторного измерения одной и той же пробы.

Наиболее простым и удобным является метод определения активности газообразных соединений углерода, получаемых из исследуемых проб. Такие образцы могут быть измерены с помощью ионизационной камеры, счетчиков с внутренним наполнением, работающих в пропорциональной или гейгеровской области, и сцинтилляционных счетчиков. Для этой цели используются такие углеродсодержащие газы, как углекислый газ (CO_2), метан (CH_4), этан (C_2H_6), ацетилен (C_2H_2), пары бензола (C_6H_6) [2]. Однако использование ионизационной камеры и счетчиков с внутренним газовым наполнением не позволяет достичь требуемой высокой чувствительности для измерения проб с активностью ^{14}C , близкой к фоновым значениям: с их помощью можно измерить пробы с активностью не менее 1 МБк [2].

В настоящее время наибольшее распространение получил жидкостной сцинтилляционный ЖСС метод измерения ^{14}C , который предпочтителен для проб с очень низкой удельной активностью ^{14}C . При его использовании полученный из образца углеродсодержащий газ превращают в жидкость, которую можно хранить и исследовать в небольшом стеклянном сосуде. В жидкость добавляют сцинтиллятор, что позволяет регистрировать низкоэнергетическое бета-излучение в толстом образце. Современные жидкостные сцинтилляционные спектрометры (например, Quantulus 1220, Tri-Carb) [26] характеризуются очень низким, почти нулевым, фоновым излучением, что позволяет измерять образцы с естественным (и даже ниже) содержанием ^{14}C . Одной из лучших органических жидкостей, применяемой в настоящее время в жидкостных сцинтилляционных спектрометрах, является бензол. В жидком сцинтилляторе, приготовленном на его основе,

содержание углерода из исследуемого материала может достигать ~ 92 %. В счетных образцах, приготовленных на основе других растворителей, таких как, например, толуол или этилбензол, содержание углерода из исследуемого образца составляет лишь незначительную часть, 13 % и 23 % соответственно.

При выборе счетной формы ^{14}C и схемы её выделения из углерода исследуемой пробы необходимо учитывать три основных фактора.

Первый фактор: влияние введения носителя, содержащего ^{14}C , на сцинтилляционную эффективность системы. Если полученное из пробы вещество не снижает значительно эффективность жидкого сцинтиллятора, то оно может быть использовано для измерения ^{14}C . С этой точки зрения предпочтительно получать из природных материалов непосредственно растворители жидкого сцинтиллятора (ароматические углеводороды).

Второй фактор: концентрация исследуемого углерода как в молекуле вещества-носителя, так и в объеме жидкого сцинтиллятора. Высокое содержание ^{14}C позволяет работать с малыми объемами жидкого сцинтиллятора, что улучшает отношение скорости счета образца к скорости счета фона, увеличивая тем самым точность измерения ^{14}C .

Поэтому ароматические углеводороды, которые содержат в молекуле свыше 90 % углерода и составляют основную часть жидкого сцинтиллятора, обладают несомненным преимуществом перед всеми другими счетными формами. Введение же в состав жидкого сцинтиллятора какого-либо разбавителя (например, смеси гексана с октаном), даже с большим содержанием углерода в молекуле, не позволяет создать высокой концентрации углерода в объеме детектора из-за эффекта тушения сцинтилляций. Этот же фактор обуславливает нежелательность использования частично меченных по исследуемому углероду соединений (например, толуол).

Третий фактор: суммарный выход конечного продукта по углероду из пробы, а также легкость получения счетной формы из разнообразных природных материалов. Чем короче путь получения счетного образца, то есть чем меньше времени длится пробоподготовка, тем меньше процент потерь радионуклида из пробы, неопределенность при анализе пробы, а также стоимость получения счетного образца, что существенно при измерении большого количества проб. По этому фактору приемлемость ЖСС-метода на основе бензола ставится под сомнение, так как предварительная обработка проб и подготовка счетного образца этим методом, в основном проводимая по общепринятой методике [27], состоит из 6 стадий и занимает более двух суток. Это является существенным недостатком при измерении большого числа проб.

В настоящее время наиболее приемлемым способом пробоподготовки (получения счетного образца) является сжигание отобранной пробы в кислороде. Подготовка проб методом окисления и сжигания позволяет анализировать твердые, жидкие и нерастворимые препараты, анализ которых нередко затрудняют геометрические факторы и/или самопоглощение. Кроме того, окисление устраняет фактор цветового гашения, а при химическом гашении уменьшает фон детектора и разброс отсчетов [28].

Так, например, разновидностью традиционного ЖСС-метода является методика прямой абсорбции CO_2 сцинтиллятором [25]. При этом используется сжигание образца в кислороде, пропускание CO_2 через органический коктейль – сорбент Carbo-sorb[®], который захватывает углекислый газ и образует нелетучее соединение – карбамат, и последующее измерение активности образца с помощью сцинтилляционного спектрометра [28]. Также могут быть применены замкнутые циркулирующие си-

стемы с камерой для сбора и насыщения углекислым газом [29]. Такие модификации увеличивают эффективность данного метода, хотя он и является менее точным, чем использование ЖСС-метода на основе бензола.

Например, установка для окисления проб Sample Oxidizer 307 (Perkin Elmer, США) [29] предназначена для автоматизированной подготовки проб, используемых при жидкостном сцинтилляционном анализе. Прибор автоматически осуществляет окисление пробы и сбор образовавшихся при окислении радионуклидов – ^3H и ^{14}C – в индивидуальные счётные флаконы. Проба сжигается в потоке кислорода. Сжигание пробы приводит к окислению всех изотопов углерода (включая углерод-14) и трития с образованием углекислого газа и воды. Пройдя систему сбора оксида трития, газ поступает в систему сбора углерода-14 и накапливается в реакционной колонне, заполненной абсорбентом CARBO-SORB®. Абсорбент улавливает радиоактивную двуокись углерода CO_2 и образует карбамат, который с помощью сцинтиллятора углерода-14 PERMAFLUOR® E+ смывается в счётный флакон для сбора ^{14}C . Выход радиоуглерода, собранного таким образом, составляет более 97 % [29].

Прибор обеспечивает обработку до 240 образцов в сутки без учета времени на смену образца, что является очень высокой производительностью и очень удобно для измерения большого количества проб. Еще одним несомненным преимуществом этого метода является широкий диапазон детектирования.

К недостаткам данного метода следует отнести дороговизну прибора и отсутствие возможности пробоподготовки иным способом, кроме как запрограммированно в приборе.

Недостатки установки Sample Oxidizer 307 были учтены при разработке специализированной печи Pyrolyser-6 Trio™ (Великобритания), которая была разработана для извлечения летучих радионуклидов ^3H и ^{14}C (в виде НТО и CO_2) из различных видов проб, в том числе из почвы, строительных материалов, металлов и растительности [30].

Принцип работы Pyrolyser-6 Trio заключается в том, что воздух пропускается через пробу, находящуюся в рабочей трубке прибора, которая постепенно нагревается до максимальной температуры. До завершения цикла дополнительно к воздуху подается кислород, что обеспечивает полное окисление пробы. В зоне каталитического разложения продукты сгорания пробы пропускаются через глиноземный катализатор с платиновым покрытием, нагретый до 800 °С. Все отмеченные радиоуглеродом ионы преобразуются в диоксид углерода, который улавливается ловушками с органическим коктейлем – сорбентом CarbonTrap. Активность ^{14}C в ловушках определяется при помощи сцинтилляционного счетчика. Данный метод позволяет улавливать до 95 % углерода-14 из твердых проб.

Несомненным преимуществом этого устройства, по сравнению с Sample Oxidizer 307, является возможность самостоятельно регулировать параметры сжигания пробы, такие как температура зоны загрузки пробы, массу навески пробы, скорость нагрева и др., а также наличие встроенных режимов для подготовки проб различных образцов (растительность, рыба, почва, бетон, металл и пр.). Предел обнаружения ^{14}C номинально составляет 0,010 Бк/г пробы (для пробы массой 5 г и времени измерения 2 часа), что является очень высокой чувствительностью измерения. Существенно также, что Pyrolyser-6 Trio в два раза дешевле Sample Oxidizer.

В последние годы наиболее точным инструментом для определения содержания ^{14}C и проведения радио-

углеродного датирования стал метод изотопной масс-спектрометрии [31]. Наиболее совершенными масс-спектрометрами, пригодными для определения содержания радиоуглерода в пробах, являются ускорительные масс-спектрометры.

Данный метод основывается на том, что атомы разных изотопов (и веществ, состоящих из них) имеют разную массу. Образцы вещества окисляются до образования углекислого газа (остальные оксиды удаляются), затем полученный газ ионизируется и на высокой скорости проходит через магнитную камеру, где заряженные ионы отклоняются от исходной траектории. При этом образуются пучки ионов ^{12}C , ^{13}C и ^{14}C . Количество ионов в каждом пучке регистрируется детектором, что позволяет с высокой точностью и чувствительностью определить изотопный состав вещества.

Масс-спектрометрический анализ сводится к следующим этапам [31]:

1. Превращение атомов вещества в положительные ионы.
2. Создание ионного пучка или групп ионов в статическом или импульсном электростатическом полях.
3. Пространственное или временное разделение потока частиц в магнитном и электрическом полях.
4. Раздельное измерение и регистрация интенсивности каждого компонента потока.

Ускорительная масс-спектрометрия (УМС) – современный, сверхчувствительный метод изотопного анализа вещества. Содержание регистрируемого, редкого изотопа в образце может находиться на уровне 10^{-12} – 10^{-15} относительно основного изотопа. Неопределенность на уровне экологического фона соответствует 2 – 3 % ($k=2$).

Однако существенным моментом, сдерживающим широкое применение данного метода, является его дороговизна: стоимость УМС-анализа составляет около 15 тыс. рублей для одного образца, что не подходит для масштабных исследований и большого числа измеряемых проб.

Выводы

1. Радиоуглерод ^{14}C , глобально распределенный в природной среде, является значимым фактором радиационного воздействия на население.
2. При работе АЭС в природную среду выделяется значительное количество ^{14}C , составляющее до 10 % от содержания глобального ^{14}C .
3. Облучение населения за счет воздействия ^{14}C в зоне наблюдения АЭС может существенно превышать среднее облучение от глобального ^{14}C , что требует постоянного проведения радиационного мониторинга для оценки этого фактора.
4. Для оценки дозы внутреннего облучения необходимо знать объемную активность атмосферного воздуха в зоне наблюдения АЭС, а также содержание ^{14}C в пищевых продуктах, производимых в зоне наблюдения АЭС.
5. Наиболее информативными объектами, характеризующими содержание техногенного ^{14}C в зоне наблюдения АЭС, являются плодородный слой грунта (гумус) и растительность.
6. Наиболее технологически приемлемым для массового контроля содержания ^{14}C в пробах плодородного грунта и растительности в настоящее время является метод жидкостной сцинтилляционной спектрометрии, включающий пробоподготовку путем сжигания проб в кислороде с улавливанием образующегося углекислого газа и переводом его в состав органического растворителя с помощью прибора Pyrolyser-6 Trio.

Methodological Approaches to Measurement of Carbon-14 for Control of its Radiation Impact on the Personnel and the Public

V.N. Klochkov, L.I. Kuznetsova, N.A. Eremina, D.I. Kabanov, A.A. Maximov,
S.V. Berezin, A.A. Androsova, E.V. Klochkova, P.P. Surin, V.K. Velichko

A.I. Burnasyan Federal Medical Biophysical Center, Moscow, Russia

Contact person: Klochkov Vladimir Nikolaevich: vnklochkov22@mail.ru

ABSTRACT

Purpose: Analysis of the current regulatory and methodological framework on control of doses from intake of ^{14}C for the personnel and the public living in the control area of the nuclear power plant (NPP). Identifying the most informative methods of controlling radiation impact of ^{14}C on a human being.

Material and methods: Research literature on radiation impact of naturally occurring ^{14}C ; ^{14}C entering the environment as a result of nuclear weapon tests; and ^{14}C entering workplaces and the control area of NPP has been reviewed. Dose coefficients and other radiation characteristics of ^{14}C provided in IAEA, ICRP and UNSCEAR publications have been summarized.

Results: According to UNSCEAR, annual radiation burden caused by global ^{14}C is the highest one (about 80 %) among radiation burdens associated with four critical naturally occurring cosmogenic radionuclides: ^3H (0.01 $\mu\text{Sv}/\text{year}$), ^7Be (3.0 $\mu\text{Sv}/\text{year}$), ^{14}C (12 $\mu\text{Sv}/\text{year}$) and ^{24}Na (0.2 $\mu\text{Sv}/\text{year}$). The main way of ^{14}C intake is the alimentary one when this isotope enters the human body with food. Dose from this kind of intake of global ^{14}C can reach 40 μSv . The annual dose caused by aerogenic (inhalation) way of intake of global ^{14}C does not exceed 1 μSv .

The most informative methods of dose assessment for the personnel of NPP and the public living in the control area involve measurement of content of ^{14}C in top soil, vegetation and food products.

Conclusions: Significant amount of ^{14}C enters the environment within the control area during operation of NPP, which causes the public radiation dose exceeding the dose from global ^{14}C . The most informative objects characterizing content of technogenic ^{14}C in the control area of NPP are top soil (humus) and vegetation. The liquid scintillation spectrometry involves sample preparation by burning of samples in oxygen with capturing of generated carbon dioxide and its transfer into organic solvent. This is the most technologically viable method for mass control of ^{14}C content in samples of top soil and vegetation.

Key words: radiation safety, carbon-14, control of specific activity, internal dose, soil, vegetation

For citation: Klochkov VN, Kuznetsova LI, Eremina NA, Kabanov DI, Maximov AA, Berezin SV, Androsova AA, Klochkova EV, Surin PP, Velichko VK. Methodological Approaches to Measurement of Carbon-14 for Control of its Radiation Impact on the Personnel and the Public. Medical Radiology and Radiation Safety. 2021;66(6):10-17.

DOI: 10.12737/1024-6177-2021-66-6-10-17

СПИСОК ИСТОЧНИКОВ

1. Рублевский В.П., Яценко В.Н. Особенности радиационного и биологического действия ^{14}C на живые организмы и опасность его накопления в биосфере Земли // Атомная энергия. 2018. Т.12, № 5. С. 301–306.
2. Рублевский В.П., Яценко В.Н., Чанышев Е.Г. Роль углерода-14 в техногенном облучении человека / Под ред. Кочеткова О.А. М.: Изд-дАТ. 2004. 197 с. ISBN 5-86656-160-3.
3. Иванов В.И., Лысцов В.Н. Основы микродозиметрии. М.: Атомиздат. 1979. 192 с.
4. Тимофеев Л.В., Максимов А.А., Кочетков О.А. и др. К вопросу о дозе трития на клеточном уровне // Мед. радиология и радиационная безопасность. 2020 (в печати).
5. Панченко С.В., Линге И.И. и др. Радиэкологическая обстановка в регионах расположения предприятий Росатома / Под ред. Линге И.И., Крышева И.И. М.: САМ полиграфист. 2015. 296 с.
6. UNSCEAR 2008. Sources and Effects of Ionizing Radiation. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. Report to the General Assembly with Scientific Annexes. New York: United Nations Publication, 2010. VI. ISBN 978-92-1-142274-0.
7. Василенко И.Я., Бугрышев П.Ф., Истомина А.Г. и др. Вопросы радиационной опасности ^{14}C // Атомная энергия. 1980. Т.49, № 5. С. 299–303.
8. Carbon-14 and the Environment. IRSN, 2012. www.irsn.fr.
9. Василенко И.Я., Осипов В.А., Рублевский В.П. Радиоактивный углерод. Природа. 1992. № 12. С. 59–65.
10. Garnier-Laplace J., Roussel-Debet S., Calmon P. Modélisation des Transferts du Carbone 14, Emis par les Réacteurs a Eau Pressurisée en Fonctionnement Normal, Dans l'Environnement Proche du Site. Rapport IPSN/DPRE/SERE 98/007. IRSN, Cadarache. 1998.
11. Назаров Е.И., Екидин А.А., Васильев А.В. Оценка поступления углерода-14 в атмосферу, обусловленного выбросами АЭС // Изв. вузов. Физика. 2018. Т.61, № 12–2(732). С. 67–73.
12. Setting Authorized Limits for Radioactive Discharges: Practical Issues to Consider. IAEA-TECDOC-1638. Vienna: IAEA, 2010.
13. Екидин А.А., Жуковский М.В., Васянович М.Е. Идентификация основных дозообразующих радионуклидов в выбросах АЭС // Атомная энергия. 2016. Т.120, № 2. С. 106–108.
14. Официальный сайт базы данных Европейской Комиссии о выбросах и сбросах радиоактивных веществ. URL: <http://europa.eu/radd/index.dox> (Дата обращения: 01.10.17).
15. Официальный сайт Международного Агентства по Атомной Энергии. URL: <https://www.iaea.org/PRIS> (Дата обращения: 01.10.2017).
16. Крышев А.И., Крышев И.И., Васянович М.Е. и др. Оценка дозы облучения населения от выброса ^{14}C АЭС с РБМК-1000 и ЭГП-6 // Атомная энергия. 2020. Т. 128, № 1. С. 48–52.
17. СанПиН 2.6.1.2523–09 «Нормы радиационной безопасности (НРБ-99/2009)».
18. Распоряжение Правительства РФ от 08.07.2015 № 1316-р «Об утверждении перечня загрязняющих веществ, в отношении которых применяются меры государственного регулирования в области охраны окружающей среды».
19. Екидин А.А., Васильев А.В., Васянович М.Е. Современные технологии управления воздействием на окружающую среду как инструмент соблюдения принципа ALARA // Биосферная совместимость: человек, регион, технологии. 2017. № 2. С. 67–74.
20. Occupational Intakes of Radionuclides: Part 2. ICRP. Publication 134 // Ann. ICRP. 2016. V.45, No. 3/4. P. 1–352.
21. Limits on Intakes of Radionuclides for Workers: Part 3. ICRP Publication 30 // Ann. ICRP. 1981. V.6, No.2/3.
22. Sources and Effects of Ionizing Radiation. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, 2000. New York: United Nations, 2000. V.1: Sources. ISBN 92-1-142238-8.
23. Sources and Effects of Ionizing Radiation. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, 1993 Report to the General Assembly, with Scientific Annexes. United Nations Sales Publication E.94.IX.2. New York: United Nations, 1993.
24. ICRP, 1975. Report of the Task Group on Reference Man. ICRP Publication 23. Pergamon Press, Oxford. Русский перевод: Человек. Медико-биологические данные: доклад рабочей группы Комитета II МКРЗ по условному человеку. Предисл. Моисеева А. А. Пер. с англ. Парфенова Ю. Д. Международная комиссия по радиологической защите. Публикация № 23. М.: Медицина. 1977. 496 с.
25. МТ 1.2.1.15.1176–2016. Разработка и установление нормативов предельно допустимых выбросов радиоактивных веществ атомных станций в атмосферный воздух. Методика. М.: Концерн Росэнергоатом. 2016. 69 с.
26. Кулькова М.А. Радиоуглерод (^{14}C) в окружающей среде и метод радиоуглеродного датирования. Учебно-методическое пособие. СПб.: Изд-во РГПУ, 2011. 40 с.

27. Брайтцева О.А., Сулержицкий Л.Д. Радиоуглеродная лаборатория института вулканологии ДВНЦ АН СССР // Радиоуглерод в археологических и палеоэкологических исследованиях / Под ред. Зайцевой Г.И., Кульковой М.А. СПб.: ИИМК РАН, 2007. С. 89-94.
28. Mendonça Maria Lúcia T.G., Godoy José M., da Cruz Rosana P., Perez Rhonedes A.R. Radiocarbon Dating of Archaeological Samples (Sambaqui) Using CO₂ Absorption and Liquid Scintillation Spectrometry of Low Background Radiation // Journal of Environmental Radioactivity. 2006. V.88, No. 3. P. 205-214.
29. Woo, H.J. Optimization of Liquid Scintillation Counting Techniques for the Determination of Carbon-14 in Environmental Samples / Ed. Woo

- H. J., Chun S. K., Cho S. Y., Kim Y. S., Kang D. W., Kim E. H. // Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry. 1999. V.239, № 3. P. 649-655.
30. Optimizing the Counting Conditions for Carbon-14 for the Sample Oxidizer-Liquid Scintillation Counter Method. Vesa-Pekka Varti. STUK-Radiation and Nuclear Safety Authority, Laippatie, 2014. <https://www.researchgate.net/publication/260341203>
31. Руководство пользования прибором Pyrolyser-6 Trio.
32. Сидоров Л.Н. Масс-спектрометрия и определения массы больших молекул // Соросовский образовательный журнал. 2000. Т.6, № 11. С. 41–45.

REFERENCES

1. Rublevskiy V.P., Yatsenko V.N. Specifics of Radiation and Biological Impact of ¹⁴C on Living Organisms and Hazard Related to Its Accumulation in Earth's Biosphere. *Atomnaya Energiya*. 2018;125;5:301–306 (In Russian).
2. Rublevskiy V.P., Yatsenko V.N., Chanyshv E.G. Role of Carbon-14 in Human Technogenic Exposure. Ed. Kochetkov O.A. Moscow, Izdat Publ., 2004. 197 p. ISBN 5-86656-160-3 (In Russ.).
3. Ivanov V.I., Lystsov V.N. Basics of Microdosimetry. Moscow, Atomizdat, 1979. 192 p. (In Russian).
4. Timofeev L.V., Maksimov A.A., Kochetkov O.A., et al. About the Dose from Tritium at the Cellular Level. *Meditsinskaya radiologiya i radiatsionnaya bezopasnost*. 2020 (in print) (In Russ.).
5. Panchenko S.V., Linge I.I., et al. Radioecological Situation in locations of Rosatom Facilities. Ed. Linge I.I., Kryshev I.I. Moscow, SAM poligrafist Publ., 2015. 296 p. (In Russian).
6. UNSCEAR 2008. Sources and Effects of Ionizing Radiation. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. Report to the General Assembly with Scientific Annexes. Volume I. United Nations, New York, United Nations Publication, 2010. ISBN 978-92-1-142274-0.
7. Vasilenko I.Ya., Bugryshev P.F., Istomina A.G., et al. Issues of Radiation Hazard of ¹⁴C. *Atomnaya Energiya*. 1980;49;5:299–303 (In Russ.).
8. Carbon-14 and the Environment. IRSN, 2012. www.irsn.fr.
9. Vasilenko I.Ya., Osipov V.A., Rublevskiy V.P. Radioactive Carbon. *Priroda*. 1992;12:59–65 (In Russian).
10. Garnier-Laplace J., Roussel-Debet S., Calmon P. Modélisation des Transferts du Carbone 14, Emis par les Réacteurs a Eau Pressurisée en Fonctionnement Normal, Dans l'Environnement Proche du Site. Rapport IPSN/DPRE/SERE 98/007, IRSN, Cadarache. 1998 (In French).
11. Nazarov E.I., Ekinin A.A., Vasilyev A.V. Assessment of Going of Carbon-14 into the Atmosphere Due to Discharges from NPP. *Izvestiya Vuzov. Fizika*. 2018;61;12–2(732):67–73 (In Russian).
12. Setting Authorized Limits for Radioactive Discharges: Practical Issues to Consider. IAEA-TECDOC-1638. Vienna: IAEA, 2010.
13. Ekinin A.A., Zhukovskiy M.V., Vasyanovich M.E. Identification of the Main Dose Forming Radionuclides in Discharges of NPP. *Atomnaya Energiya*. 2016;120;2:106–108 (In Russian).
14. Official Site of the European Commission Radioactive Discharges Database. URL: <http://europa.eu/radd/index.do> (Access date: 01.10.17) (In Russian).
15. Official Site of the International Atomic Energy Agency. URL: <https://www.iaea.org/PRIS> (Access date: 01.10.2017) (In Russ.).
16. Kryshev A.I., Kryshev I.I., Vasyanovich M.E., et al. Assessment of the Public Radiation Dose from Discharge of ¹⁴C at NPP with RBMK -1000 and EGP-6. *Atomnaya Energiya*. 2020;128;1:48-52 (In Russ.).
17. SanPiN 2.6.1.2523–09. Radiation Safety Standards (NRB-99/2009) (In Russian).
18. The RF Government Executive Order of 08.07.2015 No. 1316-r “On approval of the list of contaminating agents subject to governmental regulation in the field of environmental protection” (In Russian).
19. Ekinin A.A., Vasilyev A.V., Vasyanovich M.E. Current Technologies of Management of Environmental Impact as a Mean of Compliance with ALARA Principle. *Biosfernaya Sovmestimost': Chelovek, Region, Tekhnologii*. 2017;2:67–74 (In Russian).
20. Occupational Intakes of Radionuclides: Part 2. ICRP. Publication 134. Ann. ICRP. 2016;45;3/4:1–352.
21. Limits on Intakes of Radionuclides for Workers: Part 3. ICRP Publication 30 // Ann. ICRP. 1981;6;2/3.
22. Sources and Effects of Ionizing Radiation. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, 2000. New York, United Nations, 2000. V.1. Sources. ISBN 92-1-142238-8.
23. Sources and Effects of Ionizing Radiation. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, 1993 Report to the General Assembly, with Scientific Annexes. United Nations Sales Publication E.94.IX.2. New York: United Nations, 1993.
24. Report of the Task Group on Reference Man. ICRP Publication 23. Oxford, Pergamon Press, 1975.
25. MT 1.2.1.15.1176-2016. Development and Setting of Norms for Maximum Permissible Discharges of Radioactive Substances from Nuclear Power Plants to the Atmosphere. Practice. Moscow, Contserm Rosenergoatom Publ., 2016. 69 p. (In Russian).
26. Kulkova M.A. Radiocarbon (¹⁴C) in the Environment and Carbon Dating Method. Study Guide. St. Petersburg, RGPU Publ., 2011, 40 p. (In Russian).
27. Braytseva O.A., Sulzerzhitskiy L.D. Radiocarbon Laboratory of the Volcanology Institute at the Far East Research Center of AS USSR. Radiocarbon in Archeological and Paleocological Researches. Ed. Zaytseva G.I., Kul'kova M.A. St. Petersburg, IIMK RAN, 2007. P. 89-94 (In Russian).
28. Mendonça Maria Lúcia T.G., Godoy José M., da Cruz Rosana P., Perez Rhonedes A.R. Radiocarbon Dating of Archaeological Samples (Sambaqui) Using CO₂ Absorption and Liquid Scintillation Spectrometry of Low Background Radiation. *Journal of Environmental Radioactivity*. 2006;88;3:205-214.
29. Woo, H.J. Optimization of Liquid Scintillation Counting Techniques for the Determination of Carbon-14 in Environmental Samples / Ed. Woo H. J., Chun S. K., Cho S. Y., Kim Y. S., Kang D. W., Kim E. H. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*. 1999;239;3:649-655.
30. Optimizing the Counting Conditions for Carbon-14 for the Sample Oxidizer-Liquid Scintillation Counter Method. Vesa-Pekka Varti. STUK-Radiation and Nuclear Safety Authority, Laippatie, 2014. <https://www.researchgate.net/publication/260341203>
31. Pyrolyser-6 Trio User Manual (In Russian).
32. Sidorov L.N. Mass-Spectrometry and Mass Determination of Large Molecules. *Soros Educational Magazine*. 2000;6;11:41–45 (In Russian).

Конфликт интересов. Авторы заявляют об отсутствии конфликта интересов.
Финансирование. Исследование не имело спонсорской поддержки.
Участие авторов. Статья подготовлена с равным участием авторов.
Поступила: 16.09.2021. Принята к публикации: 22.10.2021.

Conflict of interest. The authors declare no conflict of interest.
Financing. The study had no sponsorship.
Contribution. Article was prepared with equal participation of the authors.
Article received: 16.09.2021. Accepted for publication: 22.10.2021.