

ПРИБОРЫ И МЕТОДЫ ИЗМЕРЕНИЯ ^{14}C (обзор)

© 2021 г. Е. И. Назаров^{а,*}, А. В. Кружалов^а, А. А. Екидин^б, М. Е. Васянович^б,
В. В. Пархомчук^с, С. А. Растигеев^с, П. Н. Калинин^д, Е. В. Пархомчук^{е,ф}

^аУральский федеральный университет имени первого Президента России Б.Н. Ельцина
Россия, 620002, Екатеринбург, ул. Мира, 19

^бИнститут промышленной экологии УрО РАН
Россия, 620219, Екатеринбург, ул. Софьи Ковалевской, 20

^сИнститут ядерной физики им. Г.И. Будкера СО РАН
Россия, 630090, Новосибирск, просп. Академика Лаврентьева, 11

^дИнститут катализа им. Г.К. Борескова СО РАН
Россия, 630090, Новосибирск, просп. Академика Лаврентьева, 5

^еИнститут археологии и этнографии СО РАН
Россия, 630090, Новосибирск, просп. Академика Лаврентьева, 17

^фНовосибирский государственный университет
Россия, 630090, Новосибирск, ул. Пирогова, 2

*e-mail: e.i.nazarov@urfu.ru

Поступила в редакцию 17.06.2021 г.

После доработки 28.06.2021 г.

Принята к публикации 16.07.2021 г.

Рассмотрены основные способы измерения ^{14}C : счетчик Либби, пропорциональный газовый счетчик, метод жидкостного сцинтилляционного счета и метод ускорительной масс-спектрометрии. Для каждого представленного метода описана специфика проведения измерений, показаны преимущества и недостатки. Представлены результаты измерения концентрации радиоуглерода с помощью метода ускорительной масс-спектрометрии в годовых кольцах сосны, выросшей в Академгородке г. Новосибирска. Полученная концентрация ^{14}C в измеренных образцах варьируется от 95.4 ± 0.2 рМС до 191.5 ± 2.2 рМС.

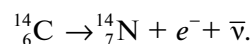
DOI: 10.31857/S0032816221060185

ВВЕДЕНИЕ

^{14}C является радиоактивным изотопом углерода с атомным ядром, содержащим 6 протонов и 8 нейтронов. В настоящее время актуальной является задача получить метрологически обоснованные данные об активности радиоуглерода в исследуемом образце. Это обусловлено несколькими факторами. Во-первых, использование ^{14}C в радиоизотопном датировании позволяет установить возраст исследуемых биоматериалов до 60000 лет [1–6]. Данное исследование наиболее часто применяется в археологии, ледниковой геологии, физике атмосферы, гляциологии и других науках для датировок, но также может выступать и в качестве метки различных природных процессов. Во-вторых, ^{14}C применяется в медицине, например, для проведения дыхательных тестов на *Helicobacter Pylori* [7–9]. В-третьих, ^{14}C вносит вклад в облучение населения, так как присутствует в атмосферных выбросах ядерных реакторов

различного типа, а также заводов по переработке топлива [10, 11].

^{14}C был впервые экспериментально обнаружен в 1936 г. британскими физиками W.E. Burcham и M. Goldhaber, облучавшими ядра ^{14}N медленными нейтронами в фотоэмульсии по реакции $^{14}\text{N}(n, p)^{14}\text{C}$ [12]. Период полураспада ^{14}C , согласно [13], составляет 5700 ± 30 лет. ^{14}C является β -излучателем и образует в процессе распада ^{14}N :



Максимальная энергия β -излучения составляет 156 кэВ, средняя – 45 кэВ [14].

^{14}C образуется как естественным, так и антропогенным путем. Естественный путь образования основан на взаимодействии ^{14}N , входящего в состав атмосферы Земли, и нейтронов, являющихся

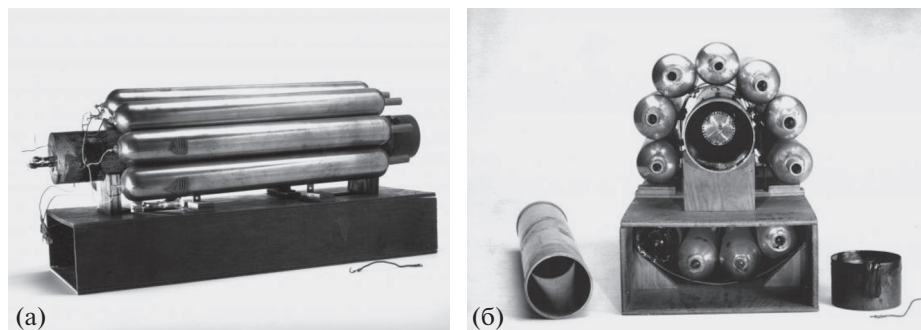
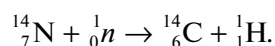


Рис. 1. Внешний вид счетчика Либби: а — с закрытой крышкой, б — с открытой [21].

продуктами реакции космических лучей и различных веществ атмосферы:



Ежегодно таким образом образуется около $1.4 \cdot 10^6$ ГБк радиоуглерода, а общее количество ^{14}C в атмосфере оценивается в $1.4 \cdot 10^8$ ГБк. Наибольшее количество ^{14}C заключено в мировом океане — около $1.0 \cdot 10^{10}$ ГБк [15].

К антропогенным источникам относятся испытания ядерного оружия с 1945 по 1980 гг., в результате которых в окружающую среду поступило $2.2 \cdot 10^8$ ГБк ^{14}C [16], а также выбросы предприятий ядерного топливного цикла. Во время работы ядерного реактора ^{14}C образуется в основном путем нейтронной активации ^{17}O , ^{14}N , ^{13}C и в меньшей степени ^{15}N и ^{16}O , присутствующих в тепловыделяющих элементах, конструкционных материалах, замедлителе и теплоносителе, а также за счет реакций тройного деления урана и плутония в ядерном топливе [17]. По оценкам [18], на действующих атомных электростанциях по всему миру ежегодно образуется около $1.1 \cdot 10^6$ ГБк ^{14}C , и из этого количества примерно $1.1 \cdot 10^5$ ГБк/год ^{14}C выбрасывается в атмосферу в газообразной форме, в то время как около $3.7 \cdot 10^5$ ГБк/год ^{14}C выбрасывается заводами по переработке ядерного топлива как в газообразной, так и в жидкой форме. Способ образования ^{14}C на атомных элек-

тростанциях зависит от типа ядерного реактора [19], а именно: от степени обогащения урана в топливе, концентрации кислорода и азота в топливе, конструкционных материалах, замедлителе и теплоносителе.

Измерение активности ^{14}C связано с трудностями регистрации β -частиц, поскольку их максимальная энергия составляет 156 кэВ. Для β -частиц с такой энергией не подойдут обычные твердотельные детекторы (сцинтилляционные, полупроводниковые). Вдобавок малая энергия β -частиц не позволяет использовать для измерения образцы большого объема ввиду самопоглощения. В связи с этим методы измерения радиоуглерода должны обладать: высокой эффективностью регистрации слабопроникающего β -излучения, низким значением фоновой составляющей приборов и хорошей стабильностью аппаратуры.

В данной статье рассмотрены основные методы измерения ^{14}C , начиная от первых — газоразрядных счетчиков и заканчивая современными методами — ускорительной масс-спектрометрией. Приведены преимущества и недостатки каждого метода, а также описано практическое применение метода ускорительной масс-спектрометрии.

МЕТОДЫ ИЗМЕРЕНИЯ ^{14}C

Счетчик Либби

В 1946 г. американский физик У. Либби разработал первую аппаратуру для измерения ^{14}C . Для этого он использовал специальную систему, в которой счетчик Гейгера—Мюллера с латунными стенками был окружен другими счетчиками, включенными с ним в схему антисовпадений (рис. 1, 2). Образец чистого углерода в виде сажи наносился на тонкостенный цилиндр и помещался внутрь центрального счетчика. Применение внешних счетчиков позволило избежать регистрации ложных импульсов, и центральный счетчик регистрировал только частицы, испускаемые счетным образцом [20].

В настоящее время данный метод не применяется, так как имеет ряд недостатков: низкую эф-

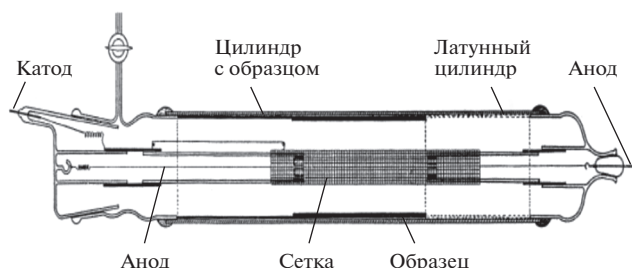


Рис. 2. Устройство счетчика Либби [22].

фективность регистрации (~5.5%), трудность получения химически чистого углерода (свободного от радикалов и примесей), большую вероятность загрязнения приготовленного счетного образца радиоактивными веществами, находящимися в воздухе.

Пропорциональные газовые счетчики

В 50-е годы 20-го века на смену методу, предложенному Либби, пришел метод измерения ^{14}C с использованием газовых пропорциональных счетчиков. Главным их отличием было то, что выделенный из образца газ $^{14}\text{CO}_2$ помещался непосредственно в чувствительный объем детектора. В работе [23] вместо кольца из счетчиков Гейгера—Мюллера использовались 2 концентрические трубки, между которыми на равных расстояниях были размещены 11 анодных нитей (рис. 3). Преимущество данной конструкции перед кольцом из отдельных счетчиков состоит в том, что она обеспечивает устойчивую систему и одинаковый пусковой потенциал всех счетчиков.

Катоды пропорциональных счетчиков чаще всего изготавливались из материалов, содержащих малое количество радиоактивных примесей, например меди или нержавеющей стали. Внутреннюю поверхность катода покрывали веществами, не вступающими в реакцию с газами, чтобы снизить вероятность осаждения части пробы на стенках камеры. Для повышения чувствительности метода могут применяться либо счетчики большого объема, до 10 л, либо счетчики с повышенным давлением рабочего газа (2–10 атм).

Несмотря на все достоинства пропорциональных счетчиков (высокая эффективность регистрации, низкий фон), они имеют ряд недостатков. Существуют трудности очистки счетного газа от радиоактивных примесей и удаления осажденных частиц пробы со стенок камеры для последующих измерений. Кроме того, применение пропорциональных счетчиков большого объема приводит к увеличению размеров и массы элементов защиты.

Как правило, для счетчика объемом 1 л, заполненного CO_2 при атмосферном давлении, требуется 0.5 г углерода в образце. Данное требование является критичным для многих областей исследования, особенно археологии, где обычно доступны миллиграммовые образцы. Поэтому актуальной стала разработка микросчетчиков объемом несколько миллилитров, которым требовались единицы миллиграммов углерода в образце. Недостатком таких счетчиков было время измерения — до 1 месяца. Микросчетчики не получили широкого распространения ввиду быстроразвивающегося метода ускорительной масс-спектрометрии [21].

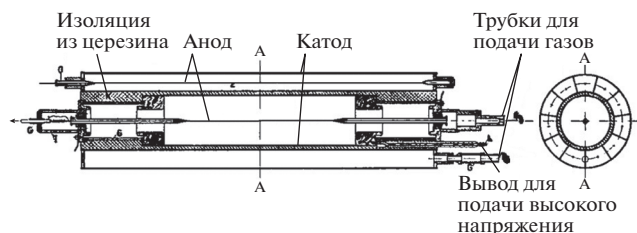


Рис. 3. Газонаполненный пропорциональный счетчик [23].

Метод жидкостного сцинтилляционного счета

Развитие метода жидкостного сцинтилляционного счета началось в 50-е годы 20-го века почти одновременно с методом газового счетчика. Принцип жидкостного сцинтилляционного счета основан на регистрации сцинтилляций, вызванных заряженными частицами, в данном случае β -частицами. Жидкий сцинтиллятор представляет собой смесь из растворителя, собственно сцинтиллятора и сместителя спектра. Интенсивность сцинтилляций пропорциональна энергии частиц, что позволяет электронными методами выделять интересующий исследователя диапазон энергии частиц.

Радиоактивные образцы и сцинтилляционную смесь помещают в небольшие прозрачные (часто стеклянные или пластиковые) вials, которые устанавливают перед фоторегистрирующими приборами, чаще всего фотоэлектронными умножителями ($\Phi Э У$). Многие приборы имеют два $\Phi Э У$, соединенных по схеме совпадений (рис. 4), отсекающей шум $\Phi Э У$. Эффективность счета зависит от методики измерения и для ^{14}C может достигать более 95%. К недостаткам метода относятся эффекты гашения — ряд эффектов, приводящих к энергетическим потерям в процессе преобразования энергии распада в электрические импульсы $\Phi Э У$ [24].

Метод ускорительной масс-спектрометрии

В вышеупомянутых методах регистрации ^{14}C детектируются только β -частицы небольшого количества атомов углерода, претерпевающих распад. В ускорительной масс-спектрометрии, появившейся в 70-е годы, происходит поштучный подсчет полного количества атомов радиоуглерода в образце. Работа ускорительного масс-спектрометра основана на измерении интенсивности пучков ионов разной массы. Чувствительность данного метода позволяет отделять пучок с ультранизкой относительной интенсивностью (на один атом ^{14}C приходится примерно 10^{12} атомов ^{12}C) от соседних пучков очень высокой интенсивности, таких как пучки ^{13}C и ^{12}C .

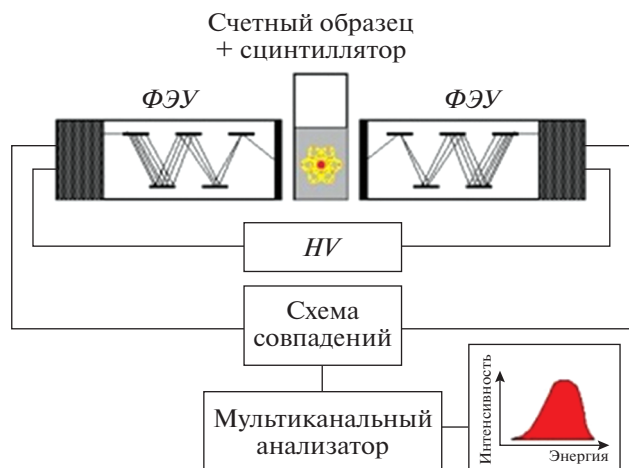


Рис. 4. Функциональная схема жидкостного сцинтилляционного спектрометра [25]. ФЭУ – фотоэлектронные умножители; HV (High voltage) – высокое напряжение.

Так как период полураспада ^{14}C 5700 лет (в расчетах радиоуглеродного возраста используется 5568 лет), то 1 г углерода, выделенного из современной древесины, будет давать только 1 распад за 4 с. Для получения точности 0.1% нужно накопить 10^6 распадов, для чего потребуется $4 \cdot 10^6$ с (почти 46 сут). Если взять 100 г углерода, время сократится до 11 ч. Для анализа методом ускорительной масс-спектрометрии достаточно взять всего 1 мг углерода, с эффективностью 2% превратить его в заряженные ионы и посчитать количество ионов ^{14}C [26].

На рис. 5 представлена схема ускорительного масс-спектрометра, который был создан в 2011 г. и запущен Институтом ядерной физики имени Г.И. Будкера СО РАН в Новосибирске [27]. Чувствительность данной установки составляет 10^{-15} ($^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$).

Проведение радиоуглеродного анализа методом ускорительной масс-спектрометрии состоит из следующих этапов.

1. Генерация ионного пучка. 23 графитизированных образца помещают в барабан на расстоянии 7 мм друг от друга. Маленький стальной контейнер с жидким цезием нагревают до 600°C . Образовавшиеся пары цезия попадают на танталовый ионизатор, нагретый до 100°C , и, далее, ускоряясь напряжением 8 кВ, – на исследуемый образец. Таким образом генерируется отрицательный ионный пучок, состоящий из $^{12}\text{CH}_2^-$, $^{13}\text{CH}^-$, $^{14}\text{C}^-$, с энергией на выходе из ионного источника 25 кВ. Отрицательное зарядовое состояние первоначального пучка позволяет избавиться от ионов $^{14}\text{N}^-$, которые являются крайне нестабильными.

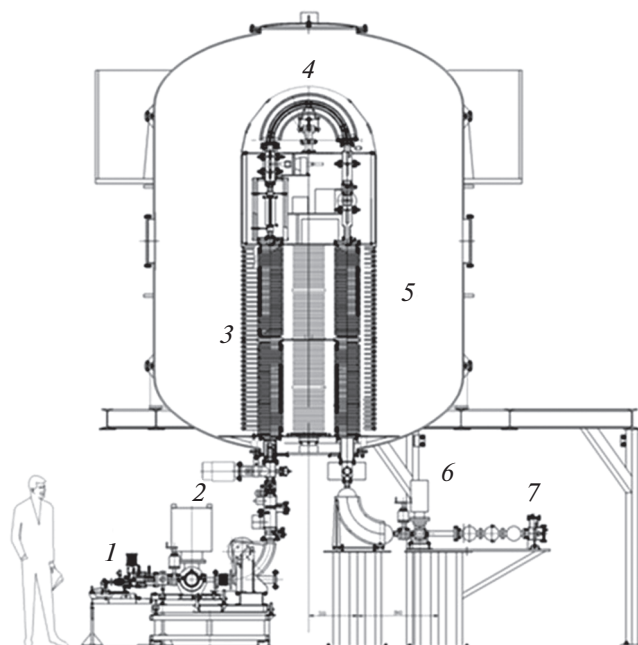


Рис. 5. Схема ускорительного масс-спектрометра в ИЯФ СО РАН. 1 – ионный источник; 2 – поворотный магнит; 3 – первая ускорительная трубка; 4 – мишень из паров магния; 5 – вторая ускорительная трубка; 6 – фильтр магнитным полем; 7 – тонкопленочный времяпролетный детектор.

2. Фокусировка ионного пучка и его поворот на 90° магнитным полем, в результате чего он попадает в первую ускорительную трубку, где он ускоряется до напряжения 1 МВ. Затем пучок попадает в мишень на парах магния.

3. Перезарядка ионов в мишени на парах магния до зарядового состояния $3+$, в результате чего отсеиваются молекулярные ионы. Полученный пучок, состоящий из частиц $^{12}\text{C}^{3+}$, $^{13}\text{C}^{3+}$, $^{14}\text{C}^{3+}$, поворачивается на 180° и попадает во вторую ускорительную трубку, где получает дополнительную энергию 3 МэВ. Пучок частиц поворачивается магнитным полем, происходит их селекция по массе и заряду, и пучок $^{14}\text{C}^{3+}$ попадает в счетчики.

4. Регистрация ионов $^{14}\text{C}^{3+}$ тонкопленочным времяпролетным детектором, состоящим из электростатического и циклоидального датчиков. В датчике установлена пленка, пролетая через которую, ионы вызывают эмиссию электронов. Далее электроны попадают на микроканальную пластину, где происходит их умножение. В это время проводится измерение времени пролета между датчиками.

Конечным результатом анализа является масс-спектр ионов, представляющий собой зависимость измеряемого тока от массы иона [28].

ИЗМЕРЕНИЕ КОНЦЕНТРАЦИИ ^{14}C В ГОДИЧНЫХ КОЛЬЦАХ СОСНЫ

Ускорительная масс-спектрометрия позволяет определять точный возраст исследуемых образцов в таких научных дисциплинах, как археология, геология, океанология и др. Помимо этого, она может быть использована для измерения концентрации ^{14}C в различных объектах окружающей среды с целью как радиоэкологического исследования [29], так и ретроспективной оценки содержания радиоуглерода в атмосфере путем измерения активности ^{14}C в годичных кольцах деревьев [30].

Для оценки дополнительного вклада в природное содержание радиоуглерода при эксплуатации объектов использования атомной энергии необходимо получить данные о фоновых значениях. Метод ускорительной масс-спектрометрии наилучшим образом подходит для этих целей, поскольку является наиболее чувствительным и точным.

Поскольку целлюлоза — основной компонент древесины — не вступает во взаимодействие с углеродом из окружающей среды, а период полураспада ^{14}C составляет 5700 лет, то каждое годичное кольцо дерева содержит информацию об активности ^{14}C в атмосфере за каждый год на протяжении всего жизненного цикла дерева. Ретроспективная оценка содержания радиоуглерода в атмосфере в различные периоды времени была получена при изучении колец древесины в Академгородке г. Новосибирска — регионе, расположенном в относительном удалении от действующих объектов использования атомной энергии. На рис. 6 представлен анализ годичных колец сосны, выросшей в Академгородке г. Новосибирска. Единицы измерения ^{14}C — рМС (Percent Modern Carbon) — были приняты во второй половине 20-го века. 100 рМС = 227 Бк/г С соответствуют гипотетической удельной активности ^{14}C в атмосфере в 1950 г. без какого-либо человеческого воздействия [31].

Возраст сосны, выросшей в Академгородке, составлял 113 лет. Отобранный керн был разделен на годичные кольца, из которых выделена целлюлоза. Методика выделения целлюлозы заключалась в следующем: фрагмент кольца заливали 13 мл раствора катализатора и окислителя и выдерживали 70 мин при температуре 85°C. На 6 проб колец общей массой до 1.5 г окислительный раствор готовили путем растворения 2.25 г вольфрамата натрия двухводного (ЧДА) в 38 мл дистиллированной воды, затем по каплям добавляли 1.8 мл концентрированной серной кислоты (ОСЧ), после чего образовавшийся желтый осадок растворяли добавлением 40 мл 33%-ного раствора пероксида водорода (ОСЧ). Отбеленные таким образом волокна целлюлозы отмывали и сушили. Полученную целлюлозу полностью сжигали и превращали в графитоподобный углерод на аб-

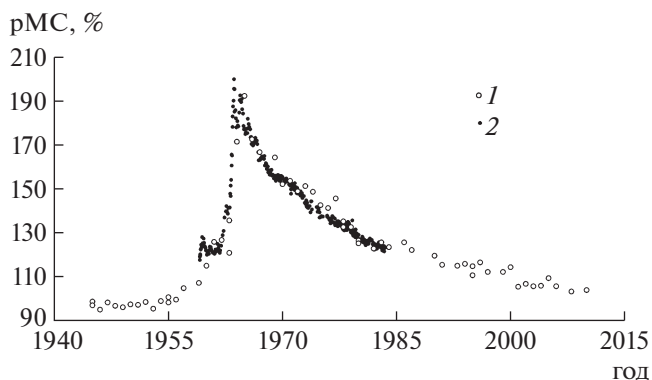


Рис. 6. Концентрация ^{14}C : 1 — в годичных кольцах сосны, выросшей в Академгородке г. Новосибирска, 2 — в воздухе на станции Вермунт, Австрия [33].

сорбционно-каталитической установке, предназначенной для получения мишеней для ускорительной масс-спектрометрии [32]. Для получения одной графитовой мишени требовалось 5–7 мг очищенной целлюлозы. После этого был проведен анализ полученных образцов на ускорительном масс-спектрометре. Согласно рис. 6, начиная с 50-х годов 20-го века наблюдается почти двукратное увеличение концентрации ^{14}C , вызванное испытаниями ядерного оружия в период с 1945 по 1980 г. Такое увеличение характерно для всего северного полушария, подтверждением этому являются данные по активности ^{14}C в окружающем воздухе на станции Вермунт, Австрия [33].

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Методы измерения ^{14}C стремительно развивались начиная со второй половины 20-го века. Созданный Либби газоразрядный счетчик совершил настоящую революцию в датировании и оказал огромное влияние на развитие множества наук, главным образом на археологию. Метод радиоуглеродного датирования позволил с большей точностью проводить датировку объектов по сравнению с предыдущими методами (стратиграфия и др.), а также сравнивать и синхронизировать события на больших временных расстояниях.

Созданному Либби счетчику, в который измеряемый углерод помещался в виде твердого образца (сажи), быстро пришел на смену газонаполняемый счетчик. Это обусловлено недостатками первого: низкой эффективностью регистрации, трудоемким процессом подготовки проб, а также вероятностью загрязнения образца радиоактивными веществами, находящимися в воздухе.

Улучшить чувствительность измерений помогли газовые пропорциональные счетчики, в которые образец помещался в виде газа (чаще всего CO_2). Однако, помимо проблемы подготовки проб — пе-

ревода измеряемого образца в газообразное состояние, добавилась проблема выбора материалов детектора, которые не должны содержать радиоактивных веществ.

В настоящее время наиболее популярными являются метод жидкостного сцинтилляционного счета и метод ускорительной масс-спектрометрии. Первый метод хорошо применим для проб большого объема и проб с высокой активностью. В нашей стране метод жидкостного сцинтилляционного счета представлен достаточно широко и применяется в основном для контроля ^{14}C в выбросах объектов использования атомной энергии [34], а также в окружающей среде [35]. К недостаткам данного метода относятся явления гашения, которые снижают эффективность регистрации. Метод ускорительной масс-спектрометрии является наиболее чувствительным среди всех представленных методов, он напрямую подсчитывает количество атомов ^{14}C в измеряемом образце. Недостатком данного метода является его стоимость. Выполненный анализ ^{14}C в годичных кольцах сосны, выросшей в Академгородке г. Новосибирска, подтвердил ранее опубликованные данные по активности ^{14}C в атмосфере во всем северном полушарии.

БЛАГОДАРНОСТИ

Авторы выражают благодарность Е.Е. Воробьевой за помощь в подготовке проб древесных образцов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Молодин В.И., Ненахов Д.А., Мильникова Л.Н., Райнхольд С., Пархомчук Е.В., Калинин П.Н., Пархомчук В.В., Растигеев С.А. // Археология, этнография и антропология Евразии. 2019. Т. 47. № 1. С. 15. <https://doi.org/10.17746/1563-0102.2019.47.1.015-022>
2. Молодин В.И., Мильникова Л.Н., Нестерова М.С., Кобелева Л.С., Ненахов Д.А., Пархомчук Е.В., Райнхольд С., Петрожицкий А.В., Пархомчук В.В., Растигеев С.А. // Проблемы археологии, этнографии, антропологии Сибири и сопредельных территорий. 2019. Т. 25. С. 157. <https://doi.org/10.17746/2658-6193.2019.25.157-166>
3. Шнайдер С.В., Пархомчук Е.В. // Радиоуглерод в археологии и палеоэкологии: прошлое, настоящее, будущее. Материалы международной конференции. Санкт-Петербург, 2020. С. 111. <https://doi.org/10.31600/978-5-91867-213-6-111-113>
4. Rudaya N., Krivonogov S., Słowinski M., Cao X., Zhilich S. // Postglacial history of the Steppe Altai: Climate, fire and plant diversity. Quaternary Science Reviews. 2020. V. 249. P. 106616. <https://doi.org/10.1016/j.quascirev.2020.106616>
5. Fedotov A.P., Trunova V.A., Stepanova O.G., Vorobyeva S.S., Parkhomchuk E.V., Krapivina S.M., Zheleznyakova T.O., Legkodymov A.A. // Quaternary International, available online 8 June 2021. <https://doi.org/10.1016/j.quaint.2021.05.026>
6. Васильев С.К., Пархомчук Е.В., Середнев М.А., Милютин К.И., Кузьмин Я.В., Калинин П.Н., Растигеев С.А. // Проблемы археологии, этнографии, антропологии Сибири и сопредельных территорий. 2018. Т. 24. С. 42. <https://doi.org/10.17746/2658-6193.2018.24.042-046>
7. Caglar M., Belzberg A.S., Spruston B., Sexsmith G. // Clin. Nucl. Med. 1999. V. 24. № 9. P. 674. <https://doi.org/10.1097/00003072-199909000-00007>
8. Mattar R., Silva F.M., Alexandrino A.M., Laudanna A.A. // Revista do Instituto de Medicina Tropical de São Paulo. 1999. V. 41. № 1. P. 3. <https://doi.org/10.1590/S0036-46651999000100002>
9. Rasool S., Abid S., Jafri W. // World J. Gastroenterol. 2007. V. 13. № 6. P. 925. <https://doi.org/10.3748/wjg.v13.i6.925>
10. Крышев А.И., Крышев И.И., Васянович М.Е., Екидин А.А., Капустин И.А., Мурашова Е.Л. // Атомная энергия. 2020. Т. 128. № 1. С. 46.
11. Екидин А.А., Жуковский М.В., Васянович М.Е. // Атомная энергия. 2016. Т. 120. № 2. С. 106.
12. Burcham W.E., Goldhaber M. // Mathematical Proceedings of the Cambridge Philosophical Society. 1936. V. 32. № 4. P. 632. <https://doi.org/10.1017/S0305004100019356>
13. Audi G., Kondev F.G., Wang M., Huang W.J., Naimi S. // Chinese Physics C. 2017. V. 41. № 3. 030001. <https://doi.org/10.1088/1674-1137/41/3/030001>
14. Kocher D.C. Nuclear decay data for radionuclides occurring in routine releases from nuclear fuel cycle facilities. United States, 1977. <https://doi.org/10.2172/7086358>
15. Management of waste containing tritium and carbon-14. Technical Reports Series № 421. Vienna: International Atomic Energy Agency, 2004. https://www-pub.iaea.org/MTCD/Publications/PDF/TRS421_web.pdf
16. Haag G.L. // Radioactive Waste Management Handbook. V. 2. Treatment of Gaseous Effluents at Nuclear Facilities. Chur and New York, 1991. P. 269.
17. Magnusson Å. PhD thesis. Lund University, 2007. https://www.kth.se/polopoly_fs/1.469654.1550154389!/C-14%20Produced%20by%20Nuclear%20Power%20Reactors%20E2%80%93%20Generation%20and%20Characterization%20of%20Gaseous.pdf
18. Hou X. // Journal of the Nuclear Fuel Cycle and Waste Technology. 2018. V. 16. № 1. P. 11. <https://doi.org/10.7733/jnfcwt.2018.16.1.11>
19. Назаров Е.И., Екидин А.А., Васильев А.В. // Известия высших учебных заведений. Физика. 2018. Т. 61. № 12–2. С. 67.
20. Рублевский В.П., Яценко В.Н., Чанышев Е.Г. Роль углерода-14 в техногенном облучении человека. М.: ИздАТ, 2004.
21. Povinec P., Litherland A., von Reden K. // Radiocarbon. 2009. V. 51. № 1. P. 45. <https://doi.org/10.1017/S0033822200033701>

22. Warner M. Carbon-14 is 75 ± 0 Years Old. National Museum of American History, 2015. <https://american-history.si.edu/blog/carbon-14>
23. de Vries Hl., Barendsen G.W. // *Physica*. 1953. V. 19. № 1–12. P. 987. [https://doi.org/10.1016/S0031-8914\(53\)80110-2](https://doi.org/10.1016/S0031-8914(53)80110-2)
24. Liquid Scintillation Counting. Perkin Elmer. <https://www.perkinelmer.com/lab-products-and-services/application-support-knowledgebase/radiometric/liquid-scintillation-counting.html#Liquidscintillationcounting-Liquidscintillationcountingtheory>
25. Liquid Scintillation counting. Nuclear and Radiochemistry Teaching Material Wiki. https://nucwik.com/From_WikiSpaces/mainSpace/Liquid%20Scintillation%20Counting.html
26. Linick T.W., Damon P.E., Donahue D.J., Jull A.J.T. // *Quaternary International*. 1989. V. 1. P. 1. [https://doi.org/10.1016/1040-6182\(89\)90004-9](https://doi.org/10.1016/1040-6182(89)90004-9)
27. Алиновский Н.И., Гончаров А.Д., Клюев В.Ф., Константинов С.Г., Константинов Е.С., Крючков А.М., Пархомчук В.В., Петриченко М.В., Растигеев С.А., Рева В.Б. // *ЖТФ*. 2009. Т. 79. № 9. P. 110.
28. Пархомчук В.В., Петрожицкий А.В., Растигеев С.А. // Письма в журнал “Физика элементарных частиц и атомного ядра”. 2012. Т. 9. № 4–5. С. 729.
29. Nazarov E.I., Ekidin A.A., Vasiljev A.V., Vasyanovich M.E., Nichiporchuk A.O., Kozhemyakin V.A., Kapustin I.A., Privalov I.A., Parkhomchuk E.V., Rastigeev S.A., Parkhomchuk V.V. // *RAD Conf. Proc.* 2020. V. 4. P. 142. <https://doi.org/10.21175/RadProc.2020.30>
30. Parkhomchuk E., Kalinkin P., Rastigeev S., Parkhomchuk V., Kuleshov D., Lysikov A., Krivonogov S. // 14th International Workshop on Present Earth Surface Processes and Long-term Environmental Changes in East Eurasia. Abstracts. Novosibirsk, 2017. P. 77.
31. Stenström K., Skog G., Georgiadou E., Genberg J., Mellström A. // Division of Nuclear Physics Internal Report LUNFD6. 2011. NFFR-3111. P. 1.
32. Lysikov A.I., Kalinkin P.N., Sashkina K.A., Okunev A.G., Parkhomchuk E.V., Rastigeev S.A., Parkhomchuk V.V., Kuleshov D.V., Vorobyeva E.E., Dralyuk R.I. // *International Journal of Mass Spectrometry and Ion Processes* (International Journal of Mass Spectrometry and Ion Processes up to 1998). 2018. V. 433. P. 11. <https://doi.org/10.1016/j.ijms.2018.08.003>
33. Levin I., Kromer B., Schoch-Fischer H., Bruns M., Münich M., Berdau D., Vogel J.C., Münnich K.O. $\delta^{14}\text{C}_2$ record from Vermont // In *Trends: A Compendium of Data on Global Change. Carbon Dioxide Information Analysis Center. Oak Ridge National Laboratory. U.S. Department of Energy, Oak Ridge, Tenn., U.S.A.*, 1994.
34. Vasyanovich M., Vasilyev A., Ekidin A., Kapustin I., Kryshev A. // *Nuclear Engineering and Technology*. 2019. V. 51. № 4. P. 1176. <https://doi.org/10.1016/j.net.2019.02.010>
35. Lebedev S.V., Kulkova M.A., Zarina L.M., Nesterov E.M. // *Proc. and Phenomena on the Boundary Between Biogenic and Abiogenic Nature: Collection of papers presented at VI International Symposium. Saint-Petersburg, 2018. P. 297.* https://doi.org/10.1007/978-3-030-21614-6_17