DOI: 10.21870/0131-3878-2018-27-3-79-90

УДК 621.039.58

Опыт инструментальной оценки накопленных доз внешнего облучения с использованием метода ретроспективной люминесцентной дозиметрии по единичным микрокристаллам кварца из кварцосодержащих образцов, отобранных в префектуре Фукусима, Япония

Степаненко В.Ф.¹, Эндо С.², Каприн А.Д.³, Иванов С.А.¹, Каджимото Т.², Танака К.²,
Кольженков Т.В.¹, Петухов А.Д.¹, Ахмедова У.А.¹, Богачёва В.В.¹, Коротков В.А.¹, Хоши М.²

¹ МРНЦ им. А.Ф. Цыба – филиал ФГБУ «НМИЦ радиологии» Минздрава России, Обнинск;

² Хиросимский Университет, Хиросима, Япония;

³ ФГБУ «НМИЦ радиологии» Минздрава России, Обнинск

Измерение накопленных доз внешнего облучения в образцах, отобранных в районах радиационных выпадений в результате аварии на АЭС Фукусима-1, проводилось с использованием оптико-стимулированной люминесцентной дозиметрии. Кварцосодержащие образцы (кирпичи зданий) были отобраны в нескольких районах, прилегающих к АЭС (город Минами-сома и населённый пункт Итате) в марте 2014 г. Для исключения влияния присутствующих в образцах микрочастиц биотита, не обладающего дозиметрическими свойствами, люминесцентная ретроспективная дозиметрия осуществлялась по единичным микрокристаллам кварца. При изучении зависимости измеренных величин накопленных доз от глубины исследования кварцосодержащих образцов было установлено, что на глубине 5-20 мм от внешней поверхности накопленные дозы (после вычета фоновой дозы) для образца из города Минами-сома составили 25 ± 6 и 73 ± 18 мГр для образца из населённого пункта Итате, при этом на глубине 3-5 мм накопленные дозы были существенно больше по величине и равны 50 и 140 мГр соответственно. Внешние слои образцов с толщиной до 2,9 мм были исключены из анализа для того, чтобы избежать неконтролируемого снижения дозиметрического сигнала за счёт внешнего светового воздействия на кристаллы кварца. Было сделано предположение, что анализ профилей в тонких слоях кирпичей может быть полезным для изучения вклада дозы от бета-частиц в общую дозу от суммарного гамма-бета-излучения. Между тем, накопленные дозы от гамма-облучения на глубине 3-5 мм должны быть существенно меньше по своей величине по сравнению с измеренными, так как на этой глубине отсутствует эффект электронного равновесия для гамма-квантов высокой энергии. Был сделан вывод, что повышенные измеренные накопленные дозы на глубинах 3-5 мм могут быть обусловлены внешним облучением бета-частицами загрязнённой почвы и/или дополнительным вкладом квантового излучения с малой энергией. Данный вывод важен для интерпретации возможных биологических эффектов при облучении, например, кожи и глаз человека, а также всей окружающей биоты короткопробежным излучением при крупномасштабных радиологических авариях на АЭС. Представлены первые результаты исследования, дальнейшая работа продолжается.

Ключевые слова: радиологические аварии, люминесцентная ретроспективная дозиметрия, оптико-стимулированная дозиметрия, кварцосодержащие образцы, единичные микрокристаллы кварца, авария на АЭС Фукусима-1, префектура Фукусима, населённый пункт Минами-сома, населённый пункт Итате, накопленная доза внешнего облучения, образцы кирпичей, гамма-излучение, бета-излучение, профиль накопленной аварийной дозы внешнего излучения по глубине в образце, вклад в накопленную дозу от короткопробежного излучения.

Введение

Согласно имеющимся расчётным данным, представленным в [1, 2], показана возможность существенных накопленных доз облучения, вызванных внешним воздействием бета-частиц, излучаемых почвой, на некоторых наиболее загрязнённых территориях вокруг аварийной АЭС Фукусима-1. Несмотря на небольшое количество информации о вкладе бета-облучения после аварии на АЭС Фукусима-1 [1-3], этот вопрос представляется весьма важным, так как дополнительное облучение от бета-частиц, излучаемых загрязнённой окружающей сре-

Степаненко В.Ф.* – зав. лаб., д.б.н., проф.; Иванов С.А. – директор, д.м.н., проф.; Кольженков Т.В. – с.н.с., к.б.н.; Петухов А.Д. – м.н.с.; Ахмедова У.А. – м.н.с.; Богачёва В.В. – м.н.с.; Коротков В.А. – и.о. зав. отд., в.н.с. МРНЦ им. А.Ф. Цыба – филиал ФГБУ «НМИЦ радиологии» Минздрава России. Эндо С. – зав. отд., Ph.D., проф.; Каджимото Т. – зав. отд., Ph.D., проф.; Танака К. – Ph.D.; Хоши М. – Ph.D., проф. Хиросимский Университет. Каприн А.Д. – ген. директор, акад. РАН, д.м.н., проф. ФГБУ «НМИЦ радиологии» Минздрава России.

*Контакты: 249036, Калужская обл., Обнинск, ул. Королева, 4. Тел.: (484) 399-70-02; e-mail: mrrc@mrrc.obninsk.ru.

дой, может вносить свой вклад в дозу облучения кожи и глаз, а также мелких представителей биоты и фауны. В представленном международном исследовании впервые выполнены инструментальные оценки профилей накопленных доз в кварцсодержащих образцах (кирпичах), отобранных из двух зданий, находящихся на загрязнённых радионуклидами территориях вокруг АЭС Фукусима-1. Для этой цели был применён метод люминесцентной ретроспективной дозиметрии с использованием единичных микрокристаллов кварца, извлечённых из кварцсодержащих образцов (кирпичей), отобранных в марте 2014 г. из наружных стен зданий, расположенных в Одака (город Минами-сома) и в Мазда (населённый пункт Иитате) – префектура Фукусима, Япония. Эти здания являются свидетелями аварии на АЭС Фукусима-1. Было сделано предположение, что анализ профилей в тонких слоях кирпичей может быть полезным для изучения вклада дозы от бета-частиц в общую дозу от суммарного гамма-бета-излучения. Представлены первые результаты исследования, дальнейшая работа продолжается.

Материалы и методы

Отбор образцов

Отбор образца кирпича из строения в городе Минами-сома. Расположение жилого строения – район Одака, город Минами-сома – координаты согласно данным GPS: 37.55081 N; 140.9265 E; мощность дозы в воздухе вблизи образца на дату его отбора (март, 2014 г.) равна 1,87 мкЗв/ч; плотность загрязнения почвы ^{137}Cs равна 308 кБк/м² [4, 5]. Расположение образца: внешняя часть кирпичного фундамента здания; высота нахождения отобранного образца составляла 0,8 м над поверхностью почвы. В качестве образца был экстрагирован кирпич в целом с тщательной документацией его положения и ориентации.

Отбор образца кирпича из населённого пункта Иитате. Расположение жилого строения – район Мазда, населённый пункт Иитате; координаты согласно данным GPS: 37.72751 N; 140.6784 E; мощность дозы в воздухе вблизи образца на дату его отбора (март, 2014 г.) равна 2,27 мкЗв/ч; плотность загрязнения почвы ^{137}Cs равна 654 кБк/м² [4, 5]. Расположение образца: внешняя часть кирпичного фундамента здания; высота нахождения отобранного образца составляла 0,25 м над поверхностью почвы. В качестве образца был экстрагирован кирпич в целом с тщательной документацией его положения и ориентации.

Методика подготовки образцов и их измерений

Метод ретроспективной дозиметрии с использованием экстрагированных из образцов единичных микрокристаллов. После первых анализов образцов, которые были отобраны на загрязнённых радионуклидами территориях города Минами-сома и населённого пункта Иитате, было выявлено наличие в аликвотах большого количества (50-70%) тёмных микровключений (рис. 1). При этом оказалось невозможным отделить эти микровключения от микрокристаллов кварца ни с помощью разделения по плотности, ни в результате травления HF, ни с помощью магнитной сепарации. В результате возникла проблема, связанная с измерением дозиметрических сигналов, так как термолюминесцентные (ТЛ) и оптико-стимулированные (ОС) сигналы от аликвот в целом были очень слабыми. Было сделано предположение (благодаря любезности профессора Х. Юнгнера (H. Jungner), Хельсинский университет, частное сообщение, 2014), что эти тёмные включения являются силикатным минералом биотитом $\{\text{K}(\text{Mg}, \text{Fe})_3[(\text{Al}, \text{Fe})\text{Si}_3\text{O}_{10}](\text{OH}, \text{F})_2\}$. Действительно, частицы биотита очень сложно отделить от

микрокристаллов кварца как по плотности, так и с помощью магнитной сепарации, а также путём травления. Присутствие биотита в анализируемых аликвотах создаёт большие сложности для дозиметрических измерений, так как этот минерал, в отличие от микрокристаллов кварца, не имеет дозиметрических свойств (рис. 2). Был найден следующий способ решения этой проблемы – использовать метод оптико-стимулированной люминесценции (ОСЛ) единичных микрокристаллов. В этом случае после измерений в последующий анализ будут включены только сигналы от микрокристаллов кварца, которые обладают хорошими дозиметрическими свойствами. Именно этот подход был реализован в данной работе, хотя его следует признать весьма затратным по времени.

Последовательность процедур работы с образцами перед измерениями

А).

- Для снятия и разрушения тонких последовательных слоёв с исходных образцов была применена боковая сторона возвратно-поступательной пилы с алмазным покрытием и с измерением толщины отделённых слоёв с использованием цифрового микрометра.
- Внешний слой образцов толщиной до 2,9 мм был удалён из последующего анализа для того, чтобы избежать неконтролируемого снижения дозиметрического сигнала за счёт внешнего светового воздействия на кристаллы кварца.
- Применение боковой стороны возвратно-поступательной пилы с алмазным покрытием позволило последовательно удалять тонкие слои образцов (0,3 мм), размельчать эти слои для последующих выделений микрокристаллов, их подготовки к измерениям, измерений и анализа.

Б).

- Обработка выделенных микрочастиц 7% HCl (15 мин при 50 °C).
- Отделение ферросодержащих микрочастиц с помощью магнитной сепарации.
- Промывание выделенных частиц в дистиллированной воде, спирте, ацетоне.
- Просушивание при 50 °C, 24 ч.
- Травление в 40% HF, 15 мин.
- Обработка 25% AlCl₃, 15 мин.
- Промывание выделенных частиц в дистиллированной воде, спирте, ацетоне.
- Просушивание при 50 °C, 24 ч.
- Визуальный контроль относительно возможных посторонних включений в аликвоты с использованием оптического микроскопа.
- Разделение полученных микрочастиц на различные фракции по размерам с помощью сит с различными диаметрами ячеек, для дальнейшей работы (дозиметрические измерения) применяются фракции с размерами 75-106 мкм.

Используемое оборудование

Система TL/OSL-DA-15, включая дополнительную подсистему для анализа единичных микрокристаллов (DTU Nutech, RISØ Nat Lab, Denmark) со встроенным калибровочным источником ⁹⁰Sr/⁹⁰Y (6,71 мГр/с).

Стимуляция люминесцентного отклика осуществляется твердотельным диодным лазером мощностью 10 мВт (ND:YVO₄, длина волны 532 нм) с лучом диаметром 20 мкм и системой точного позиционирования луча лазера для определения положения единичных микрокристаллов,

размещаемых на специальных дисках в отдельных отверстиях диаметром 300 мкм (100 отверстий в диске, всего 48 дисков при одной загрузке в систему).

Регистрация интенсивности люминесцентного свечения осуществляется фотоумножителем EMI 9235QA с фильтром «Ноуа U-340» (длина волны регистрируемого сигнала 280-370 нм с максимумом 340 нм).

Анализ кривых высвечивания и калибровочных зависимостей для каждого микрокристалла проводится с использованием программы «Analyst».

Последовательность процедур при проведении измерений каждого микрокристалла

А. Измерение интенсивности оптико-стимулированной люминесценции (ОСЛ), обусловленной неизвестной (искомой) дозой ионизирующего излучения (измеряется каждый микрокристалл кварца в отдельности):

- преднагрев (до 220 °С, с постоянной скоростью 5 °С/с), пауза 10 с;
- нагрев (до 125 °С, с постоянной скоростью 5 °С/с), пауза 5 с;
- измерение интенсивности ОСЛ, обусловленной неизвестной, т.е. искомой дозой (при стимуляции лазером с 90% мощностью, длительность стимуляции 3 с);
- облучение тестовой дозой;
- преднагрев (до 220 °С, с постоянной скоростью 5 °С/с), пауза 10 с;
- нагрев (до 125 °С, с постоянной скоростью 5 °С/с), пауза 5 с;
- измерение ОСЛ, обусловленной тестовой дозой (при стимуляции лазером с 90% мощностью), длительность 3 с.

Б. Три измерения интенсивности ОСЛ от каждого микрокристалла кварца при облучениях этого микрокристалла тремя известными дозами от калибровочного источника (для построения калибровочной зависимости): при этом для этого же микрокристалла осуществляется та же последовательность преднагрева, нагрева, регистрации ОСЛ, облучения тестовой дозой и преднагрева, нагрева, регистрации ОСЛ, что приведена в п. А данного подраздела.

В. Оценка неизвестной дозы для каждого микрокристалла и её неопределённости с использованием калибровочной зависимости для этого же микрокристалла.

Г. Оценка накопленной фоновой дозы, обусловленной естественным излучением, за период от момента отжига отобранного образца, осуществляется так же, как это описано в [6-8].

Результаты и обсуждение

На рис. 1 приведён пример естественной смеси микрочастиц биотита и микрокристаллов кварца из типичной аликвоты, полученной из отобранных кварцсодержащих образцов строений в населённых пунктах Минами-сома и Иитате – после механического отделения микрочастиц, сортировки их по размерам, травления в HF, разделения их по плотности и магнитной сепарации.

На рис. 2 показан пример сравнения кривых высвечивания интенсивности ОСЛ от единичного кристалла кварца (левая панель) и от единичной гранулы биотита (правая панель), экстрагированных из одного и того же кварцсодержащего образца из строения, находящегося на загрязнённой радионуклидами территории Фукусима.

Рис. 1. Смесь микрочастиц биотита (тёмные) и микрокристаллов кварца (прозрачные) из типичной аликвоты, полученной из кварцсодержащих образцов, отобранных из стен строений в населённых пунктах Минами-сома и Иитате после механического отделения микрочастиц, сортировки их по размерам, травления в HF, разделения их по плотности и магнитной сепарации. Размеры частиц – около 0,1 мм.

Рис 2. Сравнение типичных кривых интенсивности радиационно-обусловленного люминесцентного сигнала в зависимости от времени после облучения стандартным источником ионизирующего излучения для одного и того же кварцсодержащего образца из строения, находящегося на загрязнённой радионуклидами территории префектуры Фукусима. По вертикальной оси – интенсивность люминесценции (I) в произвольных единицах; по горизонтальной оси – время после облучения (T), с.

На левой панели – кривая для единичного микрокристалла кварца (принята для дальнейшего анализа). На правой панели – кривая для единичной микрочастицы биотита. Эта кривая не принята для дальнейшего анализа, так как из рисунка ясно видно, что биотит не обладает дозиметрическими свойствами. Максимальное время регистрации – 3 с. Величина интеграла под кривой I от 0,25 до 0,5 с пропорциональна дозе облучения, величина интеграла под кривой I от 2,75 до 3 с является фоновой.

На рис. 3 приведена типичная калибровочная зависимость для единичного микрокристалла кварца. С помощью таких зависимостей определяются неизвестные дозы и их неопределённости.

На рис. 4 показаны результаты измерений профиля поглощённой дозы по глубине в кирпиче с использованием метода ретроспективной люминесцентной дозиметрии по единичным микрокристаллам кварца из кварцсодержащего образца, отобранного в населённом пункте Минами-сома (префектура Фукусима, Япония).

Рис. 3. Типичная калибровочная зависимость для единичного микрокристалла кварца. I (вертикальная ось) – интенсивность стимулированной радиационно-обусловленной люминесценции от единичного микрокристалла кварца, произвольные единицы, после облучения дозой D , мГр (горизонтальная ось).

Рис. 4. Результаты измерений профиля поглощенной дозы по глубине в кирпиче с использованием метода ретроспективной люминесцентной дозиметрии по единичным микрокристаллам кварца из кварцсодержащего образца, отобранного в населённом пункте Минами-сома (префектура Фукусима, Япония). По вертикальной оси – накопленная поглощённая доза D , мГр. По горизонтальной оси – глубина в кирпиче (от внешней поверхности стены) X , мм. Накопленная фоновая доза ($180 \pm 3,9$ мГр) вычтена. Высота образца кирпича над поверхностью почвы равна 0,8 м.

Рис. 5. Результаты измерений профиля поглощенной дозы по глубине в кирпиче с использованием метода ретроспективной люминесцентной дозиметрии по единичным микрокристаллам кварца из кварцсодержащего образца, отобранного в населённом пункте Иитате (префектура Фукусима, Япония). По вертикальной оси – накопленная поглощённая доза D , мГр. По горизонтальной оси – глубина в кирпиче (от внешней поверхности стены) X , мм. Накопленная фоновая доза ($136 \pm 4,1$ мГр) вычтена. Высота образца кирпича над поверхностью почвы равна 0,25 м.

На рис. 5 показаны результаты измерений профиля поглощённой дозы по глубине в кирпиче с использованием метода ретроспективной люминесцентной дозиметрии по единичным микрокристаллам кварца из кварцосодержащего образца, отобранного в населённом пункте Иитате (префектура Фукусима, Япония).

Оценка накопленной дозы гамма-облучения в воздухе на основе результатов измерений методом ретроспективной люминесцентной дозиметрии по единичным микрокристаллам кварца из кварцосодержащих образцов, отобранных в населённых пунктах Минами-сома и Иитате. Согласно данным работ [6-8] отношение дозы гамма-излучения (R) в референтной точке (на расстоянии более 20 м от стены здания) к дозе в кирпиче здания на глубине в стене 5-20 мм равно: $R=1,8$ (для невозмущённой почвы, загрязнённой ^{137}Cs).

Принимая во внимание эту величину, доза в воздухе в случае Минами-сома равна:

$$D_{(\text{в воздухе})} = D_{(\text{в кирпиче на глубине 5-20 мм})} \times R = 25 \text{ мГр} (\pm 6 \text{ мГр}) \times 1,8 = 45 \text{ мГр} (\pm 11 \text{ мГр}). \quad (1)$$

Соответствующая оценка для населённого пункта Иитате даёт следующее значение дозы в воздухе:

$$D_{(\text{в воздухе})} = D_{(\text{в кирпиче на глубине 5-20 мм})} \times R = 73 \text{ мГр} (\pm 18 \text{ мГр}) \times 1,8 = 130 \text{ мГр} (\pm 32 \text{ мГр}). \quad (2)$$

Сравнение накопленных доз гамма-излучения в воздухе, оцененных на основе результатов измерений методом ретроспективной люминесцентной дозиметрии по единичным микрокристаллам кварца из кварцосодержащих образцов из населённых пунктов Минами-сома и Иитате, и имеющимися расчётными данными. Как это было показано выше, накопленные дозы гамма-излучения в воздухе, оцененные с использованием метода ретроспективной ОСЛ-дозиметрии по единичным микрокристаллам кварца из образцов, отобранных в населённых пунктах Минами-сома и Иитате, равны: 45 ± 11 мГр и 130 ± 32 мГр соответственно. Плотности загрязнения почвы ^{137}Cs в местах отбора образцов равны: 308 кБк/м^2 и 654 кБк/м^2 соответственно. Это означает, что нормализованные на плотность загрязнения накопленные дозы в воздухе для этих локализаций равны: $0,15 \pm 0,037 \text{ мГр/(кБк/м}^2)$ и $0,20 \pm 0,050 \text{ мГр/(кБк/м}^2)$ соответственно.

Согласно расчётам, представленным в работе [9], накопленная поглощённая доза внешнего гамма-излучения в воздухе для населённого пункта Иитате – 130 мГр, а соответствующая плотность загрязнения почвы ^{137}Cs для точек расчёта – 780 кБк/м^2 . Это означает, что нормализованная накопленная доза внешнего гамма-излучения в воздухе равна $0,17 \text{ мГр/(кБк/м}^2)$, что хорошо согласуется (в пределах погрешностей) с оценками, основанными на оценках доз с помощью ретроспективной ОСЛ-дозиметрии по единичным кристаллам кварца для населённых пунктов Минами-сома и Иитате: $0,15 \pm 0,037 \text{ мГр/(кБк/м}^2)$ и $0,20 \pm 0,050 \text{ мГр/(кБк/м}^2)$ соответственно.

Возможный вклад бета-излучения в суммарное гамма-бета-облучение вблизи поверхности анализируемых образцов. На рис. 4 и 5 показано, что на глубине 5-20 мм в образцах кирпичей поглощённые дозы, измеренные методом ретроспективной ОСЛ-дозиметрии по кварцевым включениям, равны 25 ± 6 мГр и 73 ± 18 мГр для образцов из населённых пунктов Минами-сома и Иитате (после вычета фоновой дозы). С другой стороны, на меньшей глубине (3-5 мм) поглощённые дозы существенно больше и равны 50 мГр и 140 мГр соответственно. Между тем, дозы от высокоэнергетичного гамма-излучения на глубине 3-5 мм должны быть существенно ниже из-за отсутствия условий электронного равновесия вблизи поверхности кирпича. В результате нами было сделано предположение, что повышенные дозы вблизи поверхности об-

разцов (3-5 мм) были, предположительно, обусловлены дополнительным вкладом короткопробежного бета-излучения от поверхности почвы или же, как это было нами отмечено в работе [7], возможным дополнительным облучением низкоэнергетичными гамма-квантами. Такого рода предположение имеет принципиальное значение, так как дополнительное облучение бета-частицами или низкоэнергетичными гамма-квантами может быть существенным в отношении радиогенных биологических эффектов у человека (облучение глаз, кожи, слизистых оболочек), а также у представителей биоты и фауны в окружающей среде.

Здесь следует отметить, что данное направление исследований находится в процессе интенсивной международной дискуссии [3, 10-13]. Между тем, следует отметить, что в недавно опубликованной в журнале *Journal of Radiation Research* (Токио, 2018 г.) работе [14] наше предположение было тщательно проанализировано с использованием метода стохастического моделирования транспорта ионизирующего излучения в веществе (метод Монте-Карло). Результаты этих расчётов, выполненных для геометрии и локализации отобранного нами образца из населённого пункта Минами-сома, полностью подтверждают сделанные нами предположение и результаты проведённых измерений.

В заключение следует отметить, что это первые результаты, и дальнейшая работа продолжается. Полученные данные являются результатом проводимых в МРНЦ им. А.Ф. Цыба исследований, направленных на синтез фундаментальных и прикладных исследований с последующим внедрением их в практику [15, 16].

Выводы

1. Метод ретроспективной ОСЛ-дозиметрии с использованием единичных микрокристаллов кварца был успешно применён для измерений профилей накопленных в кварцсодержащих образцах (кирпичах), отобранных из стен строений, находящихся на территориях населённых пунктов Минами-сома (район Одака) и Иитате – «свидетелей» радиоактивных выпадений от аварийной АЭС Фукусима-1. Использование этого метода позволило избежать мешающего влияния на результаты измерений от присутствующих в образцах микрочастиц биотита, который не обладает дозиметрическими свойствами.

2. Было установлено, что на глубинах 5-20 мм от внешних поверхностей кирпичей накопленные поглощённые дозы равны 25 ± 6 мГр для образца из населённого пункта Минами-сома и 73 ± 18 мГр для образца из Иитате (после вычета фоновой дозы).

3. Сравнение накопленных доз гамма-излучения в воздухе, оцененных по данным ретроспективной ОСЛ-дозиметрии с использованием единичных микрокристаллов кварца из кварцсодержащих образцов, отобранных в населённых пунктах Минами-сома и Иитате, с имеющимися расчётными данными показывает, что инструментально полученные и расчётные оценки находятся в хорошем соответствии.

4. Было установлено, что при меньших глубинах в образцах (3-5 мм от поверхности) накопленные дозы существенно больше и равны 50 и 140 мГр для Минами-сома и Иитате соответственно. Между тем, на глубине 3-5 мм накопленные дозы должны быть существенно ниже, так как вблизи поверхности образцов отсутствуют условия электронного равновесия для высокоэнергетичного проникающего гамма-излучения. Было сделано предположение, что повышен-

ные накопленные дозы на глубинах 3-5 мм были обусловлены либо короткопробежным бета-излучением, или же низкоэнергетичными гамма-квантами, излучаемыми радиоактивно загрязнённой почвой. Данное предположение было тщательно проанализировано с использованием метода стохастического моделирования транспорта ионизирующего излучения в веществе (метод Монте-Карло). Результаты этих расчётов, выполненных для геометрии и локализации отобранного нами образца из населённого пункта Минами-сома и опубликованных в 2018 г., полностью подтверждают сделанное нами предположение и результаты проведённых нами ОСП-измерений. Данный вывод имеет принципиальное значение, так как дополнительное облучение бета-частицами или низкоэнергетичными гамма-квантами может быть существенным в отношении радиогенных биологических эффектов у человека (облучение глаз, кожи, слизистых оболочек), а также у представителей биоты и фауны в окружающей среде.

Исследования авторов из Японии были поддержаны грантами JSPS KAKENHI № JP26550031 и № JP26257501.

Исследования авторов из России были поддержаны МРНЦ им. А.Ф. Цыба и Национальным медицинским исследовательским центром радиологии Минздрава России, Обнинск – в рамках НИР по государственному заданию (№ госрегистрации 115050610007), а также в рамках двустороннего соглашения о научном сотрудничестве между МРНЦ им. А.Ф. Цыба – филиал Национального медицинского исследовательского центра радиологии Минздрава России и Хиросимским Университетом, Япония.

Авторы благодарны господам Хисаказу Куроки (Hisakazu Kuroki) и Шинпей Мураками (Shinpei Murakami) за поддержку возможности осуществить отбор кварцсодержащих образцов, а также за помощь в отборе проб образцов, их документировании и транспортировке – господам Юши Сакураи (Yushi Sakurai) и Тошихиро Сакураи (Toshihiro Sakurai).

Согласно заявлениям всех авторов, у них отсутствуют конфликты интересов.

Литература

1. **Endo S., Tanaka K., Kajimoto T., Thanh N.T., Otaki J.M., Imanaka T.** Estimation of β -ray dose in air and soil from Fukushima Daiichi Power Plant accident //J. Radiat. Res. 2014. V. 55, N 3. P. 476-483.
2. **Endo S., Kajimoto T., Tanaka K., Thanh N.T., Hayashi G., Imanaka T.** Mapping of cumulative β -ray dose on ground surface around Fukushima area //J. Radiat. Res. 2015. V. 56, Suppl. 1. P. 48-55.
3. **Tsujimura N., Yoshida T.** Beta dose rate measurements with an end-window GM survey meter in environments contaminated by the Fukushima Daiichi nuclear accident //Prog. Nucl. Sci. Technol. 2014. V. 4. P. 85-89.
4. **Endo S., Kimura S., Takatsuji T., Nanasawa K., Imanaka T., Shizuma K.** Measurement of soil contamination by radionuclides due to Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident and associated cumulative external dose estimation //J. Environ. Radioact. 2012. V. 111. P. 18-27.
5. **Saito K., Tanihata I., Fujiwara M., Saito T., Shimoura S., Otsuka T., Onda Y., Hoshi M., Ikeuchi Y., Takahashi F., Kinouchi N., Saegusa J., Seki A., Takemiya H., Shibata T.** Detailed deposition density maps constructed by large-scale soil sampling for gamma-ray emitting radioactive nuclides from the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident //J. Environ. Radioact. 2015. V. 139. P. 308-319.
6. **Bailiff I.K., Stepanenko V.F., Göksu H.Y., Bøtter-Jensen L., Brodski L., Chumak V., Correcher V., Delgado A., Golikov V., Jungner H., Khamidova L.G., Kolizshenkov T.V., Likhtarev I., Meckbach R., Petrov S.A., Sholom S.** Comparison of retrospective luminescence dosimetry with computational modeling in two highly contaminated settlements downwind of the Chernobyl NPP //Health Phys. 2004. V. 86, N 1. P. 25-41.
7. **Bailiff I.K., Stepanenko V.F., Göksu H.Y., Jungner H., Balmukhanov S.B., Balmukhanov T.S., Khamidova L.G., Kisilev V.I., Kolyado I.B., Kolizshenkov T.V., Shoikhet Y.N., Tsyb A.F.** The application of retrospective luminescence dosimetry in areas affected by fallout from the Semipalatinsk nuclear test site: an evaluation of potential //Health Phys. 2004. V. 87, N 6. P. 625-641.
8. **Bailiff I.K., Stepanenko V.F., Göksu H.Y., Bøtter-Jensen L., Correcher V., Delgado A., Jungner H., Khamidova L.G., Kolizshenkov T.V., Meckbach R., Petin D.V., Orlov M.Y., Petrov S.A.** Retrospective luminescence dosimetry: development of approaches to application in populated areas downwind of the Chernobyl NPP //Health Phys. 2005. V. 89, N 3. P. 233-246.
9. **Imanaka T., Endo S., Sugai M., Ozawa S., Shizuma K., Yamamoto M.** Early radiation survey of the Iitate Village, which was heavily contaminated by the Fukushima Daiichi accident, conducted on 28 and 29 March 2011 //Health Phys. 2012. V. 102, N 6. P. 680-686.
10. **Ogino H., Ichiji T., Hattori T.** Verification of screening level for decontamination implemented after Fukushima nuclear accident //Radiat. Prot. Dosimetry. 2012. V. 151, N 1. P. 36-42.
11. **Adalja A.A., Toner E.S., Cicero A., Fitzgerald J., Inglesby T.V.** Radiation at Fukushima: basic issues and concepts //Clinicians' Biosecurity News. 2011. V. 1. P. 3-5.
12. **Ohba T., Hasegawa A., Kohayagawa Y., Kondo H., Suzuki G.** Body surface contamination levels of residents under different evacuation scenarios after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident //Health Phys. 2017. V. 113, N 3. P. 175-182.
13. **McLaughlin P.D., Jones B., Maher M.M.** An update on radioactive release and exposures after the Fukushima Dai-ichi nuclear disaster //Br. J. Radiol. 2012. V. 85, N 1017. P. 1222-1225.
14. **Endo S., Fujii K., Kajimoto T., Tanaka K., Stepanenko V., Kolyzhenkov T., Petukhov A., Akhmedova U., Bogacheva V.** Comparison of calculated beta- and gamma-ray doses after the Fukushima accident with data from single-grain luminescence retrospective dosimetry of quartz inclusions in a brick sample //J. Radiat. Res. 2018. V. 59, N 3. P. 286-290.
15. **Каприн А.Д., Галкин В.Н., Жаворонков Л.П., Иванов В.К., Иванов С.А., Романко Ю.С.** Синтез фундаментальных и прикладных исследований – основа обеспечения высокого уровня научных результатов и внедрения их в медицинскую практику //Радиация и риск. 2017. Т. 26, № 2. С. 26-40.

16. Селёва Н.Г., Романко Ю.С., Жаворонков Л.П., Галкин В.Н., Иванов С.А., Каприн А.Д. МРНЦ им. А.Ф. Цыба – 55 лет. Научно-организационная деятельность Медицинского радиологического научного центра им. А.Ф. Цыба для успешного развития радиологии в России //Радиация и риск. 2017. Т 26, № 3. С. 11-18.

An experience of instrumental estimation of cumulative external doses using single grain luminescence retrospective dosimetry method with quartz containing samples from Fukushima prefecture, Japan

Stepanenko V.F.¹, Endo S.², Kaprin A.D.³, Ivanov S.A.¹, Kajimoto T.², Tanaka K.², Kolyzhenkov T.V.¹, Petukhov A.D.¹, Akhmedova U.A.¹, Bogacheva V.V.¹, Korotkov V.A.¹, Hoshi M.²

¹ A. Tsyb MRRC, Obninsk;

² Hiroshima University, Hiroshima, Japan;

³ NMRCR, Obninsk

The accumulated external radiation doses were measured in samples taken in the areas of radiation fallout as a result of the Fukushima-1 NPP accident using optic-stimulated luminescent dosimetry. Quartz-containing samples (building bricks) were selected in several areas adjacent to the NPP (Minami-soma and Iitate settlements) in March 2014. To exclude the influence of biotite microparticles in the samples that do not have dosimetric properties, luminescent retrospective dosimetry was carried out by single quartz microcrystals. It was found that at a depth of 5-20 mm from the outer surface, the accumulated doses (after subtraction of background doses) for the sample from Minami-soma were 25 ± 6 mGy and 73 ± 18 mGy for the sample from the village of Iitate. At the same time, at a depth of 3-5 mm, the accumulated doses were significantly higher in magnitude and equal to 50 mGy and 140 mGy, respectively. The outer layers of samples with a thickness of up to 2.9 mm were excluded from the analysis in order to avoid uncontrolled reduction of the dosimetric signal due to external light exposure to quartz crystals. It was suggested that the analysis of profiles in thin layers of bricks may be useful to study the contribution of the dose from beta particles to the total dose from gamma-beta radiation. Meanwhile, the accumulated doses from gamma irradiation at a depth of 3-5 mm should be significantly less in comparison with measured ones, since at this depth there is no effect of electron equilibrium for gamma quanta of high energy. It was concluded that the increased accumulated doses at depths of 3-5 mm may be due to external irradiation by beta-particles of contaminated soil and/or an additional contribution of quantum radiation with low energy. This conclusion is important for the interpretation of possible biological effects in irradiation of, for example, human skin and eyes, as well as all surrounding biota by short-range radiation in large-scale radiological accidents at nuclear power plants. The first results of the study are presented, and further work continues.

Keywords: radiological accidents, luminescence retrospective dosimetry, OSL dosimetry, quartz-containing samples, single grain microcrystals of quartz, Fukushima-1 NPP accident, Fukushima prefecture, Minami-soma city, Iitate town, cumulative dose of external irradiation, brick samples, gamma-irradiation, beta-irradiation, accidental depth-dose profile in the sample, input to cumulative dose from short-range irradiation.

References

1. Endo S., Tanaka K., Kajimoto T., Thanh N.T., Otaki J.M., Imanaka T. Estimation of β -ray dose in air and soil from Fukushima Daiichi Power Plant accident. *J. Radiat. Res.*, 2014, vol. 55, no. 3, pp. 476-483.
2. Endo S., Kajimoto T., Tanaka K., Thanh N.T., Hayashi G., Imanaka T. Mapping of cumulative β -ray dose on ground surface around Fukushima area. *J. Radiat. Res.*, 2015, vol. 56, Suppl. 1, pp. 48-55.
3. Tsujimura N., Yoshida T. Beta dose rate measurements with an end-window GM survey meter in environments contaminated by the Fukushima Daiichi nuclear accident. *Prog. Nucl. Sci. Technol.*, 2014, vol. 4, pp. 85-89.

Stepanenko V.F.* – Head of Lab., D. Sc., Biol., Prof.; Ivanov S.A. – Director, MD, Prof.; Kolyzhenkov T.V. – Sen. Res., C. Sc., Biol.; Petukhov A.D. – Researcher; Akhmedova U.A. – Researcher; Bogacheva V.V. – Researcher; Korotkov V.A. – Acting Head of Dep., Lead. Researcher. A. Tsyb MRRC. Endo S. – Head of Lab., Ph.D., Prof.; Kajimoto T. – Head of Lab., Ph.D., Prof.; Tanaka K. – Ph.D., Prof.; Hoshi M. – Ph.D., Prof. Hiroshima University. Kaprin A.D. – General Director, Academician of RAS, MD, Prof. NMRCR.

*Contacts: 4 Korolev Str., Obninsk, Kaluga region, 249036, Russia. Tel.: +7 (484) 399-70-02; e-mail: mrrc@mrrc.obninsk.ru.

4. **Endo S., Kimura S., Takatsuji T., Nanasawa K., Imanaka T., Shizuma K.** Measurement of soil contamination by radionuclides due to Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident and associated cumulative external dose estimation. *J. Environ. Radioact.*, 2012, vol. 111, pp. 18-27.
5. **Saito K., Tanihata I., Fujiwara M., Saito T., Shimoura S., Otsuka T., Onda Y., Hoshi M., Ikeuchi Y., Takahashi F., Kinouchi N., Saegusa J., Seki A., Takemiya H., Shibata T.** Detailed deposition density maps constructed by large-scale soil sampling for gamma-ray emitting radioactive nuclides from the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. *J. Environ. Radioact.*, 2015, vol. 139, pp. 308-319.
6. **Bailiff I.K., Stepanenko V.F., Göksu H.Y., Bøtter-Jensen L., Brodski L., Chumak V., Correcher V., Delgado A., Golikov V., Jungner H., Khamidova L.G., Kolizshenkov T.V., Likhtarev I., Meckbach R., Petrov S.A., Sholom S.** Comparison of retrospective luminescence dosimetry with computational modeling in two highly contaminated settlements downwind of the Chernobyl NPP. *Health Phys.*, 2004, vol. 86, no. 1, pp. 25-41.
7. **Bailiff I.K., Stepanenko V.F., Göksu H.Y., Jungner H., Balmukhanov S.B., Balmukhanov T.S., Khamidova L.G., Kisilev V.I., Kolyado I.B., Kolizshenkov T.V., Shoikhet Y.N., Tsyb A.F.** The application of retrospective luminescence dosimetry in areas affected by fallout from the Semipalatinsk nuclear test site: an evaluation of potential. *Health Phys.*, 2004, vol. 87, no. 6, pp. 625-641.
8. **Bailiff I.K., Stepanenko V.F., Göksu H.Y., Bøtter-Jensen L., Correcher V., Delgado A., Jungner H., Khamidova L.G., Kolizshenkov T.V., Meckbach R., Petin D.V., Orlov M.Y., Petrov S.A.** Retrospective luminescence dosimetry: development of approaches to application in populated areas downwind of the Chernobyl NPP. *Health Phys.*, 2005, vol. 89, no. 3, pp. 233-246.
9. **Imanaka T., Endo S., Sugai M., Ozawa S., Shizuma K., Yamamoto M.** Early radiation survey of the litate Village, which was heavily contaminated by the Fukushima Daiichi accident, conducted on 28 and 29 March 2011. *Health Phys.*, 2012, vol. 102, no. 6, pp. 680-686.
10. **Ogino H., Ichiji T., Hattori T.** Verification of screening level for decontamination implemented after Fukushima nuclear accident. *Radiat. Prot. Dosimetry*, 2012, vol. 151, no. 1, pp. P. 36-42.
11. **Adalja A.A., Toner E.S., Cicero A., Fitzgerald J., Inglesby T.V.** Radiation at Fukushima: basic issues and concepts. *Clinicians' Biosecurity News*, 2011, vol. 1, pp. 3-5.
12. **Ohba T., Hasegawa A., Kohayagawa Y., Kondo H., Suzuki G.** Body surface contamination levels of residents under different evacuation scenarios after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident. *Health Phys.*, 2017, vol. 113, no. 3, pp. 175-182.
13. **McLaughlin P.D., Jones B., Maher M.M.** An update on radioactive release and exposures after the Fukushima Dai-ichi nuclear disaster. *Br. J. Radiol.*, 2012, vol. 85, no. 1017, pp. 1222-1225.
14. **Endo S., Fujii K., Kajimoto T., Tanaka K., Stepanenko V., Kolyzhenkov T., Petukhov A., Akhmedova U., Bogacheva V.** Comparison of calculated beta- and gamma-ray doses after the Fukushima accident with data from single-grain luminescence retrospective dosimetry of quartz inclusions in a brick sample. *J. Radiat. Res.*, 2018, vol. 59, no. 3, pp. 286-290.
15. **Kaprin A.D., Galkin V.N., Zhavoronkov L.P., Ivanov V.K., Ivanov S.A., Romanko Yu.S.** Synthesis of basic and applied research is the basis of obtaining high-quality findings and translating them into clinical practice. *Radiatsiya i risk – Radiation and Risk*, 2017, vol. 26, no. 2, pp. 26-40. (In Russian).
16. **Seleva N.G., Romanko Yu.S., Zhavoronkov L.P., Galkin V.N., Ivanov S.A., Kaprin A.D.** 55-th anniversary of the A. Tsyb MRRC. Scientific and organizational activity of A. Tsyb Medical Radiological Research Center for successful development of radiology in Russia. *Radiatsiya i risk – Radiation and Risk*, 2017, vol. 26, no. 3, pp. 11-18. (In Russian).