

МОСКОВСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ имени М.В. Ломоносова ХИМИЧЕСКИЙ ФАКУЛЬТЕТ

Основы радиохимии и радиоэкологии

ПРАКТИКУМ

МОСКВА 2016

Практикум «Основы радиохимии и радиоэкологии» подготовлен коллективом преподавателей кафедры радиохимии Химического факультета МГУ имени М.В. Ломоносова в составе:

Алиев Рамиз Автандилович, Афанасов Михаил Иванович, Афиногенов Алексей Максимович Бадун Геннадий Александрович, Бердоносов Сергей Серафимович, Гопин Александр Викторович Калмыков Степан Николаевич, Куликов Леонид Алексеевич, Северин Александр Валерьевич, Чернышева Мария Григорьевна.

Под редакцией профессора Афанасова М.И.

Рецензенты:

И.Г. Тананаев – доктор химических наук, профессор, заместитель директора по науке ОТИ Национального ядерного исследовательского университета «МИФИ», член-корр. РАН;

Н.Е. Щепина – доктор химических наук, заведующая лабораторией радиохимии Естественнонаучного института Пермского государственного национального исследовательского университета

Рекомендовано

Федеральным учебно-методическим объединением в системе высшего образования по укрупненной группе специальностей и направлений подготовки 04.00.00 Химия в качестве учебного пособия для обучающихся по основным образовательным программам высшего образования уровня бакалавриата по направлению подготовки 04.03.01 Химия и специальности 04.05.01 Фундаментальная и прикладная химия

ISBN 978-588762-031-2

© Коллектив авторов, 2016

«ОСНОВЫ РАДИОХИМИИ И РАДИОЭКОЛОГИИ. ПРАКТИКУМ».

Учебное пособие. Под редакцией М.И. Афанасова

М: ЗАО «ПРИНТ-АТЕЛЬЕ», 2016

Кафедра радиохимии с момента ее основания в 1959 г. проводила обучение студентов Химического факультета МГУ имени М.В. Ломоносова по курсу «Метод радиоактивных индикаторов в химии». В последние годы в связи с возрастающей необходимостью экологического, в том числе и радиоэкологического мониторинга среды обитания, курс был трансформирован в «Основы радиохимии и радиоэкологии», в рамках которого, начиная с 2013 года, студентам химического факультета и факультета фундаментальной физико-химической инженерии читается курс лекций.

Теоретический материал курса (радиоактивные превращения, законы распада и накопления радионуклидов, взаимодействие излучения с веществом и его регистрация, ядерные реакции, методы получения и разделения радионуклидов, применение радионуклидов в научных исследованиях, радиационная безопасность, радиоактивность окружающей среды, ядерная медицина, основы ядерной энергетики) приведен в новых учебниках «Радиактивность» (Алиев Р.А., Калмыков С.Н., СПб; Лань, 2013) и «Радиохимия» (Бекман И.Н., М.; Юрайт, 2014). Кроме того, ядерно-физические основы радиохимии рассмотрены в книге «Радиоактивные индикаторы в химии. Основы метода» (под редакцией Лукьянова В.Б., М.; Высшая школа, 1985).

Настоящее учебное пособия содержит описание 17 лабораторных работ (как правило, по учебному плану студенты выполняют 6-7 работ) с кратким теоретическим введением к каждой работе.

Лабораторные работы условно распределены по 3 модулям:

- 1. радиоактивность и методы регистрации радиоактивных излучений;
- 2. контроль радиационной обстановки и радиоактивность окружающей среды;
- 3. применение радионуклидов в химии, медицине и других областях науки и техники.

В пособии на примере ряда практических работ рассматриваются вопросы математической статистики и обработки результатов измерений. В пособие включены примеры расчетных задач по некоторым разделам курса для самостоятельного решения. Приведены необходимые для расчетов справочные таблицы.

РАБОТА 1. ИЗМЕРЕНИЕ РАДИОАКТИВНОСТИ С ПОМОЩЬЮ СЧЕТЧИКОВ ГЕЙГЕРА-МЮЛЛЕРА

1.1. Принцип работы газовых ионизационных детекторов

Ядерное излучение в подавляющем большинстве случаев регистрируется с помощью детекторов – устройств, преобразующих энергию ядерного излучения в соответствующие электрические сигналы, которые затем измеряются и записываются радиометрической аппаратурой. Работа детекторов основана на ионизирующем действии излучения или эффектах, обусловленных ионизацией вещества. Ниже кратко рассматривается механизм регистрации ядерного излучения с помощью газовых ионизационных детекторов, среди которых наибольшее применение находят счетчики Гейгера-Мюллера.

Детекторы представляют собой заполненное газом устройства с двумя электродами, на которые подается высокое напряжение (схема включения на рис. 1.1). Под действием электрического поля электроны и ионы, образовавшиеся при прохождении ядерной частицы (фотона) через рабочий объем детектора, направленно перемещаются к электродам. При этом происходит «разряд» источника высокого напряжения че-



Рис. 1.1. Схема включения газового счетчика: 1- анод; 2 – катод; 3 – изолятор; 4- источник высокого напряжения; 5- блок регистрации; **R** – нагрузочное сопротивление; **C** - конденсатор

рез газовую среду и создается разность потенциалов (выходной сигнал) на сопротивлении R. Амплитуда выходного сигнала во многом определяется процессом развития разряда, который, в свою очередь, зависит от приложенного напряжения, конструкции детектора и состава газа-наполнителя.

В настоящей работе используются цилиндрические самогасящиеся галогенные счетчики Гейгера-Мюллера типа СТС, рабочий объем которых заполнен смесью аргона (основной компонент) и хлора или паров брома (гасящая добавка). Стенки цилиндра являются катодом, а натянута по

оси счетчика тонкая металлическая нить – анодом. На электроды подается рабочее напряжение 400÷450 В. Поскольку диаметры электродов различаются между собой в сотни раз, напряженность поля вблизи нити на 2-3 порядка выше, чем около стенки цилиндра. Следует отметить, что цилиндрический катод-стенка и расположенный коаксиально анод-нить являются общим элементом конструкции счетчиков Гейгера-Мюллера любого типа.

Счетчики Гейгера-Мюллера характеризуются тем, что в некотором интервале подаваемого на электроды напряжения амплитуда выходного сигнала не зависит от энергии ядерной частицы. Рабочее напряжение, от правильного выбора которого во многом зависит стабильность работы счетчика, должно соответствовать середине этого интервала. В регистрирующих приборах, которые, как правило, снабжены детекторами определенного типа, требуемое (указанное в паспорте) постоянное напряжение поддерживается автоматически.

Рабочее напряжение обеспечивает появление так называемого «прерываемого коронного разряда». Электроны и ионы, образовавшиеся как при прохождении ядерной частицы (фотона) через рабочий объем детектора, так и на следующих стадиях развития разряда, ускоряются электрическим полем и приобретают энергию, достаточную для ионизации и возбуждения большого числа атомов. В результате в пространстве вблизи анода образуются лавины заряженных частиц. Фотоионизация молекул галогена и материала катода электромагнитным излучением возбужденных атомов аргона способствует мгновенному распространению разряда вдоль всей длины анода. В рабочем объеме детектора образуется до 10⁹ пар ионов, причем их число не зависит от первичной ионизации.

Электроны быстро (менее, чем за 10^{-6} с) собираются на аноде, что вызывает импульс напряжения на сопротивлении R и позволяет зарегистрировать частицу. При этом вокруг анода остается «чехол» малоподвижных положительных ионов и напряженность поля уменьшается настолько, что разряд прерывается, а следующая ядерная частица не может вызвать новых лавин. Счетчик будет готов регистрировать новую частицу тогда, когда пространственный положительный заряд переместится к катоду и разность потенциалов между электродами достигнет порогового значения, при котором возможен коронный разряд. Время восстановления «работоспособности» детектора определяется в основном скоростью дрейфа положительных ионов и составляет примерно 10^{-4} с, что соответствует минимальному интервалу времени между двумя последовательными частицами, которые могут быть зарегистрированы раздельно (разрешающее время детектора т).

Необходимо отметить, что в счетчике, заполненным только аргоном, после восстановления напряжения на электродах коронный разряд развивается уже без участия ядерной частицы. Нейтрализация положительных ионов аргона на катоде и (или) фотоионизация материала стенок приводит к появлению свободных электронов, которые порождают новые ионные лавины и, соответственно, ложный импульс. Через $\sim 10^{-4}$ с цикл повторяется. В результате возбуждается прерывистый коронный разряд и детектор становится нечувствителен к ядерным излучениям. Для устранения ложных разрядов в рабочий объем вводят вещества, молекулы которых имеют существенно более низкий потенциал ионизации, чем атомы аргона. При столкновениях ионы аргона передают заряд и энергию возбуждения молекулам примеси. Дезактивация этих возбужденных молекул происходит, в основном, безизлучательно и сопровождается их диссоциацией. Таким образом, гасящие добавки резко уменьшают вероятность появления ложных импульсов и полностью исключают возможность возникновения «неуправляемого» коронного разряда.

Развитие прерываемого коронного разряда предопределяет большую амплитуду выходного импульса и, соответственно, высокую чувствительность счетчика: частица, создавшая хотя бы одну пару ионов, будет зарегистрирована. Это делает счетчики особенно удобными для регистрации β–частиц, имеющих непрерывный спектр энергий. Вместе с тем независимость амплитуды импульса от энергии ионизирующей частицы не позволяет использовать счетчики Гейгера-Мюллера в спектрометрических исследованиях.

Важными характеристиками счетчиков являются фон и разрешающее время.

Фон (скорость счета фона) – число импульсов, зарегистрированных прибором в единицу времени, в отсутствие исследуемых радиоактивных препаратов. Фон детектора обусловлен как внешним излучением (космические лучи, естественная радиоактивность конструкционных материалов, лабораторные источники излучения, радиоактивные загрязнения деталей радиометрической установки и т.п.), так и самопроизвольными разрядами в счетчике (ложные импульсы). Поскольку устранить все причины появления фона нельзя, измеряемая скорость счета препарата всегда содержит фоновую составляющую. Фон оказывает влияние на точность определения скорости счета радиоактивного вещества и тем большее, чем ниже активность препарата (см. уравнение (1.32)). Очевидно, что фон надо свести к минимуму. В частности, чтобы уменьшить влияния внешнего излучения счетчик обычно помещают в защитный "домик" из свинца.

Фон, среднее значение которого указано в техническом паспорте каждого детектора, зависит от типа детектора, его конструкции, а также условий и срока эксплуатации. Например, у счетчиков типа СТС фон не должен быть выше 110 имп/мин. Превышение этого уровня, при условии правильно установленного рабочего напряжения и отсутствия радиоактивных загрязнений в защитном домике, указывает на выход счетчика из строя.

Разрешающее время (т) детектора или установки в целом – это минимальный интервал времени между двумя последовательными импульсами (частицами), которые регистрируются раздельно. В течение времени τ установка не может фиксировать появление других частиц в рабочем объеме детектора. Потери при регистрации в общем случае определяются той частью установки, у которой разрешающее время максимально. Разрешающее время самогасящихся счетчиков Гейгера-Мюллера составляет приблизительно 10^{-4} с, сцинтилляционных детекторов - $10^{-8} \div 10^{-6}$ с, полупроводниковых – $10^{-8} \div 10^{-7}$ с. Электронные схемы блоков регистрации конструируются в каждом случае, как правило, так, чтобы их разрешающее время было меньше указанных значений τ . Поэтому соответствующие потери определяются детекторами.

Пусть в рабочий объем детектора проникает I_m частиц в секунду, каждая из которых ионизирует рабочее вещество. При этом установка фиксирует I_c импульсов (частиц). Тогда доля незарегистрированных частиц, в первом приближении, составит $\tau \cdot I_c$, а их среднее число будет равняться $I_m \cdot \tau \cdot I_c$. Число незарегистрированных частиц равно:

$$I_m \cdot \tau \cdot I_c = I_m - I_c \tag{1.1}$$

Согласно (1.1), разрешающее время можно рассчитать по уравнению:

$$\tau = \frac{I_m - I_c}{I_m \cdot I_c} \tag{1.2}$$

Разрешающее время можно определить, например, по изменению скорости счета серии препаратов с известной абсолютной активностью (A_i) каждого из них (см. раздел 1.3). Следует отметить, что значение τ , вычисленное согласно (1.2), будет близко к реальному при условии ($I_m - I_c$) $\leq 0,1 \cdot I_m$. В других случаях это уравнение можно использовать лишь для приблизительной оценки разрешающего времени.

Разрешающее время ограничивает максимальную скорость счета, которую может измерить данный детектор с желаемой точностью: чем больше τ , тем меньше достоверно фиксируемая скорость счета. Если доля нерегистрируемых частиц ($\tau \cdot I_c$) превышает 1÷3%, в результат измерения вводят поправку на разрешающее время (уравнение 1.3). Для счетчиков Гейгера-Мюллера, например, этому условию соответствует I_c

= 50÷150 имп/с. Сцинтилляционные детекторы позволяют регистрировать в сотни раз большую скорость счета.

Величину истинной скорости счета препарата I, которую также называют регистрируемой активностью, получают после вычитания скорости счета фона I_{ϕ} из исправленной на разрешающее время скорости счета I_m , рассчитанной по (1.1).

$$I = I_m - I_{\phi} = \frac{I_c}{1 - \tau \cdot I_c} - I_{\phi}$$
(1.3),

где *I_c* – измеренная суммарная скорость счета препарата вместе с фоном

1.2. Обработка результатов измерения радиоактивности

Обработка результатов любых измерений сводится не только к расчетам, но и учету систематических погрешностей, оценке случайных погрешностей и устранению возможных грубых ошибок.

Систематические погрешности имеют одинаковые значения при выполнении измерений одним и тем же методом с помощью одного и того же прибора. Они отклоняют результаты всех измерений в одну сторону, завышая или занижая истинное значение измеряемой величины. Эти погрешности можно выявить до начала измерений, свести к минимуму или, по крайней мере, оценить.

К систематическим относятся, например, погрешности, связанные с ослаблением излучения в воздухе и стенке детектора, его самоослаблением, обратным рассеянием и вероятностью регистрации частиц (фотонов) детектором. Соответствующие поправочные коэффициенты k, S, q и ε определяются, как правило, с помощью эмпирических формул и графиков, которые не всегда строго отвечают условиям конкретного измерения. Для многих нуклидов с разветвленной схемой распада погрешность определения ряда коэффициентов p также весьма значительна. Значения коэффициентов, используемые при расчетах, могут отличаться от истинных на 10-15%. Для уточнения каждой поправки конкретного измерения обычно требуется выполнить дополнительное, достаточно трудоемкое исследование. Поэтому в большинстве случаев довольствуются приблизительными значениями поправочных коэффициентов, допуская, что относительная погрешность их определения составляет ~15%.

Случайные погрешности обусловлены рядом причин, действие которых неодинаково в каждом эксперименте и не может быть учтено заранее. Результаты измерений, проведенных в одинаковых условиях, случайно отклоняются в положительную и отрицательную сторону от истинного значения измеряемой величины. Случайные погрешности определяются, например, классом точности и стабильностью работы приборов, а при радиометрических измерениях – также и вероятностным характером процесса распада ядер. С этим процессом связана минимальная, при данных условиях измерения, погрешность определения числа регистрируемых импульсов.

Генеральная и выборочная совокупность случайных величин. Дисперсия и стандартное отклонение

Каждый экспериментальный результат *x*_i, в частности, результат измерения числа импульсов представляет собой случайную величину. Абсолютно точное значение измеряемой величины (его называют *генеральным средним* и обозначают µ) может

быть получено лишь при бесконечно большом числе экспериментов. Пусть $P(x_i)$ – вероятность появления значения x_i случайной величины x, тогда

$$\mu(x) = \mu = \sum_{i=-\infty}^{\infty} x_i P(x_i)$$
(1.4)

Гипотетическую совокупность всех мыслимых результатов (от - ∞ до + ∞) называют *генеральной совокупностью*. Параметрами генеральной совокупности являются генеральное среднее μ и *генеральная дисперсия* σ^2 , которая служит мерой рассеяния случайной величины *х* относительно своего генерального среднего:

$$\sigma^{2} = \sum_{i=-\infty}^{\infty} (x_{i} - \mu)^{2} P(x_{i})$$
(1.5)

Положительное значение корня квадратного из генеральной дисперсии называется абсолютным стандартным отклонением или абсолютным средним квадратическим отклонением и также характеризует рассеяние случайной величины относительно µ:

$$\sigma = \sqrt{\sigma^2} \tag{1.6}$$

Считается, что результаты измерений подчиняются нормальному закону распределения (распределению Гаусса). Вероятность того, что случайная величина окажется в пределах бесконечно малого интервала между x и (x+dx), определяется как $\varphi(x) dx$, где функция $\varphi(x)$ – плотность вероятности нормального распределения

$$\phi(x) = \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} exp\left[-\frac{(x-\mu)^2}{2\sigma^2}\right] , \qquad -\infty < x < \infty \qquad (1.7)$$

Кривую нормального распределения характеризуют генеральные параметры μ и σ².

На практике проводится ограниченное число экспериментов (измерений). Совокупность п реальных результатов, полученных при данных условиях эксперимента, рассматривают как случайную выборку из гипотетической генеральной совокупности, т.е. как выборочную совокупность. Измерения, результаты которых составляют выборочную совокупность, обычно называют параллельными. Для выборки из п результатов рассчитывают выборочное среднее (среднее арифметическое)

$$\overline{x} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^{n} x_i \tag{1.8}$$

Рассеяние результатов измерения x_i относительно среднего характеризуют выборочная дисперсия s^2 и(или) выборочное среднее квадратическое отклонение s

$$s^{2} = \frac{1}{n-1} \sum_{i=1}^{n} (\overline{x} - x_{i})^{2} \qquad \text{M} \qquad s = \sqrt{s^{2}}$$
(1.9)

Величину s называют также выборочным *стандартным отклонением*. Для серии из *n* измерений скорости счета *I* стандартное отклонение, согласно (1.9), равно:

$$s_{I} = \sqrt{\frac{1}{n-1} \sum_{i=1}^{n} (I_{i} - \overline{I})^{2}}$$
(1.10)

Знаменатель в (1.9) и (1.10) представляет собой число степеней свободы f, т.е. число независимых измерений минус число связей между ними (минус число определяемых параметров). В этих уравнениях f = (n-1), так как на п независимых результатов при расчете выборочного среднего накладывается только одна связь вида (1.8).

Следует отметить, что дисперсия и квадратическое (стандартное) отклонение характеризуют воспроизводимость результатов измерений.

Статистический характер радиоактивного распада. Распределение Пуассона

Радиоактивный распад ядра – процесс, которому присущ вероятностный характер. Пусть время наблюдения t над достаточно большим числом ядер существенно меньше периода их полураспада. Тогда число распавшихся в единицу времени ядер и, при условии стабильной работы приборов, число зарегистрированных импульсов N будут подчиняться распределению Пуассона. Вероятность P(N) того, что за данный промежуток времени будет зарегистрировано N импульсов, если их среднее число равно \overline{N} , определяется выражением:

$$P(N) = \frac{\overline{N}^{N}}{N!} exp(-\overline{N})$$
(1.11)

Практически уже при $\overline{N} \ge 10$ распределение Пуассона аппроксимируется нормальным распределением^(*), оба параметра которого равны \overline{N} .

Таким образом, дисперсия пуассоновского распределения числа импульсов равна

$$\sigma_{n(N)}^2 = \overline{N} \tag{1.12}$$

Соответствующее абсолютное среднее квадратическое отклонение $\sigma_{n(N)}$ называют также *абсолютной квадратической флуктуацией*, чтобы подчеркнуть, что это отклонение обусловлено статистикой (флуктуацией) радиоактивного распада.

Распределение Пуассона позволяет определить абсолютную квадратическую флуктуацию отдельного измерения числа импульсов N_i , зарегистрированных за время t, или скорости счета I_i :

Доверительный интервал и доверительная погрешность среднего

При обработке результатов эксперимента исследователю важно ответить на вопрос, насколько близки полученные данные к истинному значению измеряемой величины. Среднее арифметическое \bar{x} и выборочная дисперсия s^2 являются лишь *точечными оценками* генеральных параметров

$$\mathfrak{u} \cong \overline{x} \qquad \mathfrak{u} \qquad \sigma^2 \cong s^2 \tag{1.14}$$

В пределе, при $n \to \infty$, среднее \overline{x} стремится к генеральному среднему, а выборочная дисперсия - к дисперсии генеральной совокупности σ^2 .

Однако приближенные равенства (1.14) не дают представления о надежности и точности оценки. Например, для скорости счета *I*, в отсутствие иных источников рассеяния, кроме статистического характера распада можно записать: $s_I \cong \sigma_{n(I)}$ (1.15). При этом значение s_I в некоторых экспериментах может *случайно* оказаться меньше $\sigma_{n(I)}$, хотя именно величина $\sigma_{n(I)}$ характеризует минимально возможное, при заданных условиях измерения, среднее квадратическое отклонение скорости счета. Поэтому при обработке результатов рассчитываются границы *доверительного интервала*, внутри которого с заранее заданной *доверительной вероятностью* γ может находиться истинное значение параметра. Одновременно устанавливается *уровень значимости*

^{*} Распределение Пуассона, в отличие от нормального, дискретно: *N* - целое положительное число.

p – вероятность появления отклонений, лежащих вне доверительных границ: $p=1-\gamma$. Ширина этого интервала определяет точность результата измерений, а доверительная вероятность характеризует надежность оценки. Доверительные интервалы обычно вычисляют для 95%-ной вероятности ($\gamma=0.95$; p=0.05).

Доверительный интервал нужен как для корректного представления экспериментальных данных, так и для построения графиков, особенно при отсутствии теоретического описания данных. Экспериментальную кривую можно проводить в любых местах доверительных интервалов.

При построении доверительных интервалов для небольшой выборки используют распределение Стьюдента или *t*-распределение, которое имеет нормированная случайная величина

$$t = \frac{\overline{x} - \mu}{s_{\overline{x}}} = \frac{\overline{x} - \mu}{s / \sqrt{n}}$$
(1.16) B

формуле (1.16) $s_{\bar{x}}$ – выборочное квадратическое отклонение среднего, которое в \sqrt{n} раз меньше квадратического отклонения отдельного измерения s:

$$s_{\bar{x}} = \sqrt{s_{\bar{x}}^2} = \frac{s}{\sqrt{n}} = \sqrt{\frac{1}{n(n-1)} \sum_{i=1}^n (\bar{x} - x_i)^2}$$
(1.17),

где $s_{\bar{x}}^2$ - выборочная дисперсия среднего арифметического.

Значения *t* для задаваемой вероятности γ и числа степеней свободы *f*, связанного с выборочной дисперсией среднего арифметического s_x^2 , приведены в табл. П.2. Используя значения $t_{\gamma,f}$, можно определить доверительный интервал для генерального среднего µ при вероятности γ :

$$\overline{x} - t_{\gamma,f} \frac{s}{\sqrt{n}} < \mu < \overline{x} + t_{\gamma,f} \frac{s}{\sqrt{n}}$$
(1.18),

где s- выборочное квадратическое отклонение измеряемой величины, рассчитанное для совокупности из *n* результатов; (*n*-1)=*f*.

Соотношение (1.18) используют для интервальной оценки μ в тех случаях, когда значение генеральной дисперсии σ^2 не известно. Доверительной погрешностью или погрешностью среднего при доверительной вероятности γ называется величина:

$$\Delta_{\gamma,t} = \pm t_{\gamma,f} \cdot \frac{s}{\sqrt{n}} \tag{1.19}$$

Среднее \bar{x} из n случайных величин само по себе является случайной величиной и распределение \bar{x} , в общем случае, может подчиняться различным законам. Показано, что значения \bar{x} для нескольких выборочных совокупностей, которые содержат n результатов, являющихся составными частями одной нормальной совокупности с параметрами μ и σ^2 , также подчиняется нормальному распределению с тем же значением генерального среднего μ и генеральной дисперсией $\sigma_{\bar{x}}^2$, равной

$$\sigma_{\bar{x}}^2 = \sigma^2 / n \tag{1.20}$$

Введем вместо случайной величины \overline{x} нормированную случайную величину z, которая распределена по нормальному закону с параметрами $\mu=0$ и $\sigma_z^2 = 1$:

$$z = \frac{\overline{x} - \mu}{\sigma_{\overline{x}}} = \frac{\overline{x} - \mu}{\sigma / \sqrt{n}}$$
(1.21)

В этом случае вероятность γ того, что случайная величина *z* попадет в интервал с доверительными границами (- u_{γ} , + u_{γ}) определяется выражением

$$P(-u_{\gamma} < \frac{\overline{x} - \mu}{\sigma / \sqrt{n}} < +u_{\gamma}) = \gamma$$
(1.22)

Значения u_{γ} для вероятности γ приведены в табл. 1.2.1. Отметим, что *t*-распределение при $n \rightarrow \infty$ превращается в нормальное, а значения t_{∞} в табл. П.2 равны значениям u_{γ} .

								Та	блица 1.2	2.1
$u_{\gamma} = t_{\infty}$	1	1,281	1,5	1,645	1,960	2	2,576	3	3,291	
γ	0,683	0,8	0,866	0,9	0,95	0,955	0,99	0,997	0,999	

Соотношение (1.22) позволяет определить границы доверительного интервала для генерального среднего при вероятности γ , если известно значение генеральной дисперсии σ^2 :

$$\overline{x} - u_{\gamma} \frac{\sigma}{\sqrt{n}} < \mu < \overline{x} + u_{\gamma} \frac{\sigma}{\sqrt{n}}$$
(1.23)

Доверительная погрешность в данном случае определяется как:

$$\Delta_{\gamma,u} = \pm u_{\gamma} \frac{\sigma}{\sqrt{n}} \tag{1.24}$$

Таким образом, результат измерений среднего следует записывать, указывая при этом вероятность γ, в виде:

$$\overline{x} \pm \Delta_{\gamma,t}$$
 или $\overline{x} \pm \Delta_{\gamma,u}$ (1.25)

Относительная доверительная погрешность (δ_γ) среднего арифметического равна:

$$\delta_{\gamma} = \frac{\Delta_{\gamma}}{\overline{x}} \tag{1.26}$$

Статистический критерий пуассоновского характера распределения числа зарегистрированных импульсов

Рассеяние результатов измерения радиоактивности, в общем случае, может быть обусловлено не только статистическим характером распада и колебаний фона, но и другими случайными факторами (аппаратурные помехи, погрешности процедуры измерений и т.п.). Поэтому по завершению серии опытов проверяют соответствие распределения результатов измерения числа импульсов (скорости счета) закону Пуассона. Для оценки степени близости наблюдаемого распределения к пуассоновскому (теоретическому) распределению рассчитывают χ^2 -критерий:

$$\chi_p^2 = (n-1)\frac{s_N^2}{\sigma_{n(N)}^2} = \frac{\sum_{i=1}^n (N_i - \overline{N})^2}{\overline{N}} \quad \text{ИЛИ} \qquad \chi_p^2 = (n-1)\frac{s_I^2}{\sigma_{n(I)}^2} = \frac{\sum_{i=1}^n (I_i - \overline{I})^2}{\overline{I}/t}$$
(1.27)

Выборочная дисперсия s^2 учитывает все источники случайных погрешностей при регистрации импульсов, а дисперсия σ^2 – только статистику радиоактивного распада.

Различие между наблюдаемым и теоретическим распределениями считается несущественным, если экспериментальная величина $\chi^2_{_{3ксп.}}$ не превышает табличного значения $\chi^2_{0,05}$ для заданного уровня значимости (p=0,05) и данного числа степеней свободы f (табл. П.3). В этом случае для оценки генерального среднего используют доверительный интервал вида (1.23). Например, доверительную погрешность среднего (\overline{N}) из *n* измерений числа импульсов (N_i) , обусловленную статистическим характером распада и(или) колебаний фона, рассчитывают на основании (1.24):

$$\Delta_{\gamma(\bar{N})} = \pm u_{\gamma} \frac{\sigma_{n(N)}}{\sqrt{n}} = \pm u_{\gamma} \frac{\sqrt{\bar{N}}}{\sqrt{n}}$$
(1.28)

В этом случае, т.е. в отсутствие аппаратурных помех, доверительную погрешность отдельного измерения N_i можно определить как:

$$\Delta_{\gamma(N_i)} \cong \Delta_{\gamma(N)} = \pm u_{\gamma} \sigma_{n(N)} \cong \pm 1,96\sqrt{N_i}$$
(1.29),

где для доверительной вероятности $\gamma=0,95$ постоянная $u_{\gamma}=1,96$ (табл. 1.2.1).

Если $\chi^2_{_{3KCII}} > \chi^2_{0,05}$, то расхождение между указанными распределениями признается значимым. В этом случае генеральное среднее оценивают на основании величины *s*, вычисленной по (1.10), и доверительную погрешность среднего (\bar{I} или \bar{N}) находят в соответствии с (1.19).

С помощью χ^2 – критерия можно также проверить стабильность (надежность) работы регистрирующего прибора (см. раздел 1.3).

Погрешность косвенного измерения. Закон накопления погрешностей

В экспериментальной практике подлежащая определению величина *Y* во многих случаях не измеряется непосредственно, а рассчитывается по результатам прямого измерения нескольких параметров, от которых она зависит. Погрешность такого косвенного «измерения» можно вычислить с помощью закона накопления погрешностей. Если определяемая величина $Y=\phi(x_1,x_2,x_3,...,x_k)$ представляет собой функцию «*k*» переменных и известны выборочные дисперсии результатов непосредственных измерений $s_{x_1}^2, s_{x_2}^2, s_{x_3}^2, ..., s_{x_k}^2$, то дисперсия *Y* равна:

$$s_Y^2 = \left(\frac{\partial Y}{\partial x_1}\right)^2 s_{x_1}^2 + \left(\frac{\partial Y}{\partial x_2}\right)^2 s_{x_2}^2 + \left(\frac{\partial Y}{\partial x_3}\right)^2 s_{x_3}^2 + \dots + \left(\frac{\partial Y}{\partial x_k}\right)^2 s_{x_k}^2$$
(1.30)

В это соотношение вместо выборочных дисперсий можно подставить генеральные дисперсии $\sigma_{x_i}^2$ или квадраты доверительных погрешностей $\Delta_{\gamma(x_i)}^2$ (см. (1.19, 1.24)). Применение (1.30) для двух важных частных случаев дает следующие результаты:

Функция	Доверительная погрешность
$Y = \frac{x_1 \cdot x_2}{x_3}$	$\delta_{Y}^{2} = \delta_{x_{1}}^{2} + \delta_{x_{2}}^{2} + \delta_{x_{3}}^{2}$
$Y = x_1 + x_2 - x_3$	$\Delta_Y^2 = \Delta_{x_1}^2 + \Delta_{x_2}^2 + \Delta_{x_3}^2$

Примером косвенных «измерений» является определение скорости счета препарата ($I_{np}=I_c-I_{\phi}$), которая рассчитывается по результатам измерений двух величин: суммарной скорости счета препарата вместе с фоном (I_c) и скорости счета фона (I_{ϕ}). В соответствии с (1.30) доверительная погрешность определения I_{np} равна:

$$\Delta_{\gamma(I_c - I_{\phi})} = \pm \sqrt{\Delta_{\gamma(I_c)}^2 + \Delta_{\gamma(I_{\phi})}^2}$$
(1.31)

Погрешности отдельного (единственного) измерения I_c и I_{ϕ} можно вычислить, предполагая отсутствие иных источников рассеяния результатов, кроме статистического характера распада и колебания фона, по уравнениям (1.29) и (1.13). В этом случае относительная погрешность скорости счета I_{np} для доверительной вероятности γ определяется уравнением вида:

$$\delta_{\gamma(I_{np})} = \delta_{\gamma(I_c - I_{\phi})} = \frac{\Delta_{\gamma(I_c - I_{\phi})}}{I_c - I_{\phi}} = u_{\gamma} \cdot \frac{1}{I_c - I_{\phi}} \cdot \sqrt{\frac{I_c}{t_c} + \frac{I_{\phi}}{t_{\phi}}}$$
(1.32)

Если проводится n_c параллельных измерений одного препарата и n_{ϕ} измерений фона, то доверительные погрешности для средних значений \bar{I}_c и \bar{I}_{ϕ} рассчитывают, в зависимости от значения χ^2 – критерия, согласно (1.19) или (1.24). В этом случае

$$\Delta_{\gamma(\bar{I}_{c}-\bar{I}_{\phi})} = \pm \sqrt{t_{\gamma,f_{c}}^{2} \frac{s_{I_{c}}^{2}}{n_{c}} + t_{\gamma,f_{\phi}}^{2} \frac{s_{I_{\phi}}^{2}}{n_{\phi}}} \quad \text{или} \quad \Delta_{\gamma(\bar{I}_{c}-\bar{I}_{\phi})} = \pm u_{\gamma} \cdot \sqrt{\frac{\bar{I}_{c}}{n_{c}t_{c}} + \frac{\bar{I}_{\phi}}{n_{\phi}t_{\phi}}}$$
(1.33)

Регистрация радиоактивности имеет свои особенности. Одной из них является выбор оптимального соотношения между временем измерения скорости счета препарата с фоном t_c и временем измерения фона t_{ϕ} , которое, при фиксированной общей продолжительности измерения t, обеспечивает минимальное значение погрешности определения I_{np} .

Комбинируя (1.30) и (1.13), можно получить выражение для абсолютной квадратической флуктуации скорости счета препарата за вычетом фона:

$$\sigma_{n(I_c - I_{\phi})} = \sqrt{\sigma_{n(I_c)}^2 + \sigma_{n(I_{\phi})}^2} = \sqrt{\frac{I_c}{t_c} + \frac{I_{\phi}}{t_{\phi}}}$$
(1.34)

После дифференцирования уравнения (1.34), используя условия минимума погрешности $d\sigma_{n(I)}=0$ и постоянства t ($t=t_c+t_{\phi}=$ const), можно найти искомое соотношение:

$$\frac{t_c}{t_{\phi}} = \sqrt{\frac{I_c}{I_{\phi}}} \tag{1.35}$$

Соотношения (1.35) и (1.32), позволяют рассчитать время отдельного измерения препарата с фоном ($t_{c,min}$) и фона ($t_{\phi,min}$), необходимое для того, чтобы погрешность скорости счета препарата I_{np} не превышала заданной величины $\delta_{\gamma(I_{nn})}$.

Если предполагается провести *n* параллельных измерений одного препарата или фона, то время каждого из этих измерений, соответствующее заданному значению $\delta_{\gamma(\bar{L}_n)}$,

должно быть в n раз меньше, чем рассчитанное по (1.36).

Фон счетчиков Гейгера-Мюллера равен нескольким десяткам имп/мин и обычно во много раз меньше скорости счета препарата с фоном. Поэтому в большинстве случаев, согласно (1.32), погрешность $\delta_{\gamma(Inp)}$ будет меньше 10% даже при одном измерении I_c и I_{ϕ} продолжительностью по 1÷2 мин. Оптимизация измерений необходима, если основной целью эксперимента является прямое определение I_{np} , а скорость счета I_c сопоставима со скоростью счета фона. Заметного снижения погрешности прямых радиометрических измерений следует добиваться также в тех случаях, когда эти погрешности вносят существенный вклад в погрешность результата косвенного определения величины Y (см. (1.30)). Напротив, если предварительный расчет показал, что погрешность непосредственного измерения I окажется заведомо меньше известной (или задаваемой) погрешности одного из параметров Y, можно ограничиться проведением нескольких измерений скорости счета препарата продолжительностью по 1 мин (см. работу 2).

1.3. Установка со счетчиком Гейгера-Мюллера

Цель работы

Приобрести навыки измерения скорости счета препаратов с помощью радиометрической установки;

проверить стабильность работы регистрирующей аппаратуры;

определить разрешающее время установки.

Оборудование и препараты

Радиометрическая установка со счетчиком Гейгера-Мюллера типа СТС.

Набор препаратов ⁹⁰Sr(⁹⁰Y) с известной абсолютной активностью и регистрируемой скоростью счета от 5 до 500 имп/с.

Выполнение работы

1. Измерение фона

Определение скорости счета фона проводят в тех же условиях, что и измерения радиоактивности препарата, т.е. при закрытой крышке защитного домика. Проводят 3 измерения продолжительностью t = 50 с (или 1 мин), в табл. 1.3.1 вписывают число фоновых импульсов (N_{ϕ}) и скорость счета ($I_{\phi}=N_{\phi}/t$). Полагая, что рассеяние числа отсчетов связано только со статистическим характером колебания фона, вычисляют доверительные интервалы для значений $I_{\phi,i}$, соответствующие 95%-ной доверительной вероятности ($\Delta_{0.95} = \pm 1.96\sigma_{\Pi} \cong 2(I_{\phi,i}/t)^{\frac{1}{2}}$).

Среднее арифметическое значение скорости счета фона \bar{I}_{ϕ} сравнивают с паспортными данными. Если значение \bar{I}_{ϕ} выше110 имп/мин, а рабочее напряжение установлено правильно и внутренние поверхности домика не содержат радиоактивных загрязнений, счетчик следует заменить.

Таблица1.3.1

N⁰	N_{ϕ} , имп	I_{ϕ} , имп/мин	$\Delta_{0,95}$	$ar{I}_{\phi}$, имп/мин
1				
2				
3				

2. Проверка стабильности работы аппаратуры

Статистический характер радиоактивного распада дает возможность проверить стабильность (надежность) работы регистрирующего прибора. С этой целью в строго одинаковых условиях проводят 10 последовательных измерений N_i продолжительностью t = 50 с (или 1 мин) для препарата со скоростью^(*) счета 1000÷3000 имп/мин. Используя уравнения (1.19), (1.12) и (1.27), вычисляют выборочную дисперсию, дисперсию распределения Пуассона и значение χ^2 - критерия.

Таблица 1.3.2

N⁰	Результаты измерений (<i>N_i</i> , имп)	Результаты расчетов
1		
2		\overline{N} ; $\sigma_{n(N)}^2$; s_N^2 ; $\chi_{3\kappa cn}^2$
10		

^{*} В этом случае $I_c >> I_{\phi}$, а поправка на разрешающее время пренебрежимо мала.

Рассчитанное значение $\chi^2_{_{3KC\Pi}}$ сравнивают со значением $\chi^2_{_{0,05}}$ для уровня значимости p = 0,05 и числа степеней свободы f=9 ($\chi^2_{_{0,05}}=16,9$; табл. П.3). Считают, что аппаратурные помехи, которые должны нарушить пуассоновский характер распределения числа регистрируемых импульсов, отсутствуют, если значение $\chi^2_{_{3KC\Pi}} \le 16,9$. В противном случае расхождение между наблюдаемым распределениям и распределением Пуассона признается значимым, что свидетельствует о наличии случайных погрешностей, связанных с нестабильностью работы прибора.

3. Определение разрешающего времени

Для определения разрешающего времени измеряют скорость счета $I_{c,i}$ шести стандартных препаратов с известной абсолютной активностью A_i . Чтобы уменьшить погрешность, связанную с неточной фиксацией препаратов в кассете, проводят по 4 измерения, каждый раз поворачивая препарат вокруг оси на случайный угол. Усредняют полученные результаты.

Таблица 1.3.3

N⁰	А, Бк	<i>N</i> , имп	<i>I</i> , имп/с	$ar{I}_{c,i}$, имп/с	$\overline{I}_{c,i} \pm \Delta_{\gamma,t}$
1					
6					

Доверительный интервал среднего каждой серии измерений ($\bar{I}_{c,i}$) рассчитывают по формуле (1.19). Значение $t_{\gamma,f}$ для вероятности $\gamma=0,95$ и числа степеней свободы f=3 приведены в табл. П.2.

Строят график зависимости скорости счета $I_{c,i}$ препаратов от их абсолютной активности A_i , используя вычисленные доверительные интервалы. При малых значениях I_c , когда произведение $\tau \cdot I_c$ ничтожно мало, скорость счета пропорциональна A. В дальнейшем наблюдается отклонение от линейности. На экстраполированной части прямой линии над точкой I_c находят соответствующее ей значение I_m и по формуле (1.2) рассчитывают значение τ . Определяют максимально возможную скорость счета, которая не требует введения поправки на τ ($\tau \cdot I_{c,max} \le 0,02$).

РАБОТА 2. ОПРЕДЕЛЕНИЕ АБСОЛЮТНОЙ АКТИВНОСТИ МЕТОДОМ ФИКСИРОВАННОГО ТЕЛЕСНОГО УГЛА

2.1. Влияние свойств радионуклида и условий измерений на величину регистрируемой активности

Одной из задач, решаемых с использованием детекторов, является измерение числа частиц определенного типа, испускаемых радиоактивным препаратом, и/или его абсолютной активности, т.е. числа ядер, распадающихся в препарате в единицу времени. Однако измерительные приборы фиксируют, как правило, только часть излучения, сопровождающего ядерные превращения. Доля частиц (фотонов), не зарегистрированных приборами, зависит от расположения препарата относительно детектора, поглощения излучения стенками детектора, вероятности взаимодействия излучения с рабочим веществом и других факторов. Кроме того, некоторые частицы, проникшие в чувствительный объем детектора, могут быть не зарегистрированы из-за наличия разрешающего времени. Вместе с тем любой детектор помимо импульсов от частиц, испускаемых исследуемым препаратом, фиксирует и посторонние импульсы – фон. Поэтому переход от числа импульсов I_c , регистрируемых прибором в единицу времени, к абсолютной активности A требует учета ряда поправок.

Прежде всего, в измеренную скорость счета I_c вводят поправки на разрешающее время т (если необходимо) и фон (см. уравнение (1.3)).

Регистрируемая активность *I* связана с абсолютной активностью *A* измеряемого образца, содержащего нуклид с простой схемой распада, соотношением

$$Y = \varphi A = [\eta (p \in k S q)] A$$
(2.1),

где φ - коэффициент регистрации; η , *p*, ε , *k*, *S* и *q* – рассматриваемые ниже поправочные коэффициенты; *I* и *A* выражены соответственно числом импульсов и актов распада, отнесенных к одной и той же единице времени.

Если измеряют активность изотопа со сложной схемой распада или равновесной смеси изотопов, то произведение ($p \in k S q$) вычисляют для каждой *i*—той компоненты излучения и результаты суммируют. В этом случае (2.1) приобретает вид:

$$I = A\eta \sum_{i} p_i \varepsilon_i k_i S_i q_i \tag{2.2}$$

Эффективностью детектора (ϵ) к данному виду излучения называется вероятность того, что частица (квант), передав часть своей энергии атомам рабочего вещества детектора, вызовет в нем процессы, позволяющие зарегистрировать эту частицу или квант. Коэффициент эффективности ϵ - отношение числа частиц (квантов) I_{ϵ} , вызвавших такие процессы, к общему числу частиц (квантов) I_d , проникших в рабочий объем детектора за время регистрации ($\epsilon = I_{\epsilon}/I_d$). Следует отметить, что в общем случае из–за наличия разрешающего времени число зарегистрированных импульсов $I_c \leq I_{\epsilon}$.

Эффективность детектора ε определяется вероятностью взаимодействия частиц (фотонов) с атомами рабочего вещества, которая зависит не только от вида и энергии ядерного излучения, но и от количества вещества в рабочем объеме детектора. Для α -излучения, обладающего очень высокой ионизирующей способностью, ε =1. Эффективность счетчиков Гейгера-Мюллера к β -излучению близка к 100%, так как практически каждая β -частица создает хотя бы одну пару ионов даже в небольшом газовом объеме детектора.

Эффективность этих счетчиков к γ -излучению зависит от его энергии, материала и толщины катода, так как вероятность взаимодействия фотонов с атомами газа ничтожно мала. Коронный разряд в счетчике инициируют вторичные электроны, которые «выбиваются» фотонами из поверхностных слоев материала катода. Однако даже при оптимальной толщине катода эффективность не превышает 2%, а для γ -квантов с энергий $E_{\gamma} \leq 1$ МэВ коэффициент ε равен 0,2 \div 0,6%.

Для регистрации ү–излучения используют, как правило, сцинтилляционные или полупроводниковые детекторы. Эффективность этих детекторов, в зависимости от энергии фотонов, состава и размеров сцинтиллятора (или полупроводникового кристалла) составляет от 20% до 100%. Эффективность регистрации заряженных частиц такими детекторами обычно близка к 100%.

Коэффициент ослабления k учитывает потери излучения на пути от источника до рабочего вещества детектора. Он равен отношению числа частиц I_d , проникших в чувствительный объем детектора через слой воздуха толщиной d_1 и стенку (окно)



Рис. 2.1. Зависимость коэффициента ослабления *k* для β-частиц от отношения *d/R_{max}*.

счетчика толщиной d_2 , к числу частиц I_{qS} , испускаемых в направлении детектора с поверхности препарата ($k = I_d / I_{aS}$).

Проникающая способность В-излучения харакмаксимальтеризуется ным пробегом R_{max} – минимальной толщиной поглотителя, который задерживает все *β*-частицы начальной энергией Е_{в,тах} (табл. П.4). Следовательно, регистрация βчастиц счетчиками Гейгера-Мюллера возможна при условии *d*₂<*R*_{max}. В частности, для измерения низкоэнергетического излучения ($E_{\beta,max} < 0,2 \text{ МэВ}$) обычно используют детекторы с окном толщиной $3 \div 5$ мг/см².

Ослабление потока β -частиц сравнительно тонкими поглотителями (d $\leq 0,3~R_{max}$) описывается, в первом приближении, эмпирической экспоненциальной зависимостью. В этом случае, с погрешностью ~ 15%, коэффициент *k* можно определить по формуле:

$$k = exp(-\mu d) \tag{2.3},$$

где μ - массовый коэффициент ослабления в см²/г (табл. П.4; значения μ и R_{max} , приведенные для алюминия, можно использовать для оценки ослабления β –излучения в других материалах), $d = d_1 + d_2 - суммарная$ толщина слоя воздуха и окна в г/см².

Если толщина поглощающего слоя d превышает $0,3 \cdot R_{max.}$, то для оценки k можно воспользоваться эмпирическим графиком (рис. 2.1).

Экспоненциальный закон ослабления γ -излучения выполняется при любой толщине поглотителя и коэффициент *k* для квантов с энергией E_{γ} всегда может быть рассчитан (значения μ_{γ} приведены в табл. П.5). Однако в большинстве случаев (например, при E_{γ} >0,1 МэВ) потерями γ -излучения в стенках детектора пренебрегают, принимая k = 1.

Проникающая способность α -частиц крайне низка: их пробег в твердом веществе измеряется десятками микрометров. Поэтому α -излучающие препараты обычно по-мешают внутрь рабочего объема (рабочего вещества) детектора; в этом случае k=1.

Коэффициент самоослабление *S* учитывает поглощение (рассеяние) ядерного излучения в самом радиоактивном веществе и равен отношению числа частиц или квантов I_S , испускаемых в направлении детектора с поверхности препарата, находящегося на бесконечно тонкой подложке, к полному числу частиц или квантов I_{η} , испускаемых этим препаратом в направлении детектора ($S = I_S / I_{\eta}$).

Поправку на самослабление следует учитывать, прежде всего, при регистрации β частиц. Выше отмечалось, что ослабление β -излучения достаточно тонкими поглотителями подчиняется экспоненциальному закону. Для оценки *S* в этом случае ($d_{np} \leq 0, 3 \cdot R_{max}$) можно воспользоваться формулой:

$$S = \frac{1 - exp(-\mu d_{np})}{\mu d_{np}}$$
(2.4),

где толщина d_{np} выражена в линейных (см) или массовых единицах (г/см²); коэффициент ослабления μ - в см⁻¹ или см²/г, соответственно.

При регистрации β -излучения стараются использовать очень тонкие препараты, для которых произведение $\mu d_{np} \le 0.02$. В этом случае, согласно (2.4), коэффициент $1 \ge S \ge 0.99$ и поправка на самоослабление не вводится.

Поправка на самоослабление не вводится также при относительных измерениях «толстых» ($d_{np} \ge 0.75 \cdot R_{max}$) источников β -излучения (метод насыщенных слоев). В этом случае регистрируемая скорость счета *I* пропорциональна удельной активности A_{vo} образца, имеющего площадь *s*:

$$I = \frac{A_{y\vartheta} \cdot s}{\mu} (\varepsilon \cdot k \cdot q \cdot p \cdot \eta)$$
(2.5),

где ε , k, q, p и η - обсуждаемые в настоящем разделе поправочные коэффициенты; $A_{y\partial}$ может быть выражена либо в имп/с·г (μ - в см²/г), либо в имп/с·см³ (μ - в см⁻¹); размерность s - см².

Ослабление потока γ -квантов, как правило, пренебрежимо мало. Уравнение типа (2.4) целесообразно использовать, заменив коэффициенты μ (для β -излучения) на коэффициенты μ_{γ} из табл. П.5, для оценки самопоглощения мягкого γ -излучения в достаточно толстых препаратах ($\mu_{\gamma} \cdot d_{np} > 0,05$).

Коэффициент обратного рассеяния q — отношение числа частиц I_{qS} , испускаемых в направлении детектора с поверхности препарата, находящегося на подложке конечной толщины, к числу частиц I_S , испускаемых в направлении детектора с поверхности того же препарата при бесконечно тонкой подложке ($q = I_{qS}/I_S$).

Бета-частица может изменять направления своего движения при каждом взаимодействии с атомами материала подложки, на которую нанесен исследуемый препарат. В результате некоторая часть излучения, испускаемого в сторону подложки, может от-



Рис. 2.2. Зависимость коэффициента q от материала подложки для β -излучения 60 Со и 32 Р

ражаться в направлении детектора. Коэффициент q возрастает с увеличением толщины подложки h, достигая насыщения при $h \cong 0, 2 \div 0, 4 \cdot R_{max}$. Обратное рассеяние также растет при увеличении атомного номера материала подложки Z и энергии β-частиц, проявляя тенденцию к насыщению (рис. 2.2; ⁶⁰Co $E_{\beta,max}$ = 0,3 МэВ; ³²Р $E_{\beta,max} = 1,7$ МэВ). При этом обратное рассеяние излучения с энергией $E_{\beta,max} \ge 0,6$ МэВ одной и той же подложкой примерно одинаково. Если подложка изготовлена из легкого материала, например, оргстекла ($Z\cong 4$), то обратным рассеянием излучения практически для всех β-источников можно пренебречь (1< *q* ≤1,1; рис. 2.2).

Для достаточно толстых препаратов (практически начиная с $d_{np} > 0,2 \cdot R_{max}$) коэффициент q=1, так как отраженные β -частицы поглощается самим препаратом.

При измерении γ -излучающих препаратов обратное рассеяние, как правило, не учитывают, так как в большинстве случаев $q \le 1,02$.

Поправка на схему распада p. Спектр излучения, сопровождающего распад ядер большинства нуклидов, состоит из частиц и/или γ -квантов нескольких энергетических групп, которые характеризуются различными наборами коэффициентов ε_i , k_i , S_i и q_i . Доля излучения данного вида (или данной энергии) в спектре испускаемых ядром частиц (квантов) называется поправкой на схему распада p. Значения коэффициентов p_i приведены в таблицах изотопов (табл. П.1)

Геометрический коэффициент п учитывает потери излучения, обусловленные взаимным расположением препарата и счетчика. Он равен отношению числа частиц (квантов) I_{η} , испускаемых препаратом, находящимся на бесконечно тонкой подложке, в направлении чувствительного объема детектора к общему числу частиц (квантов) $A\sum_{i} p_{i}$, появляющихся при распаде ядер ($\eta = I_{\eta}/A\sum_{i} p_{i}$).

Геометрический коэффициент равен единице, если радиоактивный препарат находится внутри ионизационного газового детектора (4 π -счетчик) или радиоактивное вещество растворено в жидком сцинтилляторе. Коэффициент η в ряде случаев можно определить, рассчитав телесный угол ω , под которым детектор облучается источником излучения ($\eta = \omega/4\pi$). В случае сложной конфигурации препарата используют экспериментальный метод нахождения η (см. п. 2.2).

Абсолютную активность препарата, согласно (2.2), можно найти по значению его истинной скорости счета, если известен коэффициент регистрации ф.

Точно определить или рассчитать все сомножители коэффициента φ , как отмечалось выше, во многих случаях весьма затруднительно. Поэтому для определения абсолютной активности часто используют либо «метод относительных измерений», либо «метод фиксированного телесного угла». Суть обоих методов – сравнение, в строго тождественных условиях, скорости счета исследуемого (контрольного) препарата (I_x) со скоростью счета эталонного (стандартного) препарата (I_{sm}), содержащего известное количество радионуклида.

Измерения проводят на одной и той же установке с одним и тем же детектором и кассетой для крепления образцов. Препараты должны иметь идентичные форму и размер и быть одинаково расположены относительно детектора. Радиоактивные вещества наносят на равные по толщине подложки, которые изготовлены из одного и тоже материала. При регистрации β -частиц рекомендуется использовать тонкую органическую пленку или бумагу, обратное рассеяние от которых минимально. Для устранения погрешности, связанной с самоослаблением β -излучения, следует измерять скорость счета либо очень тонких препаратов ($\mu d_{np} \le 0,02$), либо препаратов, толщина которых сравнима (или больше) с максимальным пробегом β -частиц.

Если препараты содержат один и тот же радионуклид, то, при проведении измерений в одних и тех же условиях, коэффициенты регистрации φ будут одинаковы. В этом случае говорят об определении абсолютной активности (A_x) по «методу относительных измерений»:

$$A_x = \frac{I_x}{I_{_{Dm}}} A_{_{Dm}}$$
(2.6)

В тех случаях, когда отсутствуют стандартные препараты, содержащие тот же нуклид, что и используемый в работе, применяют «метод фиксированного телесного угла». Он заключается в измерении скорости счета препаратов при соблюдении постоянства геометрического коэффициента η в сочетании с расчетом всех необходимых поправок, входящих в коэффициент регистрации φ . Поскольку расчет каждого из коэффициентов в (2.2) будет увеличивать погрешность определения A, стремятся обеспечить такие условия регистрации, которые позволяют считать хотя бы некоторые поправки равными 1.

2.2. Определение абсолютной активности препарата ⁹⁰Sr(⁹⁰Y)

В настоящей работе для определения абсолютной активности контрольного препарата ⁹⁰Sr(⁹⁰Y), в котором изотопы находятся в состоянии векового равновесия, используют эталонный препарат ²⁰⁴Tl. Необходимые для последующих расчетов данные (периоды полураспада, энергия частиц $E_{\beta,max}$ и выходы частиц на распад) приведены в табл. П.1.

Препараты представляют собой алюминиевые диски толщиной 1 мм, на поверхность которых нанесено радиоактивное вещество в количестве, соответствующему условию «бесконечно тонкий образец» (*S*=1). Площадь активного пятна в центре дисков равна 1 см². Для обоих источников эффективность регистрации β-излучения ε =1. Коэффициенты обратного рассеяния излучения ⁹⁰Sr, ²⁰⁴Tl и ⁹⁰Y, в пределах погрешности измерений, можно считать одинаковыми (1,2≤ q ≤1,3).

Таким образом, на основании (2.2), с учетом равенства η, можно записать:

$$A_{x} = \frac{I_{x}}{I_{\mathfrak{I}m}} \frac{\sum_{j} p_{j} \varepsilon_{j} k_{j} S_{j} q_{j}}{\sum_{i} p_{i} \varepsilon_{i} k_{i} S_{i} q_{i}} A_{\mathfrak{I}m} \qquad \mathbf{M} \qquad A_{x} = A_{Sr(Y)} = \frac{I_{Sr(Y)}}{I_{Tl}} \cdot \frac{0.98 \cdot k_{Tl}}{(k_{Sr} + k_{Y})} A_{Tl} \qquad (2.7),$$

где индексы *j* и *i* относятся к эталонному и исследуемому препаратам, соответственно. Следует подчеркнуть, что в уравнениях (2.6, 2.7) значения *I*, I_x и I_{3m} - истинные регистрируемые активности, т.е. скорости счета, исправленные на разрешающее время τ и фон (см. уравнение (1.3)). В настоящей работе обычно используются препараты, скорость счета которых меньше 6000 имп/мин, что позволяет не вводить поправку на τ .

Основной вклад в погрешность искомой величины A_x вносит значительная погрешность определения коэффициентов ослабления k ($\delta_{k(TI)} = \delta_{k(Sr)} = \delta_{k(Y)} = 0,15$); высокая точность измерения скорости счета практически не будет влиять на конечный результат. Учитывая это условие, для определения A_x можно ограничиться проведением, как правило, 4÷5 измерений скорости счета препаратов продолжительностью по 1 мин (в большинстве случаев погрешность определения I_c будет меньше 10%).

Цель работы

Определение методом фиксированного телесного угла абсолютной активности препарата, содержащего равновесную смесь изотопов ⁹⁰Sr(⁹⁰Y).

Оборудование и материалы

Установка с цилиндрическим счетчиком Гейгера-Мюллера.

Контрольный препарат 90 Sr(90 Y).

Эталонный (стандартный) препарат ²⁰⁴Tl с сопроводительным паспортом.

Выполнения работы

1. Проводят предварительные (продолжительностью t=50 с или t=1 мин) измерения скорости счета эталонного образца $I_{c,x}$, контрольного препарата $I_{c,9m}$ и фона I_{ϕ} . Используя соотношения (1.32; 1.33), оценивают минимальную относительная погрешность ($\delta_{\gamma(Ic)}$) определения скорости счета $I_{c,x}$ и $I_{c,9m}$ при доверительной вероятности $\gamma=0.95$ для 4^{x} измерений каждого препарата и фона продолжительностью по 1 мин^(*).

2. Проводят по 4 измерения скорости счета контрольного и стандартного препаратов, каждый раз поворачивая их вокруг оси на случайный угол, и фона продолжительностью по 1 мин. Находят средние скорости счета препаратов за вычетом фона. В отсутствие поправки на разрешающее время: $\bar{I}_{Sr(Y)} = \bar{I}_{m,x} - \bar{I}_{\phi} = \bar{I}_{c,x} - \bar{I}_{\phi}$ и $\bar{I}_{T1} = \bar{I}_{m,ym} - \bar{I}_{\phi} = \bar{I}_{c,ym} - \bar{I}_{\phi}$. 3. Рассчитывают погрешности ($\Delta_{\gamma,t}$) определения $\bar{I}_{Sr(Y)}$ и \bar{I}_{T1} для 95%-ной доверительной вероятности, используя уравнения (1.19, 1.26 и 1.33) и табл. П.2.

4. Используя формулу (2.3) и табл. П.4, рассчитывают коэффициенты ослабления (*k*) β -излучения ⁹⁰Sr, ⁹⁰Y и ²⁰⁴Tl (толщина стенки детектора и слоя воздуха *d*=63 мг/см²).

5. Рассчитывают, согласно (2.7), абсолютную активность контрольного препарата.

6. Применяя закон накопления погрешностей (1.30), рассчитывают относительную и абсолютную погрешности величины $A_{Sr(Y)}$, соответствующие 95%-ной доверительной вероятности, принимая, что погрешности $\delta_{k(TI)} = \delta_{k(Sr)} = \delta_{k(Y)} = 0,15$. Погрешность определения A_{TI} указана в паспорте эталонного препарата.

$$\delta_{A_{Sr(Y)}}^{2} = \delta_{I_{Sr(Y)}}^{2} + \delta_{I_{\Pi}}^{2} + \delta_{k_{\Pi}}^{2} + \delta_{A_{\Pi}}^{2} + \frac{k_{Sr}^{2}}{(k_{Sr} + k_{Y})^{2}} \delta_{k_{Sr}}^{2} + \frac{k_{Y}^{2}}{(k_{Sr} + k_{Y})^{2}} \delta_{k_{Y}}^{2}$$
(2.8)

^{*} Если предварительная оценка показывает, что δ_{γ(*lc*)} превышает 10%, то, по согласованию с преподавателем, предполагаемое число измерений увеличивают.

РАБОТА 3. ИДЕНТИФИКАЦИЯ РАДИОНУКЛИДОВ МЕТОДОМ ГАММА-СПЕКТРОМЕТРИИ

3.1. Гамма-спектрометрия

Гамма-излучение сопровождает ядерные превращения подавляющего большинства радионуклидов. Ядро, образующееся при радиоактивном распаде, чаще всего оказывается в возбужденном состоянии (E_{ex}), при переходе из которого на уровень с меньшей энергией или в основное состояние (E_g) испускается γ -квант. Энергия квантов ($E_{\gamma}=E_{ex}-E_g$) определяется структурой энергетических уровней конкретного ядра и, следовательно, γ -спектр является своеобразным «паспортом» радионуклида. Поэтому гамма-спектрометрия – определение энергетического спектра γ -квантов, испускаемых исследуемым веществом, – наиболее универсальный метод идентификации радионуклидов в пробах различного состава. Гамма-спектрометрия является также важной составной частью многих инструментальных методов химического анализа. Например, γ -спектры нуклидов, образующихся при нейтронном облучении сложного по составу образца, позволяют установить содержание различных химических элементов в исследуемом веществе.

3.1.1. Испускание и поглощение гамма-квантов

Энергетические состояния (уровни) ядра дискретны и имеют ширину Γ_0 , связанную со временем их жизни τ_{ex} соотношением Гейзенберга: $\Gamma_0 \cdot \tau_{ex} = h/2\pi$, где h – постоянная Планка. В соответствии с принципом неопределенности, γ -кванты, испускаемые возбужденными ядрами при одном и том же переходе, не могут иметь абсолютно одинаковую энергию. Спектральная линия, отвечающая такому переходу, не является бесконечно тонкой, а обладает естественной шириной Γ_0 , которая равна, как правило, $10^{-10} \div 10^{-6}$ эВ. Кроме того, при испускании фотонов часть энергии перехода может быть передана ядру (энергия отдачи E_R), а ширина линии испускания увеличивается до значения Γ_T из-за модуляции энергии при тепловом движении ядер (эффекта Доплера). Значения E_R и Γ_T пренебрежимо малы по сравнению с E_{γ} . Например, для ¹³⁷Сs (E_{γ} =662 кэВ) отношения E_R/E_{γ} и Γ_T/E_{γ} равны, соответственно, 2,6·10⁻⁶ и 6,3·10⁻⁷. Поэтому спектр испускаемых γ -квантов считается, применительно к гаммаспектроскопии, дискретным.

Энергию γ-квантов, преобразованную в электрические сигналы детектора, определяют по положению линий аппаратурного γ-спектра, формирование которого обусловлено, в основном, первичными процессами потери энергии γ-излучения в кристалле детектора: фотопоглощением, комптоновским рассеянием и образованием электронно-позитронных пар.

Фотопоглощение (фотоэффект) – процесс передачи всей энергии γ -кванта электрону, как правило, *К*- или *L*-оболочки атома облучаемого вещества. Кинетическая энергия выбитого электрона (фотоэлектрона) E_{ϕ} равна разности между энергией фотона и энергией связи в атоме, например, *К*-электрона: $E_{\phi} = E_{\gamma} - E_{K}$.

Вакансия, образовавшаяся на *К*-оболочке, заполняется электроном с одного из находящихся выше уровней, например, L_{I} . Выделяющаяся при этом энергия $(E_K - E_{LI})$ может быть либо рассеяна в виде рентгеновского кванта $(E_X = E_K - E_{LI})$, либо передана другому электрону, например, L_{II} -оболочки. Этот электрон покинет атом, т.к.

 $E_{K}-E_{LI}>E_{LII}$. В этом заключается эффект Оже. Каскадное размножение «дырок» после первого оже-перехода происходит до тех пор, пока они не переместятся во внешние оболочки. Таким образом, фотоэффект сопровождается либо рентгеновской флуоресценцией, либо каскадом Оже.

Количественной характеристикой вероятности взаимодействия γ -квантов с атомами поглотителя является «сечение взаимодействия». Сечение численно равно вероятности взаимодействия кванта на единице пути в веществе, содержащем один атом в единице объема, и имеет размерность площади (как правило, см²). Сечение фотопоглощения (τ) резко возрастает при уменьшении E_{γ} и увеличении атомного номера Z вещества поглотителя: для квантов относительно небольшой энергии ($E_{\gamma} < 511$ кэВ) τ пропорционально отношению $Z^5/E_{\gamma}^{3,5}$. Следует отметить, что значение τ скачкообразно увеличивается в случае равенства E_{γ} энергии связи электронов на K-, L- или Mоболочках.

Фотоэффект является преобладающим процессом передачи энергии при прохождении квантов низкой энергии через поглотитель, имеющий относительно большой атомный номер. В частности, характеристическое излучение, имеющее, как правило, небольшую энергию ($E_X < E_K$), поглощается по механизму фотоэффекта.

Комптоновское рассеяние – передача части энергии γ -квантов электронам внешних оболочек. Энергия связи этих электронов пренебрежимо мала по сравнению с E_{γ} и рассеяние трактуется как упругое столкновение фотона с отдельным свободным электроном. В результате электрон покидает атом, а γ -квант с энергией E_{γ}' отклоняется от направления движения первичного кванта. Кинетическая энергия комптоновских электронов ($E_{компт} = E_{\gamma} - E_{\gamma}'$), выбитых моноэнергетическими квантами (E_{γ} , кэВ), изменяется в широких пределах: $0 < E_{компт} \le E_{\gamma} \cdot [1 + (511/2E_{\gamma})]^{-1}$. Число фотонов, проходящих через поглотитель при регистрации γ -излучения, велико и энергетическое распределение комптон-электронов в указанных границах является фактически непрерывным.

Вероятность комптоновского рассеяния (σ) растет при уменьшении E_{γ} и при увеличении Z облучаемого вещества, но зависимости более плавные, чем в случае фотоэффекта: в первом приближении, $\sigma \propto Z/E_{\gamma}$. В большинстве поглотителей комптоновское рассеяние является основным первичным процессом взаимодействия для фотонов средних и высоких энергий, а при небольших Z – и для мягких γ -квантов.

Образование пар электрон-позитрон – взаимодействие высокоэнергетических γ квантов с полем ядер, приводящее к исчезновению квантов и образованию заряженных частиц. Пороговая энергия процесса равна удвоенной энергии массы покоя электрона (1022 кэВ), а кинетическая энергия частиц $E_{e.} = E_{e+} = (E_{\gamma}-1022)/2$. Последующая аннигиляция позитрона приводит к появлению двух квантов с энергией по 511 кэВ каждый, которые, в свою очередь, могут поглотиться веществом по механизму фотоэффекта или рассеяться на электронах. Вероятность образования пар (χ) пропорциональна Z^2 и растет с увеличением E_{γ} . Значение χ сравнительно велико лишь для фотонов с энергией более 4000 кэВ, а в диапазоне $1022 < E_{\gamma} < 2000$ кэВ во много раз меньше сечения комптоновского рассеяния.

Экспоненциальный закон ослабления и проникающая способность у-излучения.

Описанные выше процессы приводят к ослаблению потока γ-излучения: уменьшение числа γ-квантов из параллельного пучка, падающего перпендикулярно поверхности поглотителя, подчиняется экспоненциальному закону

$$N_l = N_0 \exp(-\mu' l) \tag{3.1},$$

где N_0 и N_l – числа γ -квантов, падающих на поглотитель и прошедших сквозь него, соответственно, l – толщина поглотителя в см, μ' - коэффициент ослабления в см⁻¹.

Коэффициент ослабления μ' зависит от химического состава поглотителя и энергии у-квантов (табл. П.5). Он характеризует полную вероятность взаимодействия фотонного излучения с веществом и равен сумме коэффициентов ослабления за счет фотопоглощения (τ'), комптоновского рассеяния (σ') и образования пар (χ'):

 $\mu' = (\tau + \sigma + \chi) \cdot 10^{-24} \cdot n_a = \tau' + \sigma' + \chi'$ (3.2), сечения основных процессов потерь энергии (в см²), n_a – число атомов в 1 см³

где т, σ , χ - сечения основных процессов потерь энергии (в см²), n_a – число атомов в 1 см³ облучаемого материала.

Если толщина поглотителя, имеющего плотность ρ (г/см³), выражена в г/см², то для оценки ослабления потока используют массовый коэффициент $\mu = \mu'/\rho$ (см²/г).

Фотоны не имеют определенного пробега в веществе и экспоненциальный закон ослабления потока (3.1) выполняется при любом значении *l*. Для характеристики проникающей способности γ -излучения используют значение $1/\mu'$ (средняя глубина проникновения фотонов в данный материал) или толщину поглотителя, ослабляющего поток в 2 раза ($l_{1/2}=ln2/\mu'$). Следует отметить, что значение $l_{1/2}$ для потока квантов с энергией E_{γ} в сотни раз больше слоя половинного ослабления потока электронов, имеющих кинетическую энергию $E_{\kappa un} = E_{\gamma}$.

Ионизация среды.

Число заряженных частиц, образующихся непосредственно в первичных процессах передачи энергии, относительно невелико. Ионизирующее действие γ -излучения определяется, в основном, неупругими взаимодействиями фото-, комптоновских и электронов (позитронов) пар с атомами облучаемого материала: практически вся кинетическая энергия этих частиц расходуется на ионизацию и/или возбуждение атомов поглотителя. Вместе с тем, движение электронов через вещество *всегда* сопровождается электромагнитным тормозным излучением. Доля потерь на тормозное излучение увеличивается с ростом кинетической энергии частиц ($E_{\kappa un}$) и атомного номера поглотителя Z. В кристаллах сцинтилляционных ($Z_{эф\phi}=32$ для NaI) и полупроводниковых (Z=32 для Ge) детекторов эти потери составляют лишь 2-3% для высокоэнергетических электронов ($E_{\kappa un} = 2000 \div 3000$ кэВ) и пренебрежимо малы в случае $E_{\kappa un} < 1000$ кэВ. В гамма-спектрометрии потери на тормозное излучение обычно не учитываются.

3.1.2. Процессы преобразования энергии гамма-квантов в детекторах

В настоящее время для спектрометрии γ-излучения преимущественно используют детекторы двух типов: сцинтилляционные и полупроводниковые.

Сцинтилляционные детекторы представляют собой кристалл-сцинтиллятор, оптически связанный с фотоэлектронным умножителем (ФЭУ). Чаще всего в качестве сцинтиллятора используется монокристалл иодида натрия, активированный таллием NaI(Tl); применяют также кристаллы CsI(Tl) и Bi₄Ge₃O₁₂.

Электроны (позитроны), появляющиеся при прохождении потока γ-квантов через кристалл, ионизируют и/или возбуждают большое число атомов. Максимальный пробег этих частиц, как правило, заведомо меньше размеров кристалла и практически вся кинетическая энергия передается сцинтиллятору^(*). Основная часть энергии воз-

^(*) Без учета потерь на тормозное излучение.

буждения трансформируется в тепловую, часть – высвечивается: число световых фотонов составляет в среднем 10÷100 на 1 кэВ поглощенной энергии γ-излучения. При этом доля энергии возбуждения, преобразуемой в световые импульсы, – величина постоянная для данного кристалла. Поэтому число фотонов, составляющих отдельную сцинтилляцию, пропорционально кинетической энергии заряженных частиц, т.е. доле энергии γ-кванта, переданной кристаллу.

Вспышки света, попадая на фотокатод ФЭУ, вызывают эмиссию электронов, которые в электрическом поле ускоряются и попадают на первый динод. Поток электронов, проходя систему динодов, увеличивается лавинообразно примерно в $10^5 \div 10^7$ раз, и электрический импульс с анода ФЭУ поступает в регистрирующую аппаратуру. Заряд, приносимый лавиной на анод, пропорционален числу электронов, выбитых с фотокатода, которое, в свою очередь, определяется интенсивностью световых вспышек. Таким образом, амплитуды сигналов на выходе ФЭУ пропорциональны энергии, передаваемой γ -квантами атомам сцинтиллятора в первичных процессах.

Развитие электронной лавины и формирование сигнала на аноде ФЭУ занимает $10^{-9} \div 10^{-8}$ с. Этот период меньше времени высвечивания фотонов неорганическими кристаллами (в случае NaI(Tl) ~2·10⁻⁷ c), которое определяет разрешающее время сцинтилляционных детекторов (см. стр.6).

Действие полупроводниковых детекторов основано на ионизации рабочего вещества детектора (монокристалл кремния или сверхчистого германия) заряженными частицами, появляющимися при его γ -облучении. Средняя энергия, затрачиваемая на образование одной пары электрон-вакансия, составляет 2,9 и 3,8 эВ для германия и кремния, соответственно. Электроны (позитроны) при торможении внутри рабочего объема детектора создают большое число свободных носителей заряда (пар электрон – вакансия), которые под действием приложенного напряжения движутся к электродам. В результате во внешней цепи детектора возникает электрический импульс, пропорциональный поглощенной энергии γ -кванта. Этот сигнал затем усиливается и регистрируется.

Большая подвижность носителей заряда в Ge и Si позволяет собрать заряд за время примерно $10^{-8}-10^{-7}$ с, что обеспечивает высокое временное разрешение полупроводниковых детекторов. Эти детекторы (как и сцинтилляционные) позволяют регистрировать высокие скорости счета без поправки на разрешающее время т (см. стр.6).

3.1.3. Аппаратурный спектр

Амплитуда сигнала детектора, как отмечалось выше, определяется поглощенной кристаллом кинетической энергией заряженных частиц, появляющихся в результате первичных процессов взаимодействия электромагнитного излучения с веществом. В этих процессах γ-кванты могут передать кристаллу либо всю энергию, либо только часть её, и, следовательно, даже при регистрации моноэнергетического излучения на выходе детектора формируются импульсы различной амплитуды.

При фотоэффекте вся энергия γ -кванта расходуется на удаление из атома, как правило, *К*-электрона. Возбужденный атом переходит в основное состояние, испуская кванты характеристического рентгеновского излучения E_X или оже-электроны. Процесс перестройки электронной оболочки завершаются примерно через 10^{-14} с после поглощения первичного фотона. К этому моменту энергия исходного γ -кванта (сумма

кинетической энергии фотоэлектрона и энергии возбуждения электронной системы атома) поглощается в локальной области кристалла, размер которой определяется или максимальным пробегом (R_{max}) выбитых электронов, или (при фотопоглощении низ-коэнергетических γ -квантов) – проникающей способностью характеристического излучения. Например, значения R_{max} для высокоэнергетических электронов (500 кэВ < E_{ϕ} < 3000 кэВ) в кристаллах NaI и Ge составляют от ~ 0,8 до ~7 мм, а для электронов E_{ϕ} =100 кэВ – 0,06 мм. Пробег оже-электронов во много раз меньше. В то же время для поглощения 99% потока рентгеновских квантов ($E_X \leq 28$ кэВ) необходим слой вещества ~ 0,5 мм.

Таким образом, при фотопоглощении γ -кванта амплитуда импульса пропорциональна энергии E_{γ} , и в аппаратурном спектре появляется максимум – пик полного поглощения энергии (ППЭ). Вылет рентгеновских квантов за пределы кристалла может привести к асимметрии пика ППЭ или к появлению дополнительного максимума. Например, для йода $E_X \approx 28$ кэВ и в аппаратурном спектре детектора с тонким кристаллом NaI(Tl) может наблюдаться «пик вылета», отвечающий энергии $E_{\Pi B} \approx E_{\gamma} - 28$ кэВ.

При комптоновском взаимодействии доля энергии, которая остается у рассеянного кванта E_{γ}' , в каждом случае различна и относительно велика. Если рассеянные кванты вылетают за пределы кристалла, то при каждом взаимодействии детектору передается различная доля энергии первичного кванта ($E_{\kappa omnm.}=E_{\gamma}-E_{\gamma}'$). Такие события формируют непрерывную часть спектра (комптоновский континуум), лежащую левее пика полного поглощения энергии. Граница этого распределения соответствует максимальной энергии комптон-электронов: E_{γ} ·[1+(511/2 E_{γ})]⁻¹ (кэВ).

В спектре радионуклидов, испускающих высокоэнергетические кванты, могут наблюдаться, в дополнение к пику ППЭ и комптоновскому континууму, максимумы, соответствующие вылету за пределы кристалла одного или двух аннигиляционных квантов (E_{γ} -511 кэВ или E_{γ} -1022 кэВ).

Необходимо отметить, что не только непосредственно фотоэффект, но и совокупность первичных процессов может привести к полному поглощению энергии кванта E_{γ} в кристалле. Например, рассеянный комптоновский квант E_{γ}' может поглотиться по механизму фотоэффекта. Так как перемещение комптон-электрона и фотопоглощение этого вторичного кванта в кристалле происходит практически одновременно, на выходе детектора формируется один результирующий импульс, который пропорционален энергии E_{γ} и вносит вклад в пик полного поглощения энергии. Этот пик часто называют фотопиком, подчеркивая тем самым, что его появление определяется фотопоглощением как первичных, так и части вторичных квантов. Чем больше кристалл, тем выше вероятность поглощения вторичных квантов и, следовательно, больше относительная интенсивность фотопика в аппаратурном спектре.

Представленные выше механизмы взаимодействия γ -квантов с веществом являются общими для всех типов электромагнитного излучения сверхвысокой частоты, в том числе характеристического рентгеновского, аннигиляционного и тормозного. Поэтому регистрация и определение энергии, например, рентгеновских квантов основаны на тех же принципах, что и гамма-спектрометрия. В этой связи следует отметить, что радиоактивный распад может инициировать не только γ -излучение, но и характеристическое рентгеновское. Во многих случаях энергия возбуждения ядра передается непосредственно электрону, например, *К*-оболочки, который покидает атом (процесс внутренней конверсии). При последующей перестройке электронной системы испускаются рентгеновские кванты и электроны Оже. Подобный «внутренний фотоэффект» вызывает также распад ядра путем электронного захвата. В спектрах радионуклидов часто наблюдаются пики полного поглощения энергии «конверсионного» рентгеновского излучения (см. табл. 3.1).

Гамма-спектрометр состоит из детектора, линейного усилителя и амплитудноцифрового преобразователя (АЦП), связанного с персональным компьютером. Исследуемый диапазон амплитуд разбивается на *n* (например, 1024 или 4096) равных



Рис. 3.1. Спектры ⁶⁶Со, полученные с помощьк полупроводникового (HPGe) и сцинтилляционного (NaI) детекторов

участков (каналов), каждому из которых присваивается порядковый номер. Амплитуда сигнапоступающих лов, на вход АЦП, измеряется, и в каждый канал попадают соответствующие ему импульсы с амплитудой $v_1 \pm \Delta v_1, \quad v_2 \pm \Delta v_2, \dots \quad v_n \pm \Delta v_n,$ которая зависит от поглощенной кристаллом энергии $E_1 \pm \Delta E_1$, $E_2 \pm \Delta E_2, \dots E_n \pm \Delta E_n$. Число импульсов, аккумулированных в каждом канале за время измерения t, подсчитывается и в результате получается аппаратурный спектр. Он

представляет собой дискретное распределение, по оси абсцисс которого отложены номера каналов (амплитуды сигналов, энергия E_{γ}), а по оси ординат – число накопленных в каналах импульсов (рис. 3.1). В дальнейшем эта гистограмма аппроксимируется плавной кривой с использованием той или иной математической модели, например, функции Гаусса.

Для того чтобы соотнести номера каналов значениям энергии γ -квантов, проводят калибровку спектрометра по энергии. С этой целью набирают спектры нескольких стандартных источников и в каждом спектре определяют номера каналов, отвечающие центрам пиков полного поглощения. Этим каналам присваивают соответствующие табличные значения E_{γ} (или E_X) и проводят линейную аппроксимацию зависимости энергии от номера канала спектрометра *n*:

$$\boldsymbol{E}_{\boldsymbol{\gamma}} = \boldsymbol{a} + \boldsymbol{b} \cdot \boldsymbol{n} \tag{3.3}.$$

Важной характеристикой детекторов, применяемых для спектрометрии излучений, является их относительное энергетическое (амплитудное) разрешение - отношение ширины фотопика на его полувысоте (W) к энергии кванта E_{γ} , соответствующей этому пику. Чем меньше значение W/E_{γ} , тем лучше разрешены линии аппаратурного спектра (см. рис. 3.1).

Ширина пика W отражает флуктуацию амплитуд сигналов на выходе детектора, обусловленную, главным образом, статистическим разбросом числа носителей заряда (n_e) . Чем больше образуется носителей заряда, тем меньше (по закону Пуассона) от-

носительное среднеквадратичное отклонение $\delta = 1/(n_e)^{\frac{1}{2}}$ и лучше амплитудное разрешение. Статистические колебания амплитуд выходного импульса сцинтилляционного детектора обусловлены флуктуациями весьма небольшого числа электронов, выбитых с фотокатода и приходящих на первый динод ФЭУ, а полупроводникового – большого числа пар электрон-вакансия. Например, при поглощении в кристалле Nal энергии E_{γ} =600 кэВ на первый динод попадает менее 200 электронов, что дает ~7% разброс в величине выходного импульса. При поглощении γ -кванта такой же энергии в кристалле германия образуется ~ 200000 носителей заряда, что в конечном счете предопределяет значительно лучшее относительное энергетическое разрешение полупроводниковых детекторов (W/E_{γ} =0,003÷0,009 в диапазоне 1000÷100 кэВ) по сравнению со сцинтилляционными (0,06÷0,1).

Площадь пика полного поглощения энергии гамма-кванта.

В спектре исследуемого источника определяют положение (энергию $E_{\gamma,i}$) фотопиков и их площадь (интенсивность) - общее число импульсов, обусловленных процессом полного поглощения энергии γ -кванта $E_{\gamma,i}$ и накопленных в единицу времени в каналах спектрометра, соответствующих этим пикам. Спектры нуклидов содержат,



Рис. 3.2. Определение площади пика ППЭ [4]; пояснения в тексте

как правило, несколько пиков ППЭ и соответствующие этим пикам комптоновские континуумы, а также фоновую составляющую. Поэтому фотопик находится на «пьедестале», сформированном импульсами, в основном, комптоновских электронов, а также фона (см. рис. 3.1 и рис. 3.2). Для определения истинной площади пика ППЭ необходимо вычесть из общего числа импульсов, накопленных на рассматриваемом участке спектра (I_{f+b}) , ту их часть, которая образует «пьедестал» (I_b) . Современные спектрометры имеют программное обеспечение, позволяющее найти границы пиков ППЭ и рассчитать их интенсивность. Вместе с тем, во многих случаях может быть полезна предварительная визуальная оценка истиной площади пика ППЭ, рекомендованная, например, в работе [5] (рис. 3.2). Пусть I_p - скорость счета в одном из т каналов непосредственно под пиком, I_{bi} и I_{bj} – скорости счета в одном из k каналов слева и справа от пика, соответственно. Предполагается, что распределение импульсов «пьедестала»

не содержит каких-либо максимумов, замаскированных фотопиком. Тогда истинная площадь пика (*I_f*) будет равна:

$$I_{f} = \int_{p=1}^{m} I_{p} - \frac{m}{2k} \left(\int_{i=1}^{k} I_{b,i} + \int_{j=1}^{k} I_{b,j} \right)$$
(3.4).

Длительность набора спектров определяется требуемой величиной дисперсии измеряемой площади пика ППЭ ($\sigma_{If}^2 = I_f + I_b[(m/2k)+1]$). Время отдельного измерения можно рассчитать по уравнению (1.36), заменив, соответственно, скорости счета препарата (I_c) и фона (I_{ϕ}) на общую площадь пика ($I_{f+b}=I_f+I_b$) и площадь «пьедестала» под пиком (I_b).

3.1.4. Эффективность регистрации гамма-квантов по пику полного поглощения и определение абсолютной активности радионуклида

Истинная скорость счета *I*, регистрируемая детектором любого типа, и абсолютная активность *A* нуклида со сложной схемой распада связаны соотношением (2.2). Для практической γ -спектрометрии наибольший интерес представляет число зарегистрированных импульсов, обусловленных полным поглощением энергии $E_{\gamma,i}$, или истинная площадь $I_{f,i}$ пика полного поглощения энергии этого кванта:

$$I_{f,i} = \varphi_i \cdot \omega_i \cdot A = p_i \cdot \varepsilon_{f,i} \cdot A \tag{3.5},$$

где φ_i – коэффициент регистрации квантов $E_{\gamma,i}$ (см. раздел 2.1); ω_i - доля квантов $E_{\gamma,i}$, энергия которых полностью поглощена в кристалле детектора; p_i - выход квантов $E_{\gamma,i}$ на распад (поправка на схему распада); $\varepsilon_{f,i}$ – эффективность регистрации (по пику полного поглощения) квантов $E_{\gamma,i}$ в условиях данного измерения; $I_{f,i}$ – площадь пика ППЭ в имп/с; A – активность источника в Бк.

Таким образом, эффективность регистрации γ -квантов (по пику полного поглощения) $\varepsilon_{f,i}$ – отношение числа зарегистрированных детектором квантов, энергия которых $E_{\gamma,i}$ полностью поглощена в кристалле, к общему числу квантов данной энергии, испускаемых источником в единицу времени. Используя (3.5) и (2.2), можно записать

Эффективность $\varepsilon_{f,i}$ зависит от энергии γ -квантов, взаимного расположения источника и детектора, состава и размеров кристалла детектора, толщины измеряемого препарата и некоторых других факторов. Очевидно, что рассчитать значение $\varepsilon_{f,i}$ сложно. Поэтому для определения абсолютной активности A_x исследуемого препарата обычно используют «метод относительных измерений» (см. раздел 2.1). Например, если исследуемый источник и стандартный образец (эталон), содержащий тот же нуклид известной активности A_{2m} , измеряют в строго тождественных условиях, то искомая активность, согласно (2.6) и (3.5), будет равна:

$$A_x = (I_{f,x} / I_{f,m}) \cdot A_{m}$$
(3.7)

Калибровка спектрометра по эффективности.

Если нет подходящих эталонов удельной активности, то эффективность регистрации γ -квантов изучаемого образца ($\varepsilon_{f,x}$) определяют по калибровочной зависимости ε_f от энергии E_{γ} для заданных условий измерения (рис. 3.3). Для калибровки спектрометра набирают спектры нескольких эталонных источников известной активности,

^(**) Коэффициенты η, ε, *k*, *S*, *q* рассматриваются в разделе 2.1. В частности, эффективность детектора ε определяется значением коэффициента ослабления μ' . Например, для γ-излучения ¹³⁷Cs (E_γ=662 кэВ) в NaI коэффициент $\mu' = 0,277$ см⁻¹ и с атомами кристалла толщиной *l*=3 см взаимодействует ~ 56% попавших в детектор квантов: $\varepsilon = (N_0 - N_l)/N_0 = (1 - e^{-0,277 \cdot 3}) = 0,564$. При регистрации мягких квантов ($E_{\gamma} < 100$ кэВ) эффективность такого детектора приближается к 100%.

^(***) В данном случае коэффициент $q_i = 1$, т.к. вероятность упругого (без изменения энергии) рассеяния γ -квантов пренебрежимо мала.

излучающих у-кванты в широком энергетическом диапазоне, вычисляют истинную площадь соответствующих им пиков ППЭ и, используя (3.6), - значения ε_f для каждой энергии. Построенная зависимость позволяет определить $\varepsilon_{f,x}$ и, следовательно, искомую активность

$$A_{x} = I_{f,x} \cdot [p_{x} \cdot \varepsilon_{f,x}]^{-1}$$
(3.8)

Измерения исследуемых и эталонных образцов проводят в одинаковых условиях, со-



Рис. 3.3. Типичная зависимость эффективности регистрации у-квантов (по пику ППЭ) от их энергии.

Учет фона.

ности материнских. Гамма-спектр измеряемого препарата всегда содержит фоновую составляющую, обусловленную излучением продуктов распада радона, которые присутствуют в атмосфере, а также радионуклидов, входящих в конструкционные и строительные материалы, космическим излучением, ложными импульсами (см. стр. 6). Если доля фоновых импульсов в спектре препарата невелика, то истинную площадь пиков ППЭ обычно определяют в предположении достаточно равномерного распределения импульсов «пьедестала», который к тому же лишь частично сформирован фоном. Фоновая компонента в спектрах препаратов низкой активности требует более тщательного учета, так как она всегда содержит «свои» максимумы, в частности, пики ППЭ излучения радионуклидов естественных радиоактивных семейств урана-радия и тория, а также пики ⁴⁰К, аннигиляционных квантов и другие. Эти фоновые максимумы и некоторые пики ППЭ в спектрах объектов исследования могут частично или полностью перекрываться. В этом случае в расчеты активности необходимо внести дополнительную поправку на площадь фонового фотопика:

$$A = \frac{I_f - I_{ff}}{p \cdot \varepsilon_f} \tag{3.9},$$

где A – активность радионуклида, I_f - площадь (за вычетом «пьедестала») пика полного поглощения энергии E_{γ} в спектре препарата, I_{ff} - площадь пика ППЭ на участке спектра фона, соответствующего энергии E_{γ} .

блюдая постоянство геометрического коэффициента η и используя близкие по форме, составу и плотности препараты. Например, калибровку по эффективности для точечных источников можно провести по спектрам образцовых стандартных гаммаспектрометрических источников (ОСГИ). Для калибровки используют также препараты, содержащие известное количество природного тория в равновесии с продуктами распада. Их спектры содержат целый ряд интенсивных пиков (см. табл. 3.1), активности дочерних нуклидов в таких препаратах равны известной активСпектр фона набирают, как правило, непосредственно перед проведением измерений препарата и обязательно в тех же условиях, что и спектр препарата. В частности, для того чтобы учесть поглощение фонового излучения в изучаемом образце, следует разместить на детекторе муляж – образец такой же массы и геометрии, но не содержащий измеряемых радионуклидов (холостой опыт).

Программное обеспечение современных спектрометров позволяет учесть полученный спектр фона при расчете положения и интенсивности пиков спектра исследуемого препарата.

3.1.5. Идентификация радионуклидов

Идентификация нуклидов включает в себя следующие этапы:

1) калибровка спектрометра по энергии, 2) набор спектра объекта исследования, идентификация пиков ППЭ и определение их площади, 3) калибровка спектрометра по эффективности, 4) набор спектра фона, 5) расчет активности радионуклидов. Порядок выполнения операций 2)-4) определяется условиями проведения конкретного эксперимента.

В спектре исследуемого препарата выделяют максимумы и, используя калибровочную зависимость (3.3), определяют энергию квантов, соответствующую положению центров этих пиков. Сравнивают полученные результаты со справочными данными и отмечают максимумы, которые могут быть отнесены к пикам полного поглощения энергии γ-квантов предполагаемых нуклидов.

Большинства нуклидов с вероятностью p_i испускают кванты различной энергии $E_{\gamma,i}$ (см., например, табл. 3.1 и табл. П.1) и их спектры содержат несколько пиков полного поглощения энергии. Для надежной идентификации нуклида желательно сопоставить с табличными данными не только энергию, но и отношения значений p_i для рассматриваемых квантов. С этой целью определяют площади выделенных пиков ($I_{f,i} = A \cdot p_i \cdot \varepsilon_{f,i}$) и, после калибровки спектрометра по эффективности (для заданных условий измерения), находят отношение вероятностей испускания p_i соответствующих γ -квантов. В сложном спектре источника, содержащего несколько нуклидов, удается надежно определить положение и площадь, как правило, только достаточно интенсивных пиков. Для идентификации неизвестного радионуклида необходимо, чтобы с литературными данными совпали параметры ($p_i, E_{\gamma,i}$) основных линий аппаратурного γ -спектра (обычно линий, соответствующих $p_i \ge 5 \div 10\%$). По площади этих наиболее интенсивных пиков рассчитывают абсолютную активность нуклида.

В ряде случаев для идентификации используют также период полураспада, рассчитанный по изменению площади соответствующего пика от времени. Если препарат содержит нуклиды, имеющие существенно различные периоды полураспада, то со временем должно наблюдаться прогнозируемое изменение формы амплитудного распределения, а именно – заметное уменьшение интенсивности пиков, относящихся к короткоживущим нуклидам.

3.2. Определение абсолютных активностей радионуклидов в препаратах диоксида обедненного урана

Цель работы

Практическое ознакомление с аппаратурой для гамма-спектрометрического анализа, количественное определение γ-излучающих радионуклидов в объемных образцах. Оборудование и препараты

Гамма-спектрометр с полупроводниковым или сцинтилляционным детектором; набор источников ОСГИ; препарат ²³²ThO₂, исследуемые препараты диоксида урана.

Выполнение работы

1. Калибровка гамма-спектрометра по энергии

Проводят последовательные измерения стандартных препаратов ОСГИ (241 Am, 22 Na, 137 Cs, 60 Co и др.) на расстоянии 10-15 см от детектора продолжительностью по 2-3 мин. Записывают номера каналов, отвечающие центрам пиков ППЭ в каждом спектре и соответствующие им значения E_{γ} , которые указаны в паспорте комплекта ОСГИ. Определяют коэффициенты линейного уравнения (3.3).

2. Калибровка гамма-спектрометра по эффективности

2.1. Проводят в течение ~ 30 мин. измерение стандартного препарата ²³²ThO₂. Выделяют все пики ППЭ в спектре препарата и, используя данные табл. 3.1, идентифицируют их (см. раздел 3.1.5).

Таблица 3.1

					1 /	1	-1	
<i>Е</i> _{<i>i</i>} , кэВ	$p_{i}, \%$	нуклид	<i>Е</i> _{<i>i</i>} , кэВ	$p_{i}, \%$	нуклид	<i>Е</i> _i , кэВ	$p_{i}, \%$	нуклид
72,8*	2,02	²⁰⁸ Tl	238,6	43,3	²¹² Pb	583,2	84,5	²⁰⁸ Tl
74,8*	10,4	²¹² Pb	241	3,90	²²⁴ Ra	727,3	6,58	²¹² Bi
75*	3,41	²⁰⁸ Tl	270,2	3,43	²²⁸ Ac	794,9	4,34	²²⁸ Ac
77,1*	17,5	²¹² Pb	277,4	6,31	²⁰⁸ Tl	860,6	12,42	²⁰⁸ Tl
87,3*	7,80	²¹² Pb	300,1	3,28	²¹² Pb	911,2	26,6	²²⁸ Ac
90*	1,94	²²⁸ Ac	328	2,95	²²⁸ Ac	964,8	5,11	²²⁸ Ac
93,4	3,20	²²⁸ Ac	338,3	11,3	²²⁸ Ac	969	16,2	²²⁸ Ac
129,1	2,45	²²⁸ Ac	463	4,44	²²⁸ Ac	1588,2	3,27	²²⁸ Ac
209,3	3,88	²²⁸ Ac	510,8	22,6	²⁰⁸ Tl	2614,5	99,16	²⁰⁸ Tl

Наиболее интенсивные рентгеновские и γ-линии радионуклидов ряда ²³²Th

* – характеристическое рентгеновское излучение

2.2. Используя программу обработки спектров, определяют истинную площадь $I_{f,i}$ (имп/с) каждого пика ППЭ. Рассчитывают, согласно (3.6), эффективность регистрации соответствующих квантов $\varepsilon_{f,i} = (I_{f,i}/p_i \cdot A)$, где A – известная абсолютная активность препарата ²³²ThO₂ (Бк), p_i – выход квантов на распад (табл. 3.1)

Таблица 3.2

N⁰	канал, п	<i>Еi</i> , кэВ	нуклид	$p_i, \%$	 <i>I_{f,i},</i> имп/с	$\epsilon_{f,i}$
1						
2						

Результаты обработки спектра ²³²ThO

2.3. Используя одну из программ (Microsoft Excel, Origin и т.п.), строят график зависимости эффективности регистрации ε_f от энергии квантов *E* (см. рис. 3.3). Левая и правая ветви этой зависимости аппроксимируется различными полиномами в логарифмическом масштабе:

$$ln\varepsilon_f = a + blnE + clnE^2 + dlnE^3 + \dots$$
(3.10)

3. Идентификация линий спектра препарата диоксида урана Получают спектр препарата диоксида обедненного урана (продолжительность измерения 10÷15 минут). Выделяют максимумы, определяют площадь (за вычетом «пьедестала») каждого выделенного пика $I_{f,i}$. Проводят идентификацию пиков полного поглощения энергии, используя калибровку спектрометра по энергии (3.3) и данные из табл. 3.3 (см. раздел 3.1.5). Результаты заносят в табл. 3.4.

Таблица 3.3

ITunt		Tentemblible	penn enc			Junder	лда С	n c
<i>Е</i> _{<i>i</i>} , кэВ	$p_{i}, \%$	нуклид	<i>Е</i> _{<i>i</i>} , кэВ	$p_i, \%$	нуклид	<i>Е</i> _{<i>i</i>} , кэВ	<i>p</i> _{<i>i</i>} , %	нуклид
92,4	2,8	²³⁴ Th	89,9	3,56	²³⁵ U	143,7	10,96	²³⁵ U
92,8	2,8	²³⁴ Th	93,3	5,81	²³⁵ U	163,3	5,08	²³⁵ U
1001,3	0,84	^{234m} Pa	105	2,69	²³⁵ U	185,7	57,2	²³⁵ U

Наиболее интенсивные рентгеновские и у-линии нуклидов ряда ²³⁸U и ²³⁵U

Таблица 3.4

Результаты обработки спектра диоксида обедненного урана

			11 11 1	71
N⁰	канал, п	<i>Е</i> _{<i>i</i>} , кэВ	нуклид	<i>I_{f,i}</i> , имп/с
1				
2				

4. Набор спектра фона

Спектр фона набирается в течение 12-24 часов непосредственно перед выполнением задачи. Студенты получают массив данных и обрабатывают спектр фона. Результаты определения площади фотопиков в спектре фона ($I_{ff,i}$) заносят в таблицу 3.5, аналогичную табл. 3.4 (без указания радионуклида).

5. Расчет активности и изотопного соотношения ²³⁸U/²³⁵U

5.1. Используя данные табл. 3.4 и табл. 3.5, определяют площадь пиков ППЭ спектра препарата урана за вычетом площади фотопиков на соответствующем участке спектра фона: $I_i = (I_{f,i} - I_{ff,i})$.

5.2. Используя полученную зависимость ε_f от E (3.10), определяют коэффициенты регистрации $\varepsilon_{f,i}$ для квантов E_i , испускаемых препаратом урана. Вычисляют (по каждой линии спектра), согласно (3.9), и записывают в табл. 3.6 абсолютную активность A_i радионуклидов.

Таблица 3.6

Абсолютная активность радионуклидов в препарате диоксида обедненного урана

No	<i>Е</i> _{<i>i</i>} , кэВ	Радионуклид	$p_i, \%$	$\epsilon_{f,i}$	$(I_{f,i}-I_{ff,i}),$ имп/с	<i>А_i</i> , Бк
1						
2						

5.3. На основании полученных значений активности ²³⁵U и ²³⁴Th рассчитывают изотопное соотношение ²³⁵U и ²³⁸U в препарате, используя основной закон радиоактивного распада (²³⁴Th - дочерний нуклид ²³⁸U).

3.3. Идентификация радионуклидов и определение их абсолютной активности методом сцинтилляционной гамма-спектроскопии

Цель работы

Практическое ознакомление с аппаратурой для сцинтилляционной гаммаспектроскопии и программами получения и обработки гамма-спектров. Качественное и количественное определение γ -излучающих радионуклидов в объемных образцах.

Оборудование и препараты

Сцинтилляционный гамма-спектрометр (детектор – NaI(Tl)); набор образцовых стандартных гамма-спектрометрических источников (ОСГИ); контрольный препарат.

Выполнение работы

1. Спектры фона и эталонных источников

Проводят измерение фона, а также последовательные измерения препаратов ОСГИ (²⁴¹Am, ²²Na, ¹³⁷Cs, ⁶⁰Co). Для этого стандартный (эталонный) источник помещают на сцинтилляционный кристалл, находящийся в свинцовом домике, и вместе с преподавателем устанавливают параметры работы спектрометра: напряжение на ФЭУ, коэффициент усиления, время набора спектра. Каждый спектр, в том числе фона, набирают в течение 5 минут.

Файлы спектров с расширением *.sps (в имени файла указывается наименование радионуклида или объекта съемки, а также номер спектрометра, например – Am241_2.sps) сохраняют в специальной папке с указанием номера группы.

2. Обработка спектров и калибровка спектрометра по энергии и эффективности

С помощью специальной программы преобразуют полученные файлы (*.sps) в текстовые (*.txt), которые должны содержать два столбца цифр: первый – номер канала, второй – число импульсов, накопленных в этом канале. Эти данные импортируют в одну из программ обработки спектров (Origin, Excel и др.), с помощью которой учитывают вклад фоновых импульсов в спектры эталонных источников. Дополнительная нормировка при вычитании фона не нужна, т.к. время набора эталонных спектров и фона одинаково. Если после вычитания фона число импульсов в некоторых каналах окажется отрицательным, это число заменяют на ноль.



Рис. 3.3.1. Спектр эталонного источника

Нормируют число импульсов в каждом канале на время набора (5 мин). Вид спектра после этих операций представлен на рис. 3.3.1.

2.1. Обработка спектров в программе Origin

Определять положение и площадь пиков в спектрах ОСГИ можно как вручную, так и с помощью специальных программ. Для автоматической обработки некоторые спектры необходимо предварительно сгладить. Меню: Analysis=>Signal Processing=>Smooth, Method – FFT filter (рис. 3.3.2a,б). Результат сглаживания представлен на рис. 3.3.3.

File Edit View Graph Data Analysis	Gadgets Tools Format Wine	Sgral Processing: smooth
Statistics Mathematics Mathematics Data Manipulation Bring Signal Processing Signal Processing <last used=""> Peaks and Baselin Open Dialog 1 Smoothi <last used=""> 2 Smoothi <last used=""> 2 Smoothi <last used=""> 4 Linear Fit: <last used=""> 4 Linear Fit: <last used=""> 5 FFT Filters: <lastal></lastal></last></last></last></last></last></last>	Image: Second	Dialog Theme - > Periode Description Periode - - Reconfiguration - - - Bingot (Seconfiguration) - - Priority - - - Bingot (Seconfiguration) - - Bingot (Seconfiguration) - - Bingot (Seconfiguration) - - Bingot (Seconfiguration) - -
§ Multiple Peak Fit: <last used=""> 2 Multiple Peak Fit: <default> 8 Interpolate</default> 9 Nonlinear Curve Fit: <last used=""> 10 Nonlinear Curve Fit: <default></default></last></last>	Cgherence Scrrelation Hilbert Transform [Invelope Decimation	Ado Proview Proview OK Careel 4

Рис. 3.3.2. Путь к инструменту сглаживания (а) и вид инструмента сглаживания (б)



Полученный сглаженный спектр обрабатывается с помощью встроенного инструмента для нахождения пиков – меню Gadgets => Quick Peaks (рис. 3.3.4).

номер канала Рис. 3.3.3. Результат сглаживания спектра

	Quick Fit		Di	alog Then	ne				•	1
	Quick <u>P</u> eaks		D	escription	Palce a	rectangle or	to the pl	ot to find pe	aks	1
	<u>Rise Time</u>		Ľ		,					11
1	<u>C</u> lluster		l la	HUI Box	Baseline	Find Peak	Alea	Output to	Quantities	r II
	Statistics +		Ш	⊟ X Sc	ale					11
1-	Differentiate		11	Fro	m			200		11
	Integrate	1	11	To				700		11
	Internolate		ш	Fixe	ed(Prevent	moving by P	101)			18
-	nileihoiate		ш	Show	/ Tool Na	me				18
	EFT		ш	Show N	umber of	Peaks on	Center	·Top 🔽		11
	1 Quick Peaks: <last used=""></last>		Ш	Fill Colo	¢				Auto	11
	2 Quick Peaks: <default></default>		I L					_		
	3 Quick Fit: Peak - Gauss		1							
	4 Interpolate: < default>							OK	Cancel	

Рис. 3.3.4. Путь к инструменту определения параметров пиков (а) и его вид (б)

Нажмите «OK». На экране появится окно поиска пиков (рис. 3.3.5 а). При нажатии на треугольную стрелку вверху этого окна появляется дополнительное меню с настройками (рис. 3.3.5 б).



Рис. 3.3.5. Окно поиска пиков (затененный прямоугольник) (а) и меню дополнительных параметров поиска пика (б)

В этом меню измените набор данных (помечен галочкой) с исходного спектра на сглаженный спектр – пункт меню «Change Data» (рис. 3.3.6). При этом количество найденных пиков должно измениться. При выборе пункта «Preferences» в меню с настройками (рис. 3.3.5 б) появляется основное окно инструмента поиска пиков.



Рис. 3.3.6. Выбор исходных данных для поиска пиков

Пик помечается серой заливкой. Число над ним показывает положение максимума. Варьируя ширину окна, добейтесь оптимального положения базовой линии и формы пика (рис. 3.3.7а). Вид базовой линии можно изменить во вкладке «Baseline» инструмента поиска пиков (рис.3.3.5б). Метод определения базовой линии выбирается в выпадающем списке «Method». По умолчанию базовая линия определяется по второй производной (2nd Derivative). Параметры сглаживания оказывают существенное влияние на вид базовой линии. На рис. 3.3.7б приведена базовая линия при следующих параметрах сглаживания: Threshold – 0.1, Maximum Anchor Points – 16, Connect Method – Spline.

Выберите пункт «New Output» в меню настроек поиска пиков (рис.3.3.5б). При этом будут показаны параметры каждого пика: его положение (Peak X), площадь (Peak Area), высота над базовой линией (Height) и ширина на половине высоты (FWHM). Дополнительные результаты обработки спектра можно выбрать во вкладке «Quantities» инструмента поиска пиков (рис. 3.3.4б). Во вкладке «Output to» можно установить, куда будет направлена информация о параметрах пика. Во вкладке «Area» (в выпадающем списке «Integrate from»)можно выбрать, будет ли площадь пика (общее число импульсов, накопленных в каналах спектрометра, соответствующих этому пику) определяться от базовой линии (Baseline) или от 0 (Y=0). В первом слу-
чае будет измерена величина N_p , во втором – (N_p+N_b) . Для расчета погрешности определения площади пика необходимы оба значения. Для завершения обработки пика нажмите на крест в правом верхнем углу окна поиска пиков (рис. 3.3.7).



Рис. 3.3.7. Пик при различных параметрах проведения базовой линии

2.2. Калибровка спектрометра по энергии и эффективности

Для калибровки спектрометра используют данные из паспорта комплекта ОСГИ: энергии у-квантов, их выход на распад и активности эталонных радионуклидов, которые необходимо пересчитать на момент проведения съемки спектров.

Для калибровки спектрометра по энергии в каждом спектре стандартных источников определяют номер канала, отвечающий центру пика полного поглощения энергии. Этим каналам присваивают соответствующие паспортные значения E_{γ} и проводят линейную аппроксимацию зависимости энергии от номера канала спектрометра *n*:

$$E_{\gamma} = a + b \cdot n$$

На рис. 3.3.8 представлена типичная зависимость эффективности регистрации у-

квантов по пику ППЭ (ε_f) от их энергии (E_{γ}). Для построения этого графика используют соотношение:

$$\varepsilon_f = N_p / (A \cdot t \cdot p),$$

где N_p – площадь пика за вычетом базовой линии (имп.), A – активность препарата ОСГИ на данный момент времени (Бк), t – время измерения (с), p – выход на распад. Поскольку эффективность сильно зависит от энергии, можно строить калибровочную



зависимость в логарифмических координатах. Обратите внимание на различие калибровок для полупроводникового (рис. 3.3, стр. 30) и сцинтилляционного детекторов (рис. 3.3.8).

3. Идентификация радионуклида и определение его активности в контрольном препарате

Получают у преподавателя контрольный препарат и набирают его спектр в течение 300 секунд. Обработку полученных данных проводят по той же схеме, что и для эталонных препаратов ОСГИ.

Последовательность действий, позволяющих идентифицировать радионуклид, изложена на стр. 31 (п. 3.1.5). Контрольные препараты содержат, как правило, только один радионуклид, и для его идентификации достаточно воспользоваться литературными данными из таблицы П.1. В более сложных случаях для определения радионуклидного состава препарата следует использовать радиоизотопную базу данных, например, <u>http://nucleardata.nuclear.lu.se/Database/nudat/</u>

Абсолютная активность контрольного радионуклида (A) вычисляется по формуле $A = N_p / (\varepsilon_f t \cdot p)$

Для определения A (Бк) необходимо знать площадь (N_p , имп.) наиболее интенсивных пиков контрольного спектра, эффективность регистрации (ε_f) соответствующих γквантов (зависимость ε_f от E_γ), выход (p) этих квантов на распад (табличное значение) и время набора спектра (t, с). Относительная погрешность измерения площади пика $\delta(N_p)$ определяется так:

$$\delta(N_p) = u_{\gamma} \frac{\sqrt{N_p + N_b}}{N_p}$$

 $u_{\gamma} = 1,96$ – квантиль нормального распределения для вероятности 0,95.

РАБОТА 4. ДОЗИМЕТРИЯ ИОНИЗИРУЮЩИХ ИЗЛУЧЕНИЙ

4.1. Радиационная безопасность и основные понятия дозиметрии

Характер взаимодействия ионизирующего излучения с веществом зависит от вида, энергии частиц (фотонов), а также от свойств поглощающего материала. Излучение, состоящее из заряженных частиц, является *непосредственно ионизирующим*. Альфа-частицы расходуют практически всю кинетическую энергию при неупругих столкновениях с электронами среды, приводящих к ионизации и/или возбуждению атомов и молекул. В случае β -частиц реализуются два механизма потерь энергии: 1) неупругое взаимодействие (ионизационные потери), 2) преобразование части кинетической энергии в электромагнитное тормозное излучение (радиационные потери). Средняя энергия спектров β -частиц подавляющего числа радионуклидов меньше 1 МэВ. Для таких частиц радиационные потери не превышают 10 % в любых средах, а при поглощении в лёгких материалах (воздух, биологическая ткань и т.п.) - пренебрежимо малы (например, в воде - менее 0,5 %).

Механизмы передачи энергии рентгеновского или γ-излучения веществу (фотоэффект, комптоновское рассеяние и образование пар) достаточно подробно рассмотрены выше (см. раздел 3.1). Ионизирующее действие фотонного излучения обусловлено электронами (позитронами), появляющимися в результате этих процессов взаимодействия фотонов с веществом. Поэтому фотонное излучение называется косвенно ионизирующим.

В основе биологического действия ионизирующего излучения лежат процессы ионизации (возбуждения) атомов (молекул) клеток облучаемого организма. Передача энергии частиц (фотонов) электронам облучаемой среды приводит к образованию ионизированных или возбужденных молекул, последующему разрушению части таких молекул и к появлению химически активных радикалов. В процессы, индуцированные свободными радикалами, вовлекаются многие сотни и тысячи молекул, не затронутых излучением (даже при смертельной для человека дозе излучения ионизация и первичные радиационные изменения затрагивают лишь 10^{-5} % молекул облучённого организма). На следующем этапе воздействия излучения (биологическом) происходят функциональные изменения в клетках или их гибель, что приводит в свою очередь к нарушениям функций как отдельных органов, так и организма в целом.

В радиационной защите рассматриваются два вида вредных для здоровья человека эффектов. Высокие дозы излучения вызывают *детерминированные эффекты* (вредные тканевые реакции), которые проявляются после превышения некоторого дозового порога и, как правило, через несколько дней (часов) после облучения (эритема, лучевая болезнь); степень тяжести возрастает с увеличением дозы. Как высокие, так и низкие дозы могут вызвать *стохастические эффекты* (онкологические или генетические заболевания), которые могут наблюдаться в виде статистически достоверного увеличения выхода этих эффектов в течение долгого времени после самого облучения. Практическая система радиационной защиты основывается на *гипотезе* о том, что при малых дозах (когда исключены детерминированные эффекты¹), увеличение дозы над уровнем естественного радиационного фона приводит к прямо пропорциональному увеличению вероятности развития рака или наследственных эффектов, свя-

¹ В диапазоне поглощённых доз до 100 мГр нет таких тканей, в которых бы развились клинически выраженные функциональные нарушения.

занных с облучением. Эта модель зависимости "доза - эффект", полученная экстраполяцией эпидемиологических данных, наблюдавшихся в диапазоне средних и высоких доз, считается радиобиологически наиболее оправданным предположением, на котором базируются нормы безопасности, и называется *линейной беспороговой моделью* (ЛБП моделью)². Воздействие ионизирующего излучения рассматривается как дополнительное к существующему спонтанному воздействию канцерогенных и мутагенных факторов различной нерадиогенной природы. При этом радиогенные заболевания неотличимы от спонтанных, что чрезвычайно затрудняет выявление связи между малой дозой облучения и выявленным заболеванием.

Пределы облучения персонала устанавливаются таким образом, чтобы выход стохастических эффектов был бы ниже неприемлемых уровней, а тканевые реакции были бы полностью исключены. Национальные нормативы разрабатываются на основе рекомендаций Международной комиссии по радиологической защите (МКРЗ) и фактически имеют силу закона. В России в настоящее время действуют "Нормы радиационной безопасности (НРБ-99/2009)" [6].



Рис. 4.1. Связь между дозиметрическими величинами

Современная система дозиметрических величин (см. рис. 4.1), сформировавшаяся как результат развития радиобиологии, дозиметрии и радиационной безопасности при координирующей роли МКРЗ, включает:

- физические дозиметрические величины, являющиеся мерой воздействия ионизирующего излучения на вещество;

- нормируемые дозиметрические величины, являющиеся мерой ущерба (вреда) от воздействия излучения на человека;

- операционные дозиметрические величины, являющиеся непосредственно определяемыми в измерениях величинами, предназначенными для оценки нормируемых величин при радиационном контроле.

Физические дозиметрические величины

Основной физической величиной, принятой в дозиметрии для оценки меры действия ионизирующего излучения, является **поглощённая** доза (D_n), определяемая как отношение средней энергии dE, переданной ионизирующим излучением веществу в элементарном объеме, к массе dm вещества в этом объеме:

² Вероятностная природа стохастических эффектов и ЛБП модель не позволяют чётко разграничить понятия "безопасный" и "опасный", что создает некоторые трудности в объяснении и контроле радиационных рисков. Важным условием организации работы с источниками ионизирующего излучения, вытекающим из ЛБП модели, является то, что некий конечный риск, каким бы малым он ни был, должен быть обязательно учтён, а уровень защиты должен быть установлен так, чтобы этот риск считался приемлемым.

$$D_n = \frac{dE}{dm} \tag{4.1}$$

Единицей поглощённой дозы в системе СИ является Дж/кг, имеющей специальное наименование **грей** (**Гр**); 1 Гр = 1 Дж/кг. Внесистемная единица - **рад** (от англ. radiation absorbed dose). Соотношение единиц: 1 рад= 100 эрг/г = 0,01 Дж/кг = 0,01 Гр.

Понятие "поглощённая доза" применимо к любым видам излучения и к любым облучаемым материалам. Для оценки воздействия на среду косвенно ионизирующих излучений используется также понятие **керма**³. Керма (K) – отношение суммы кинетических энергий dE_{tr} всех заряженных ионизирующих частиц, образующихся под действием косвенно ионизирующего излучения в элементарном объеме, к массе вещества dm в этом объеме.

$$K = \frac{dE_{tr}}{dm} \tag{4.2}$$

Единица кермы – грей – совпадает с единицей поглощённой дозы.

Керма включает в себя полную энергию вторичных заряженных частиц, одна часть которой расходуется на ионизацию (возбуждение) атомов и молекул (т. е. участвует в формировании поглощённой дозы косвенно ионизирующего излучения $D_{n,\kappa}$), а другая (*B*) - тратится на тормозное излучение. В случае фотонного излучения при условии электронного равновесия⁴:

$$K = D_{n,\kappa} + B$$
 и $D_{n,\kappa} = K (1 - g),$ (4.3)

где g = B/K - доля энергии вторичных заряженных частиц, преобразованной в энергию тормозного излучения.

Если потерей энергии на тормозное излучение можно пренебречь, то поглощённая доза равна керме (такое состояние называется абсолютным электронным равновесием).

Ионизация воздуха под воздействием рентгеновского и γ -излучений явилась первым физическим эффектом, который сопоставили с биологическим действием излучения, а первой мерой ионизационного действия фотонного излучения стала экспозиционная доза - количественная характеристика поля ионизирующего излучения, основанная на величине ионизации сухого воздуха ⁵. Экспозиционная доза (X) определяется как отношение суммарного заряда всех ионов одного знака, созданных в воздухе излучением при полном торможении вторичных электронов и позитронов, образующихся в элементарном объёме (dQ), к массе воздуха в этом объёме (dm): X = dQ/dm. В системе СИ единицей экспозиционной дозы является кулон на килограмм (Кл/кг). Внесистемная единица - рентген (Р) - экспозиционная доза фотонного излу-

³ Сокращение термина «kinetic energy released in matter».

⁴ Электронное равновесие - состояние взаимодействия излучения с веществом, при котором энергия излучения, поглощённая в некотором объеме вещества, равна суммарной кинетической энергии ионизирующих частиц, образованных в том же объеме. Электронное равновесие возможно при облучении фотонами неограниченно протяжённой, однородной по атомному составу и плотности среды, например, воздуха.

⁵ В настоящее время нет принципиальной необходимости в использовании этой физической дозиметрической величины, однако иметь представление о ней полезно в связи с широкой распространённостью приборов, откалиброванных в единицах мощности экспозиционной дозы, а также в связи с тем, что ряд практических задач удобнее решать без перехода к операционным величинам.

чения, при которой в 0,001293 г воздуха (масса 1 см³ воздуха при 0°С и давлении 101,3 кПа) образуются ионы, несущие $3,336 \cdot 10^{-10}$ Кл заряда каждого знака. 1 Р = $2,58 \cdot 10^{-4}$ Кл/кг.

В условиях электронного равновесия экспозиционную дозу можно рассматривать как *ионизационный эквивалент* кермы (или поглощённой дозы) фотонного излучения в воздухе. Заряд электрона равен $1,602 \cdot 10^{-19}$ Кл. Следовательно, при дозе в 1 Р в 1 см³ воздуха образуется $2,08 \cdot 10^9$ пар ионов. Принимая среднюю энергию образования пары ионов в воздухе равной 33,85 эВ (1 эВ = $1,602 \cdot 10^{-19}$ Дж = $1,602 \cdot 10^{-12}$ эрг), можно установить соотношение между кермой и экспозиционной дозой: 1 Р эквивалентен 0,113 эрг/см³ = $8,73 \cdot 10^{-6}$ Дж/г = 0,873 рад = 0,00873 Гр.

Доза излучения с течением времени накапливается, но поток излучения при этом может изменяться. Поэтому действие излучения на вещество оценивается также величиной **мощности дозы** (**P**) - дозой излучения за единицу времени (с, мин, ч и т.п.) Аналогично можно говорить о мощности кермы.

Нормируемые дозиметрические величины

Понятие "поглощённая доза" предполагает, что её значение может быть определено в каждой точке вещества (чтобы подчеркнуть это свойство, иногда поглощённую дозу D_n называют "поглощённой дозой в точке"). Для практических целей поглощённые дозы часто усредняются по большим объёмам ткани. Предполагается, что при облучении в малых дозах среднее значение поглощённой дозы в определённом органе или ткани может быть соотнесено с радиационным вредом от стохастических эффектов во всех частях этого органа или ткани с достаточной для целей радиационной защиты точностью.

Средняя поглощённая доза в органе или ткани Т (D_T) определяется как:

$$D_{\rm T} = \frac{1}{m_{\rm T}} \int_{m_{\rm T}} D_n dm = \frac{E_{\rm T}}{m_{\rm T}}$$
(4.4)

где *m*_T - масса органа или ткани, *D_n* - поглощённая доза в элементе массы *dm*, *E*_T - средняя энергия, переданная массе рассматриваемого органа или ткани.

Единица средней поглощённой дозы в органе или ткани - **грей** - совпадает с единицей поглощённой дозы. Значение *D*_T иногда называют "дозой на орган".

Для того чтобы связать дозу излучения и радиационный риск (вред), необходимо учитывать различия в биологической эффективности излучений различного качества, а также различия в чувствительности органов и тканей к воздействию ионизирующего излучения.

Эквивалентная доза в органе или ткани Т (*H*_T) определяется как:

$$H_{\rm T} = \sum_{\rm R} w_{\rm R} \cdot D_{\rm T,R},\tag{4.5}$$

где $D_{T,R}$ – поглощённая доза от излучения типа R, усредненная по ткани или органу T, а w_R – взвешивающий коэффициент ⁶ для излучения типа R. Суммирование выполняется для всех видов рассматриваемых излучений.

⁶ Значения взвешивающего коэффициента излучения w_R основаны на экспериментальных данных по относительной биологической эффективности (ОБЭ) различных видов излучения при облучении в малых дозах. Значения ОБЭ задаются в виде отношения поглощённых доз двух видов излучения при условии, что эти поглощённые дозы приводят к одинаковому биологическому эффекту в идентичных условиях облучения (значение дозы референтного излу-

Единицей эквивалентной дозы H_T является Дж/кг, имеющей специальное название **зиверт** (**3**в). Для фотонов, электронов и β-частиц $w_R = 1$ **3**в/Гр; для нейтронов (в зависимости от энергии) w_R принимает значения от 2,5 до 20; для α-частиц $w_R = 20$ **3**в/Гр.

Эффективная доза (Е) определяется как взвешенная сумма эквивалентных доз:

$$E = \sum_{\mathrm{T}} w_{\mathrm{T}} \cdot H_{\mathrm{T}} = \sum_{\mathrm{T}} w_{\mathrm{T}} \sum_{\mathrm{R}} w_{\mathrm{R}} \cdot D_{\mathrm{T,R}}, \qquad (4.6)$$

где $w_{\rm T}$ – взвешивающий коэффициент ткани T и $\sum_{T} w_{T} = 1$.

Суммирование производится по всем органам и тканям организма человека, считающимся чувствительными к индукции стохастических эффектов. Значения w_T выбираются так, чтобы представить вклады отдельных органов и тканей в суммарный радиационный вред от развития стохастических эффектов (например, для лёгких и красного костного мозга $w_T = 0,12$, а для кожи $w_T = 0,01$). Единица эффективной дозы - **зиверт** - совпадает с единицей эквивалентной дозы.

Согласно рекомендациям МКРЗ эквивалентная доза предназначена для оценки риска развития радиогенных заболеваний с учетом биологической эффективности излучения, а эффективная доза - для выражения значения предела дозы и характеристики дозы облучения человека с целью демонстрации соблюдения норм безопасности.

Операционные дозиметрические величины

Прямое измерение нормируемых величин невозможно, поэтому они не могут быть использованы непосредственно в радиационном контроле. Для практических целей введены операционные величины, которые, с одной стороны, однозначно определяются через физические характеристики поля излучения, а с другой стороны, максимально приближены к нормируемым величинам.

В определении операционных величин внешнего облучения ⁷ используется эквивалент дозы (H), который равен поглощённой дозе в точке (D_n), умноженной на средний коэффициент качества для излучения (\overline{Q} , Зв/Гр), воздействующего на ткань в данной точке (этот коэффициент - характеристика биологической эффективности излучения, основанная на плотности ионизации вдоль треков заряженных частиц):

$$H = \overline{Q} \cdot D_n, \tag{4.7}$$

Единицей эквивалента дозы также является зиверт. Внесистемной единицей *H* является бэр, 1 Зв = 100 бэр.

Понятие "эквивалент дозы" (dose equivalent), используемое с конца 1950-х гг., в отечественной практике переводили как "эквивалентная доза" (хотя точный перевод - именно "эквивалент дозы"). Несогласие не привлекало внимания, потому что вплоть

чения, в качестве которого, как правило, используется рентгеновское с граничной энергией 200 кэВ, делится на соответствующее значение дозы излучения R, вызывающего эффект того же уровня, что и референтное излучение).

⁷ Внешнее облучение - облучение от источника, находящегося вне тела человека. Противоположный по значению термин: внутреннее облучение - облучение от источника, находящегося внутри тела человека.

до 1990 г. величина *H* использовалась и как нормируемая величина, и как величина, используемая в радиационном контроле.

В 1990 г. МКРЗ в качестве нормируемой величины ввела новое понятие - "эквивалентная доза в органе или ткани" (equivalent dose in organ or tissue) (H_T) (коротко - "эквивалентная доза"), при этом «эквивалент дозы» не был выведен из оборота и продолжает использоваться для операционных величин. Поэтому при работе с отечественной учебной и нормативной литературой прежних лет издания следует обращать особое внимание на то, какое именно понятие имеется в виду.

Эквивалентная доза (equivalent dose) и эквивалент дозы (dose equivalent) принципиально отличаются. Первая величина всегда относится к какому-либо органу или ткани тела человека. Вторая - относится к точке внутри объекта.

Операционной величиной внешнего облучения для радиационного контроля рабочих мест, помещений и окружающей среды (в целях группового дозиметрического контроля) принят амбиентный эквивалент дозы ($H^*(d)$) - эквивалент дозы, который был бы создан в шаровом фантоме МКРЕ⁸ на глубине d (мм) от поверхности по диаметру, параллельному направлению излучения, в поле излучения, идентичном рассматриваемому по составу, флюенсу и энергетическому распределению, но мононаправленном и однородном. Амбиентный эквивалент дозы используется для характеристики поля излучения в точке, совпадающей с центром шарового фантома. Эффективной дозе внешнего облучения соответствует амбиентный эквивалент дозы на глубине d = 10 мм ($H^*(10)$). Мощности эффективной дозы внешнего облучения соответствует измеряемая современными приборами мощность амбиентного эквивалента дозы (МАЭД), обозначаемая как $\dot{H}^*(10)$.

Индивидуальный дозиметрический контроль (мониторинг) внешнего облучения обычно осуществляется с помощью индивидуальных дозиметров, носимых на поверхности тела. Операционной величиной, установленной для такого мониторинга, является индивидуальный эквивалент дозы ($H_p(d)$), который равен эквиваленту дозы в мягкой биологической ткани на глубине d (мм) под рассматриваемой точкой на поверхности плоского фантома. Для контроля эффективной дозы внешнего облучения глубина d также принята равной 10 мм (величина $H_p(10)$ соответствует эффективной дозе).

Использование фантомов (как шарового, так и плоского) позволяет напрямую обеспечить учёт возмущения реального поля излучения телом человека.

Поскольку **зиверт** - единица измерения нескольких дозиметрических величин, следует обращать внимание на то, о какой величине – операционной или нормируемой идет речь в рассматриваемом случае.

Система оценки доз внутреннего облучения основана на расчёте поступления радионуклида в организм человека. Поступление можно оценить либо посредством прямых измерений (например, мониторинг излучения, исходящего с поверхности тела человека или от отдельных органов или тканей), либо с помощью косвенных измерений (например, измерений мочи), или по результатам измерений проб окружающей среды (например, определения объёмной активности радионуклида в воздухе рабочего помещения) с последующим применением биокинетических моделей. Исходя из

⁸ МКРЕ - Международная комиссия по радиационным единицам и измерениям. Шаровой фантом МКРЕ - шар диаметром 30 см из тканеэквивалентного материала с плотностью 1 г/см³.

значения такого поступления, с помощью справочных дозовых коэффициентов (доза на единицу поступления, Зв/Бк), рекомендованных МКРЗ для большого числа радионуклидов, рассчитываются значения эквивалентной или эффективной дозы.

Значения эффективной дозы для внешнего и внутреннего облучения могут быть сравнены непосредственно.

Пределы доз; допустимый уровень загрязнения поверхностей

В НРБ-99/2009 [6] выделяются три категории облучаемых лиц. Персонал - лица, непосредственно работающие с техногенными источниками ионизирующего излучения (группа А) или находящиеся по условиям работы в сфере их воздействия (группа Б). К категории "население" относятся все лица, включая персонал вне работы с источниками ионизирующего излучения.

Для персонала групп А, Б (эта группа включает студентов старше 16 лет, проходящих профессиональное обучение с использованием источников излучения) и населения установлены следующие основные пределы годовой эффективной дозы техногенного облучения: 20, 5 и 1 мЗв соответственно.

Пределы доз не включают в себя дозы от природного и медицинского облучения. Для сравнения, мировая годовая среднедушевая эффективная доза от естественных источников (фон) составляет 2,4 мЗв (в России - около 3 мЗв).

Работы с источниками должны быть спланированы так, чтобы было обеспечено непревышение основных пределов доз. Для расчётов с целью нормирования используются так называемые *стандартные условия облучения*, в том числе время облучения в течение календарного года, принятое равным 1700 ч для персонала группы А и 2000 ч - для персонала группы Б. Например, для персонала группы А предельно допустимая МАЭД $\dot{H}^*(10)_{no}$ на рабочем месте составляет 20 мЗв/1700 ч ≈ 12 мкЗв/ч (72 мкЗв в день при 6-часовом рабочем дне). Для кистей рук предел увеличен до 300 мкЗв/ч, поскольку основной предел годовой эквивалентной дозы в кистях и стопах составляет 500 мЗв.

При работе с радиоактивными веществами в открытом виде нельзя исключать возможность загрязнения незащищённых участков тела, перчаток, спецодежды лабораторного оборудования и т.п. Если уровень загрязнения (плотность потока частиц) превышает предельно допустимый (см. работу 5, табл. 5.1), проводят дезактивацию поверхностей.

Доза от внешнего источника β-излучения

При работе с внешними источниками β -излучения как правило рассчитывают интегральную поглощённую дозу в слое полного поглощения. Бета-излучение имеет непрерывный спектр и при расчете используют значение средней энергии \overline{E} (обычно принимают $\overline{E} = 0,4 E_{\beta,max}$); более точные значения \overline{E} для радионуклидов приведены, например, в [8, 9]). Необходимо также отметить, что для биологической ткани потери энергии, обусловленные отражением β -частиц или преобразованием их энергии в тормозное излучение, пренебрежимо малы.

Если на поверхность площадью *s* (в см²) падает поток β -частиц, имеющих максимальную энергию $E_{\beta,max}$ (в МэВ) и максимальный пробег R_{max} (в г/см²), то энергия этих частиц практически полностью поглощается в слое биологической ткани массой $m=s \cdot R_{max}$. При плотности потока F_{β} (частиц/см²·с) мощность поглощенной дозы $P_{n,\beta}$ равна:

$$P_{n,\beta} = \frac{F_{\beta} \cdot \overline{E} \cdot s}{s \cdot R_{max}} = \frac{F_{\beta} \cdot 0.4E_{\beta,max}}{R_{max}} \left(\frac{M \Im B}{c \cdot c}\right) \quad \text{или} \quad P_{n,\beta} = 1.602 \cdot 10^{-10} \cdot \frac{F_{\beta} \cdot 0.4E_{\beta,max}}{R_{max}} \left(\frac{\Gamma p}{c}\right) \tag{4.8}$$

Плотность потока $F_{\beta,1}$, создающего дозу мощностью в 1 Гр/с, согласно (4.8), равна:

$$F_{\beta,1} = 6,25 \cdot 10^9 \; \frac{R_{max}}{0,4E_{\beta,max}} \tag{4.9}$$

Выражение (4.9) может быть использовано для оценки мощности дозы β -излучения (в Гр/с) известного спектрального состава при регистрации его приборами, откалиброванными в единицах скорости счета (*I*, имп/с). $P_{\Pi,\beta} = I / (S_{\partial} \cdot \varphi \cdot F_{\beta,1})$, где φ - коэффициент регистрации, S_{∂} - площадь детектора в см².

Для точечного источника активностью A (в Бк), находящегося на расстоянии r (в см) от облучаемого объекта, учитывается ослабление потока β -частиц слоем воздуха, которое подчиняется, в первом приближении, экспоненциальному закону. Поглощенная доза, создаваемая источником со сложным составом излучения, равна:

$$D_{n,\beta} = 1,602 \cdot 10^{-10} \cdot \frac{At}{4\pi r^2} \sum_{i} \frac{p_i(0,4E_{\beta,max,i})e^{-\mu_i p r}}{R_{max,i}} \quad (\Gamma p)$$
(4.10)

где ρ - плотность воздуха (при н.у. 0,00129 г/см³); *t* - время (с); для *i*-ой группы частиц: p_i - доля частиц на распад, $E_{\beta,max,i}$ - максимальная энергия (МэВ), $R_{max,i}$ - максимальный пробег (г/см²), μ_i - коэффициент ослабления в воздухе (см²/г).

Значения R_{max} и μ для алюминия приведены в табл. П.4. При расчетах, не нуждающихся в особой точности, эти значения можно использовать для оценки поглощённой дозы в биологической ткани и соответствующего эквивалента дозы (средний коэффициент качества \overline{Q} для β -излучения принят равным единице).

Доза от внешнего источника ү-излучения

Формирование поглощённой дозы фотонного, например, γ -излучения происходит в два этапа. На первом этапе взаимодействия с веществом часть энергии фотонов преобразуется в кинетическую энергию электронов (позитронов) E_{tr} , а часть - в энергию вторичных (преимущественно комптоновских) фотонов и не участвует в создании поглощённой дозы. Поэтому полный коэффициент ослабления γ -излучения μ можно представить как сумму коэффициента передачи энергии μ_{tr} , характеризующего передачу энергии фотонов заряженным частицам, и коэффициента μ_s , характеризующего вероятность преобразования первичного фотонного излучения во вторичное.

Пусть поток фотонов с энергией E_{γ} (МэВ) и плотностью F_{γ} (фотон/с·см²) проходит в течение t (с) через слой среды протяженностью Δl (см), площадью поперечного сечения s (см²) и плотностью ρ (г/см³). Тогда, с учетом экспоненциального закона ослабления потока, энергия, преобразованная в кинетическую энергию электронов (позитронов) в объеме массой $\Delta m = s \cdot \Delta l \cdot \rho$,

равна:

При $\mu_{tr}\Delta l\rho < 0,1$ справедливо

$$\Delta E_{\rm tr} = E_{\gamma} F_{\gamma} st \cdot [1 - \exp(-\mu_{tr} \Delta l\rho)].$$
$$\Delta E_{\rm tr} = E_{\gamma} F_{\gamma} st \cdot \mu_{tr} \Delta l\rho \qquad (4.11)$$

Следовательно, керма (сумма кинетических энергий, отнесённая к массе) равна:

$$K = \frac{\Delta E_{\mathrm{tr}}}{\Delta m} = E_{\gamma} F_{\gamma} \mu_{tr} t \quad (\mathrm{M} \Im \mathrm{B}/\Gamma) \quad \text{или} \quad K = 1,602 \cdot 10^{-10} E_{\gamma} F_{\gamma} \mu_{tr} t \quad (\Gamma \mathrm{p}) \tag{4.12}$$

На втором этапе, при передаче заряженными частицами кинетической энергии веществу, часть этой энергии, как отмечалось, тратится на тормозное излучение. В условиях электронного равновесия ($D_{n,\gamma} = K (1 - g)$, см. ур-е (4.3)) поглощённая доза равна:

$$D_{n,\gamma} = E_{\gamma} F_{\gamma} \mu_e t$$
 (MэB/г) или $D_{n,\gamma} = 1,602 \cdot 10^{-10} E_{\gamma} F_{\gamma} \mu_e t$ (Гр) (4.13)
= μ_{tr} (1-g) - коэффициент истинного поглощения (электронного преобразования), ха-

где $\mu_e = \mu_{tr} (1-g)$ - коэффициент истинного поглощения (электронного преобразования), характеризующий только ту часть кинетической энергии, которая расходуется на ионизацию (возбуждение) атомов и молекул (формирует поглощённую дозу)

Для фотонного излучения с энергией $E \le 3$ МэВ (т.е. для γ -излучения практически всех радионуклидов) и легкоатомных сред (воздух, вода, биологическая ткань) потери кинетической энергии заряженных частиц на тормозное излучение незначительны ($g \le 0,01$). То есть для каждой из этих сред коэффициенты передачи энергии (μ_{tr}) и истинного поглощения (μ_{e}) практически одинаковы, так же как практически совпадают значения кермы и поглощённой дозы.

Используя выражения (4.13) несложно показать, что одном и том же поле излучения (E_{γ} , F_{γ} и *t* одинаковы), поглощённая доза в биологической ткани $D_{n,\gamma}^{m\kappa}$ может быть выражена через поглощённую дозу в воздухе $D_{n,\gamma}^{6030}$:

$$D_{n,\gamma}^{m\kappa} = D_{n,\gamma}^{603\partial} \cdot \frac{\mu_{e,m\kappa.}}{\mu_{e,603\partial.}}$$
(4.14)

где $\mu_{e, m\kappa}$ и $\mu_{e, 603d}$ - массовые коэффициенты (см²/г) истинного поглощения в биологической ткани и в воздухе, соответственно (табл. П.6).

Выражение (4.13) позволяет оценить мощность поглощенной дозы $P_{n,\gamma}^{6030}$ (или мощность кермы) в воздухе по скорости счета *I* (имп/с), если для используемого детектора площадью S_{∂} (см²) известна эффективность регистрации фотонов є данной энергии E_{γ} .

$$P_{n,\gamma}^{603\partial} = \frac{I}{S_{\partial} \cdot \varepsilon} \cdot \frac{1}{F_{\gamma}} = \frac{I}{S_{\partial} \cdot \varepsilon} \cdot \frac{E_{\gamma} \cdot \mu_{e,603\partial}}{6,25 \cdot 10^9} \quad (\Gamma p/c),$$
(4.15)

где F_{γ} - плотность потока фотонов, создающего в воздухе поглощенную дозу (керму) мощностью 1 Гр/с.

Поглощенная доза (керма) в воздухе, создаваемая точечным источником моноэнергетического излучения на расстоянии r (м) за время t (с), равна:

$$D_{n,\gamma}^{603\partial} = 1,602 \cdot 10^{-13} \cdot 10^{-18} \cdot \frac{A \cdot pE_{\gamma}\mu_{e, 603\partial.}}{4\pi r^2} \cdot t = 10^{-18} \cdot \frac{A \cdot \Gamma_e}{r^2} \cdot t \quad (\Gamma p) , \qquad (4.16)$$

где 1,602·10⁻¹³ - коэффициент пересчета МэВ в Дж (Дж/МэВ), 10⁻¹⁸ - коэффициент пересчета аттогрей в грей, A - активность (Бк), E_{γ} - энергия фотонов (МэВ), p - выход фотонов с энергией E_{γ} на распад, $\mu_{e, 6030}$ - коэффициент истинного поглощения (м²/кг), Γ_{e} - керма-постоянная для γ -излучения (E_{γ}) источника (аГр·м²/(с·Бк)).

Керма-постоянная Γ_{θ} (табл. П.7 и П.8) характеризует мощность поглощённой дозы (кермы) в воздухе γ -излучения точечного источника активностью A = 1 Бк на расстоянии до точки детектирования r = 1 м. Её обычно используемая размерность -[аГр·м²/(с·Бк)], где аГр (аттогрей) равен 10⁻¹⁸ Гр.

Полная керма-постоянная для радионуклида, испускающего фотоны различных энергий $E_{\gamma,i}$ (MэB) с выходом на распад p_i и коэффициентом истинного поглощения $\mu_{e,603d,i}$ (м²/кг), равна сумме дифференциальных керма-постоянных ($\Gamma_{e,i}$)

$$\Gamma_{6} = \sum_{i} \frac{p_{i} E_{\gamma, i} \mu_{e, 6030., i} \cdot 1,602 \cdot 10^{-13} \cdot 10^{18}}{4\pi} = \sum_{i} p_{i} \Gamma_{6, i}^{*} = \sum_{i} \Gamma_{6, i} \qquad (\frac{a \Gamma p \cdot M^{2}}{B \kappa \cdot c})$$
(4.17)

где $\Gamma_{e,i}^*$ - нормализованная (т.е. рассчитанная для $p_i = 1$) дифференциальная кермапостоянная.

Используя (4.17) и данные, приведенные в табл. П.1, П.6 (или П.7), можно рассчитать, обращая при этом внимание на размерность вводимых величин, значение Γ_{e} для любых источников с известным фотонным спектром, в т.ч. непрерывным. Для радионуклидов эти значения известны, часть из них приведена в табл. П.8. Определив Γ_{e} , вычисляют, согласно (4.16), значение $D_{n,y}^{sosd}$ в точке детектирования.

При необходимости проведения расчётов через экспозиционную дозу, создаваемую точечным источником, используется гамма-постоянная Γ_9 . Она равна мощности экспозиционной дозы в Р/ч, создаваемой γ -излучением данного радионуклидного источника активностью в 1 мКи на расстоянии 1 см от источника. Ее размерность Р·см²/ч·мКи. Значения гамма-постоянной Γ_9 [P·см²/(ч·мКи)] и значения керма-постоянной Γ_6 [аГр·м²/(с·Бк)] связаны соотношением $\Gamma_9 = 0,152 \cdot \Gamma_6$ [9]. При необходимости гамма-постоянную Γ_9 источника со сложным фотонным спектром можно определить, воспользовавшись данными табл. П.6 и П.7.

$$\Gamma_{\mathfrak{H}} = 194,5\sum_{i} p_{i} E_{\gamma,i} \mu_{e,603\partial.,i} = \sum_{i} \Gamma_{\mathfrak{H},i}^{*} = \sum_{i} \Gamma_{\mathfrak{H},i} \qquad \left(\frac{P \cdot cM^{2}}{u \cdot MKu}\right)$$
(4.18)

где для фотонов с энергией $E_{\gamma,i}$ (МэВ) и выходом на распад p_i значения $\mu_{e, 6030, i}$ заданы в см²/г; $\Gamma^*_{3,i}$ - нормализованная (т.е. рассчитанная для $p_i = 1$) дифференциальная гамма-постоянная.

Экспозиционная доза D_{9} (P), создаваемая источником активностью A (мКи) на расстоянии r (см) за время t (ч):

$$D_{\mathfrak{g}} = \frac{A \cdot \Gamma_{\mathfrak{g}} \cdot t}{r^2} \tag{4.19}$$

0

Учитывая, что энергетический эквивалент рентгена равен 0,00873 Гр/Р или 0,873 рад/Р, поглощённая доза в воздухе равна:

$$D_{n,\gamma}^{sosd} = 0,00873 \cdot D_{\mathfrak{I}} \ (\Gamma p)$$
 или $D_{n,\gamma}^{sosd} = 0,873 \cdot D_{\mathfrak{I}} \ (pag)$ (4.20)

Переходя от поглощённой дозы в воздухе, рассчитанной по формулам (4.16) или (4.20), к поглощённой дозе в ткани (4.14), а затем к эквиваленту дозы (4.7) получим

$$H = \overline{Q} \cdot D_{n,\gamma}^{m\kappa} = \overline{Q} \cdot D_{n,\gamma}^{6030} \cdot \frac{\mu_{e, m\kappa.}}{\mu_{e, 6030.}}$$
(4.21)

Средний коэффициент качества \overline{Q} [Зв/Гр или бэр/рад] для γ -излучения принят равным 1, а для мягкой биологической ткани ($\rho = 1$ г/см³, $\mu_{e, m\kappa} = \mu_{e, soda}$) и для фотонов с энергией 0,04÷15 МэВ отношение $\mu_{e, m\kappa}/\mu_{e, so3d} = 1,09\pm0,03$ [9]. Поэтому практически для всех γ -излучающих нуклидов можно записать:

$$H = 1,09 \cdot D_{n,\gamma}^{6030}$$
 (Зв) или $H = 0,95 \cdot D_{3}$ (бэр) (4.22)

Амбиентный эквивалент дозы $H^*(10)$ (эквивалент дозы, создаваемый в шаровом фантоме на глубине 10 мм, моделирующем возмущение поля излучения телом человека ⁹) фактически есть произведение эквивалента дозы и коэффициента перехода (conversion coefficient), зависящего от энергии γ -излучения (в диапазоне энергий фотонов от 0,06 до 10 МэВ коэффициент перехода уменьшается с ростом энергии от 1,7 до 1,0).

Для решения практических задач используются специальные таблицы коэффициентов перехода (примеры см. в задаче 4.2), позволяющие непосредственно перейти от той или иной физической дозиметрической величины (например, воздушной кермы, полученной расчётным путём, или экспозиционной дозы, измеренной радиометрическим прибором) к операционной величине (амбиентному эквиваленту дозы $H^*(10)$) и затем сопоставить её с нормируемой величиной (эффективной дозой внешнего облучения).

Защита от излучения

Проникающая способность *а***-излучения** весьма незначительна: пробег *а*-частиц в воздухе не превышает 11 см, а в легких материалах (вода, дерево и т.п.) - 0,01 см. Следовательно, одежда, перчатки и даже лист бумаги полностью защищают от внешнего облучения. Вместе с тем, *а*-активные нуклиды, попавшие внутрь организма, представляют серьезную опасность, т.к. удельная ионизация биологической ткани *а*-частицами очень высока (на 1 мкм пробега несколько тысяч молекул). Средний коэффициент качества для *а*-излучения $\overline{Q} = 20$ (см. ур-е (4.7)). Поэтому работа с *а*-излучателями (прежде всего, с эманирующими препаратами) должна быть организована так, чтобы минимизировать возможное поступление радиоактивных газов и пыли в воздух рабочих помещений. Соответствующие химические операции проводятся в вытяжных шкафах, боксах; при необходимости используются респираторы.

Выполнение большинства экспериментов с источниками β - и γ -излучения связано с внешним облучением. При этом обычно ориентируются на дневной предельно допустимый амбиентный эквивалент дозы $H^*(10)_{nd} = 72$ мкЗв (7,2 мбэр). Используя (4.10), (4.16) или (4.19), определяют минимально допустимое расстояние от источника *r* или, при заданных параметрах *A* и *r*, оценивают время t_{nd} , в течение которого можно находиться вблизи источника ионизирующего излучения. Например, для γ -источника

⁹ Нарушение электронного равновесия вблизи раздела двух сред приводит к увеличению поглощённой дозы в приповерхностном слое фантома (тела человека) по сравнению с неограниченно протяжённой средой.

$$t_{n\partial} = \frac{H^*(10)_{n\partial} \cdot r^2}{1,09 \cdot A \cdot \Gamma_{_{\theta}}} \quad \text{(c)} \quad \text{или} \quad t_{n\partial} = \frac{H^*(10)_{n\partial} \cdot r^2}{0,95 \cdot A \cdot \Gamma_{_{\theta}}} \quad \text{(q)}$$
(4.23)

Получаемые при работе с радионуклидами дозы, как это следует из (4.10), (4.16) или (4.19), могут быть снижены за счет: 1) уменьшения активности радионуклида A и(или) времени эксперимента t (правильный выбор методики и применение высокоэффективной аппаратуры); 2) увеличения расстояния до источника r (использование простейших манипуляторов). Однако на практике нельзя безгранично уменьшать активность, время работы или увеличивать расстояние. Если «защита временем» и(или) «расстоянием» не позволяют снизить дозу до предельно допустимого уровня, устанавливают защитные экраны.

Для защиты от β -излучения применяют экраны, которые задерживают все β частицы, т. е. с толщиной $d \ge R_{max}$ (табл. П.4). При этом используются материалы с небольшим атомным номером, например, полиметилметакрилат (оргстекло). В этом случае выход фотонного «тормозного» излучения незначителен, а для поглощения собственно β -частиц большинства радионуклидов достаточно экрана толщиной несколько мм.

Фотонное излучение лучше всего ослабляется материалами с большим атомным номером и высокой плотностью. При проектировании защиты в лаборатории, как правило, решается задача определения толщины свинцового экрана, обеспечивающего заданный уровень ослабления γ-излучения. При этом надо учитывать различия в ослаблении потока фотонов в условиях «узкого» и «широкого» пучков. В геометрии «узкого» пучка детектор регистрирует только нерассеянное излучение источника. В этом случае ослабление потока фотонов и дозы подчиняется экспоненциальной зависимости:

$$D_{\nu_{3\kappa}} = D_0 \exp(-\mu d) \tag{4.24},$$

где $D_{y_{3K}}$ - доза, создаваемая узким пучком за защитным экраном толщиной d (см или г/см²), D_0 - доза в отсутствие экрана (d = 0), μ - полный коэффициент ослабления γ -излучения (см⁻¹ или см²/г) (табл. П.5).

Вычисление толщины экрана в соответствии с (4.24) всегда приводит к заниженному значению *d*. Это связано тем, что на облучаемый объект за экраном падает так называемый «широкий» пучок, в состав которого кроме первичного излучения γисточника («узкий» пучок) входит также γ-излучение, рассеянное материалом защиты и увеличивающее мощность дозы. В случае моноэнергетического излучения доза (аГр) на внутренней поверхности экрана равна

$$D_{\mu\mu\nu\rho} = D_{y_{3\kappa}} + D_{pacc} = D_0 \ e^{-\mu d} + D_{pacc} = D_0 \ e^{-\mu d} \cdot B_D = \frac{A\Gamma_e t}{r^2} \ e^{-\mu d} \cdot B_D$$
(4.25),

где A - активность источника (Бк), Γ_{e} - керма-постоянная (табл. П.7, П.8), r - расстояние от источника (м), t - время облучения в с, B_{D} - фактор накопления дозы, который зависит от энергии фотонов E_{γ} , материала защиты и толщины экрана, выраженной в безразмерных единицах μd (табл.П.9, П.10); остальные обозначения в (4.24).

Для источника, спектр которого состоит из нескольких линий:

$$D_{uup} = \frac{A \cdot t}{r^2} \sum_{i} p_i \Gamma_{e,i}^* \ e^{-\mu_i d} \cdot B_{D,i} = \sum_{i} D_{0,i} \ e^{-\mu_i d} \cdot B_{D,i}$$
(4.26),

где для компоненты спектра с энергией $E_{\gamma,i}$: p_i - выход на распад, $\Gamma_{g,i}^*$ - нормализованная дифференциальная керма-постоянная (табл. П.7), μ_i - коэффициент ослабления (табл. П.5), $D_{0,i}$ - доза, создаваемая при d = 0, $B_{D,i}$ - фактор накопления (табл.П.9, П.10).

Изменив размерности A, t, r и используя гамма-постоянную Γ_{9} , можно получить аналогичные (4.25, 4.26) выражения для экспозиционной дозы.

Уравнения (4.25, 4.26) позволяют определить, во сколько раз экран известной толщины d уменьшает уровень облучения. Однако решить прямую задачу - рассчитать толщину экрана, обеспечивающего заданную кратность ослабления, можно только методом «последовательных приближений», так как значение B_D зависит от искомой величины d и не может быть заранее учтено.

На практике для расчета защиты обычно используют таблицы Н.Г. Гусева (табл. П. 11, 12), составленные численным моделированием для широкого пучка фотонного излучения с учетом дозового фактора накопления. Для источника моноэнергетического излучения E_{γ} , используя (4.22), вычисляют эквивалент дозы в отсутствие защиты (H_0) и определяют кратность его ослабления до предельно допустимого уровня (H_{nd}): $k = (H_0/H_{nd})$. H_{nd} рассчитывают, как правило, исходя из планируемого времени работы и уменьшенной вдвое предельно допустимой МАЭД $\dot{H}^*(10)_{nd} \approx 6$ мкЗв/ч $\approx H_{nd}$ (т.е. используя коэффициент запаса по МАЭД равный 2). В табл. П.11, 12 находят толщину защиты, соответствующей значениям k и E_{γ} .

В тех случаях, когда источник имеет сложный спектр излучения, защиту рассчитывают методом «конкурирующих линий». Прежде всего, оценив значения $p_i \Gamma_{s,i}^*$ (см. 4.16, 4.17), выбирают в спектре несколько линий $E_{\gamma,i}$, которые вносят заметный вклад в дозу. Затем рассчитывают кратности ослабления k_i для доз, создаваемых каждой выбранной компонентой.

$$k_{i} = \frac{H_{0,i}}{H_{n\partial}} = \frac{H_{0}}{H_{n\partial}} \frac{\Gamma_{s,i}}{\Gamma_{s}} = k \frac{\Gamma_{s,i}}{\Gamma_{s}}$$
(4.27),

где $H_{0,i}$ - эквивалент дозы, создаваемый фотонами $E_{\gamma,i}$ при d = 0; $\Gamma_{e,i}$, и Γ_e , - дифференциальная и полная керма-постоянные; k_i и k - кратности ослабления *i*-той линии и всего спектра, соответственно.

Далее для каждой линии $E_{\gamma,i}$ по значению k_i находят необходимую толщину защиты d_i . Выбирают главную линию (требующую наибольшей защиты d_c) и конкурирующую линию (следующая за наибольшей толщина защиты d_k). Кратности ослабления этих линий (k_c и k_k) удваивают, по таблице находят новые значения d_c' и d_k' (для 2 k_c и 2 k_k , соответственно). По разности ($d_c' - d_c = \Delta_{V_{2,c}}$) и ($d_{\kappa'} - d_{\kappa} = \Delta_{V_{2,k}}$) определяют слои полуослабления для главной и конкурирующей линий и выбирают наибольшее из двух значений Δ_{V_2} . Окончательно толщину защиты d находят из соотношений:

$$d = d_2 + \Delta_{1/2},$$
если $(d_2 - d_{\kappa}) = 0$ $d = d_{\kappa} + \Delta_{1/2},$ если $0 < (d_2 - d_{\kappa}) < \Delta_{1/2}$ $d = d_2,$ если $(d_2 - d_{\kappa}) > \Delta_{1/2}$

4.2. Дозиметрия ү-излучения. Оценка радиационной обстановки при наличии неизвестного ү-излучателя.

Обнаружен неизвестный мощный источник гамма-излучения (предположительно, один из четырёх радионуклидов – табл. 4.2.1).

Цель работы

- измерение мощности дозы, создаваемой источником на различных расстояниях, и расчет допустимого времени работы с источником;

- идентификация радионуклида по ослаблению ү-излучения свинцовыми фильтрами;

- оценка активности источника;

- расчет толщины свинцового экрана (стенок контейнера), обеспечивающего безопасные условия хранения и транспортировки источника.

Таблица	4	2	1
гаолица	т.		1

		Для оценки активности:				
Радионуклид	<i>Е</i> _γ , МэВ	по МА	по МЭД			
		Полная керма-	Коэффициент	Полная гамма-		
		постоянная (Γ_{6}),	перехода	постоянная ($\Gamma_{\mathcal{B}}$),		
		$a\Gamma p \cdot m^2$	$k = H^*(10)/D_{n,\gamma}^{sogd},$	$\mathbf{P} \cdot \mathbf{cm}^2$		
		с.Бк	Зв/Гр	ч∙мКи		
⁵⁷ Co	0.13*	3.69	1,56	0.553		
²⁰³ Hg	0.28	8.55	1,34	1.292		
¹³⁷ Cs	0.66	21.4	1,20	3.242		
	1.25*	84.6	1,16	12.85		

* - усредненное значение

Выполнение работы

1. Оценка радиационной обстановки

Согласно НРБ-99/2009 (п. 3.1.9) для студентов и учащихся старше 16 лет, проходящих профессиональное обучение с использованием источников ионизирующего излучения, годовые дозы не должны превышать значений, установленных для персонала группы Б. На кафедре радиохимии установлены контрольные и административные уровни воздействия радиационных факторов (КАУ-09/2010), согласно которым основной контрольный уровень (ОКУ) для персонала группы Б равен 1 мЗв за год.

Для расчета допустимого времени работы рекомендуется использовать контрольный уровень эффективной дозы внешнего облучения $E_{nd} = 150$ мкЗв. Эта величина рассчитывается как доля ОКУ для случая планируемого облучения во время выполнения задачи и равномерного облучения в течение оставшейся части учебного года на основе характеристик стандартных условий облучения (см. стр. 45) и с учетом погрешностей средств измерения, используемых для радиационного контроля на кафедре радиохимии.

Для оценки радиационной обстановки измеряют мощность амбиентного эквивалента дозы (МАЭД) $\dot{H}^*(10)_0$ на расстоянии от источника $r_0 = 20 \pm 1$ м с помощью дозиметра-радиометра МКС-10Д «ЧИБИС».

Рассчитывают МАЭД ($\dot{H}^*(10)_i$) на расстояниях r_i от источника:

$$\dot{H}^{*}(10)_{i} = \frac{\dot{H}^{*}(10)_{o} \cdot r_{o}^{2}}{r_{i}^{2}} (\text{MK3B/H})$$
(4.28)

Рассчитывают допустимое время работы t_i (мин) в поле излучения источника:

$$t_i = \frac{E_{n\partial}}{\dot{H}^*(10)_i} \cdot 60 = \frac{150}{\dot{H}^*(10)_i} \cdot 60 \quad (\text{MUH}) \tag{4.29}$$

Экспериментальные (для $r_0 = 20$ м) и расчётные данные заносят в таблицу 4.2.2.

Таблица 4.2.2

<i>r</i> _{<i>i</i>} , м	$\dot{H}^{*}(10)_{i}$, мкЗв/ч	<i>t_i</i> , мин
1		
3		
5		
6		
7		
8		
9		
10		
15		
20		

Делают вывод о предельно допустимом времени работы с источником (без защиты) на различных расстояниях.

2. Идентификация радионуклида

Идентификацию проводят по ослаблению мощности экспозиционной дозы (МЭД) при измерении в «узком» пучке с помощью радиометра СРП-68-01.

Детектор радиометра СРП-68-01 помещают в коллиматор (рис. 4.2.1) на расстоянии 5-10 м от источника (по согласованию с преподавателем) и проводят три измерения суммарной МЭД в разных условиях:

1) детектор в коллиматоре без фильтров
$$P_{\gamma 1,0} = P_{\gamma 1} + P_{\gamma S}$$
2) детектор в коллиматоре с фильтром $d_1 = d = 1$ см Pb $P_{\gamma 2,0} = \frac{P_{\gamma 1}}{K} + P_{\gamma S}$ 3) детектор в коллиматоре с фильтром $d_2 = 2d = 2$ см Pb $P_{\gamma 3,0} = \frac{P_{\gamma 1}}{K^2} + P_{\gamma S}$,

где $P_{\gamma 1}$ и $P_{\gamma S}$ – МЭД прямого и рассеянного излучения, соответственно, K – кратность ослабления γ -излучения в «узком» пучке, рассчитываемая по результатам измерений:

$$K = \frac{P_{\gamma 1,0} - P_{\gamma 2,0}}{P_{\gamma 2,0} - P_{y 3,0}} \tag{4.30}$$

Используя полученное значение *K*, вычисляют линейный коэффициент ослабления $\mu' = (\ln K)/d$ узкого пучка фотонов, оценивают по нему энергию γ -излучения (табл. П.5) и идентифицируют радионуклид (табл. 4.2.1).





3. Оценка активности источника

Проводят измерение МАЭД $\dot{H}^*(10)$ прибором МКС-10Д «ЧИБИС» или МЭД P_{γ} дозиметром ДРГ-05 на указанном преподавателем расстоянии от источника (*r*) и оценивают, учитывая размерность вводимых величин, активность *A* источника по формулам:

$$A = \frac{\dot{H}^*(10) \cdot r^2}{1,09 \cdot k \cdot \Gamma_e}$$
(Бк) или
$$A = \frac{P_{\gamma} \cdot r^2}{\Gamma_{\gamma}}$$
(мКи) (4.31)

Необходимо отметить, что к полученным значениям *А* следует относиться как к оценочным, поскольку в формулах (4.31) не учтён вклад рассеянного излучения.

4. Расчет толщины экрана

Используя полученные данные, рассчитывают толщину свинцового экрана (стенок контейнера), обеспечивающего снижение мощности эффективной дозы внешнего облучения на его поверхности до предельно допустимой, которая, согласно Санитарным правилам по радиационной безопасности персонала и населения при транспортировании радиоактивных материалов (веществ) (СанПиН 2.6.1.1281-03), не должна превышать 5 мкЗв/ч для радиационной упаковки транспортной категории I.

РАБОТА 5. ОПРЕДЕЛЕНИЕ ЗАГРЯЗНЕННОСТИ РАДИОАКТИВНЫМИ ВЕЩЕСТВАМИ РАБОЧИХ ПОВЕРХНОСТЕЙ

При работе с радиоактивными изотопами в радиохимической лаборатории (практикуме), в соответствии с основными санитарными правилами обеспечения радиационной безопасности (ОСПОРБ-99/2010 [7]), необходимо регулярно проверять степень загрязненности различных поверхностей, на которые могли попасть радиоактивные вещества. Уровень загрязненности – плотность потока частиц, испускаемых загрязненной поверхностью, определяется по выходу α - или β -частиц в верхнюю полусферу над 1 см² поверхности (част./(см²·мин)). Различают нефиксированную (снимаемую), неснимаемую и общую (суммарную) загрязненность. Уровни загрязнения рук, перчаток, спецодежды, оборудования, поверхности столов и т.д. нормируются, исходя из потенциальной опасности попадания радионуклидов внутрь организма (НРБ-99/2009; табл. 5.1). Поэтому допустимое количество радиоактивных ядер на 1 см² поверхности во много раз меньше того количества, которое может создать предельно допустимую МАЭД (см. ур-я (4.8, 4.9)).

Приборы, с помощью которых обнаруживают и измеряют радиоактивные загрязнения, называются радиометрами. Уровень общей загрязненности (F_{3acp}) определяют переносными приборами по регистрируемой активности 1 см² поверхности с учетом коэффициента счета K_{cy} :

$$F_{3ap} = \frac{(I_{c,3ap} - I_{\phi})}{S_{\phi}} K_{cq} = \frac{(I_{c,3ap} - I_{\phi})}{S_{\phi}} \frac{1}{\phi}$$
(5.1),

где $I_{c, 3acp}$ и I_{ϕ} –скорость счета(*) загрязненной поверхности и фона, соответственно (в имп/мин); S_{∂} – площадь окна детектора в см²; ϕ -коэффициент регистрации радиометра.

Для определения коэффициента счета проводится калибровка радиометра по излучению эталонных источников. Коэффициент K_{cv} равен отношению числа частиц, испускаемым эталоном в минуту в угол 2π ($F_{\mathfrak{sm}(2\pi)}$, паспортные данные), к скорости счета ($I_{c,\mathfrak{sm}}-I_{\phi}$), измеренной при наложении эталона на окно детектора:

$$K_{cy} = \frac{F_{\mathfrak{M}(2\pi)}}{(I_{c,\mathfrak{M}} - I_{\phi})} \quad (\text{при } S_{\partial} \geq S_{\mathfrak{M}})$$
(5.2)

Для конкретного радионуклида значение K_{cy} определяется по графику зависимости K_{cy} от $E_{\beta,max}$, который строят по результатам измерений нескольких эталонов.

Нефиксированная загрязненность (ΔF_{3arp}) может быть определена с помощью как переносных, так и стационарных радиометров методом «взятия сухого мазка». Для этого фильтровальной бумагой, площадью меньшей, чем входное окно детектора, трижды протирают определенную площадь (S_{mas}) поверхности стола или

^{*} Поправку на разрешающее время детекторов со счетчиками Гейгера-Мюллера в регистрируемую скорость счета обычно не вводят, так как величина I_c в уравнениях (5.1; 5.3), как правило, меньше 10000 имп/мин. Кроме того, даже при более высокой скорости счета ($I \approx 15000 \div 20000$ имп/мин) некоторое снижение точности её определения, как показала практика, не приводит к существенному увеличению погрешности конечного результата расчетов – значений F_{3azp} или ΔF_{3azp} .

Таблица 5.1

Допустимые уровни радиоактивного загрязнения поверхностей (част./(см²·мин))

Объект загрязнения	Альфа-активн	Бета-активные	
	отдельные**	прочие	нуклиды
Неповрежденная кожа, полотенца, внутренняя поверхность лицевых ча- стей средств индивидуальной защиты и перчаток	2	2	200***
Основная спецодежда, внутренняя по- верхность дополнительных средств индивидуальной защиты, спецобувь	5	20	2000
Поверхности помещений постоянного пребывания персонала и находящегося в них оборудования	5	20	2000
Поверхности помещений периодиче- ского пребывания персонала и нахо- дящегося в них оборудования	50	200	10000

* для поверхностей рабочих помещений и оборудования нормируется снимаемое (нефиксированное) загрязнение; для остальных поверхностей – суммарное (снимаемое и неснимаемое) загрязнение;

** альфа-активные нуклиды, допустимая объемная активность которых в воздухе рабочих помещений ДОА < 0,3 Бк/м³ (232 Th, 241 Am и др.);

*** для равновесной смеси изотопов 90 Sr + 90 Y не более 40 част/см² мин.

оборудования. На откалиброванном радиометре измеряют скорость счета пробы-«мазка» (*I*_{с.маз}) и рассчитывают нефиксированную загрязненность:

$$\Delta F_{3acp} = F_{Ma3} = \frac{(I_{c,Ma3} - I_{\phi})}{S_{Ma3}} K_{cy}$$
(5.3)

Цель работы

Изучение работы радиометра; определение уровня нефиксированной (снимаемой) загрязненности поверхности β-активными нуклидами.

Оборудование и препараты

Радиометр УИМ-1М; набор эталонных источников β–излучения с сопроводительными паспортами; кюветы, поверхность которых загрязнена одним из используемых в практикуме β–активных нуклидов.

Выполнение работы

1. Знакомятся с краткой инструкцией по работе с радиометром и готовят его к измерениям.

2. Проводят 3 измерения скорости счета фона продолжительностью по 1 мин.

3. Градуируют радиометр УИМ-1М по эталонным источникам β -излучения:¹⁴C, ⁶⁰Co, ²⁰⁴Tl, равновесная смесь ⁹⁰Sr(⁹⁰Y). Энергия излучения и период полураспада этих радионуклидов приведены в табл. П.1. «Эффективная» энергия β – частиц источника

⁹⁰Sr(⁹⁰Y), значение которой обычно используют при построении калибровочного графика в координатах $K_{cy.} - E_{\beta,max}$, равна 1,6 МэВ.

Три эталонных препарата являются «чистыми» β -излучателями, в то время как распад ядра ⁶⁰Со сопровождается испусканием двух жестких γ -квантов. В этом случае при калибровке радиометра проводят два измерения: сначала - общей скорости счета эталонного препарата ($I_{c, m1}=I_{\beta}+I_{\gamma}+I_{\phi}$), затем - скорости счета, обусловленной γ -излучением ($I_{c, m2}=I_{\gamma}+I_{\phi}$). При втором измерении между окном детектора и препаратом помещают алюминиевый диск, толщина которого равна (или немного больше) максимальному пробегу β -частиц (80-81 мг/см²). Разность между $I_{c, m1}$ и $I_{c, m2}$ соответствует скорости счета β -излучения кобальта-60.

Для каждого эталона проводят по 3 измерения скорости счета $I_{c, эm}$ (для ⁶⁰Со по 3 измерения $I_{c, эm1}$ и $I_{c, эm2}$) продолжительностью по 1 мин, находят среднее значение $(\bar{I}_{c, эm}-\bar{I}_{\phi})$ и, согласно (1.19; 1.26; 1.33), - погрешность среднего для 95%-ной доверительной вероятности. По формуле (5.2) определяют коэффициент счета $K_{cu,i}$ для каждого эталона. Относительную погрешность определения $K_{cu,i}$ оценивают, используя закон накопления (1.30), рассчитанную погрешность средней скорости счета и погрешность определения $F_{3m,(2\pi)}$, указанную в паспорте:

$$\delta_{K_{c'',i}}^2 = \delta_{(\bar{I}_{c,m} - \bar{I}_{\phi})}^2 + \delta_{F_{m(2\pi)}}^2 \qquad \text{M} \qquad \Delta_{K_{c'',i}} = (\delta_{K_{c'',i}}) \cdot K_{c'',i}$$
(5.4)

Полученные данные вносят в табл. 5.2 и, с учетом полученных значений $\Delta_{Kcu,i}$, строят график зависимости коэффициента счета от энергии β -излучения.

Таблица 5.2

	Нуклид,	$F_{\mathfrak{P}m(2\pi)}, \mathbf{v}$	част/мин				
N⁰	период	ПО	на дату	$E_{\beta,max},$ MpP	$(\bar{I}_{c,\Im m}-\bar{I}_{\phi}),$	$K_{cy,i},$	$K_{_{C^{\prime\prime},i}} \pm \Delta_{_{K_{_{C^{\prime\prime},i}}}}$
	распада	паспорту	измерения	MBD	ИМП/МИН	част/имп	

4. Определяют нефиксированную загрязненность рабочей поверхности. Для этого, по согласованию с преподавателем, выбирают 2 участка (по 100÷200 см² каждый) поверхности определяют ИХ площадь. Узнают, с загрязненной И каким радионуклидом проводились работы на данном рабочем месте, и, используя построенный график $K_{cu,i}$ — $E_{\beta,max}$, определяют коэффициент счета для этого нуклида. Бумажным фильтром диаметром 3-4 см трижды протирают выделенный участок и измеряют скорость счета фильтра. Аналогичным способом берут «мазок» со второго участка. Вычисляют снимаемую загрязненность (ΔF_{3arp} ; уравнение 5.3). Сопоставляют полученные результаты с данными табл. 5.1 и определяют отношение величины ΔF_{3aco} к допустимому уровню загрязненности F_{∂_3} .

Таблица 5.3

№ рабочего места на плане	$(I_{c,{}_{Ma3}} ext{-} I_{\phi}),$ имп/мин	<i>К_{сч}</i> , част/имп	$\Delta F_{_{3aгp}},$ част/см 2 ·мин	$\Delta F_{_{3acp}}/F_{_{\partial 3}}^*$

*- допустимая загрязненность

РАБОТА 6. ИЗОТОПНЫЕ ГЕНЕРАТОРЫ

6.1. ГЕНЕРАТОР ИНДИЯ-113m

В последнее время значительно возрос интерес к короткоживущим радионуклидам, используемым в ядерной медицине в диагностических и терапевтических целях. Это объясняется тем, что такие радионуклиды могут эффективно использоваться в препаратах с высокой удельной активностью при малых дозовых нагрузках на органы пациента. Для накопления и выделения короткоживущих радионуклидов используют установки (устройства), которые называются *радионуклидными генераторами*.

Работа генераторов основана на образовании дочернего короткоживущего радионуклида в результате распада долгоживущего материнского. Эти радионуклиды можно разделить непосредственно в генераторной установке, используя приемы хроматографии или экстракции, и получить затем содержащий дочерний изотоп раствор требуемой абсолютной активности и радиохимической чистоты.

Радионуклидные генераторы доставляются из ядерных центров в медицинские клиники, где получают конечный продукт (короткоживущие PH, радиофармпрепараты) непосредственно перед его применением, используя тщательно проработанные методики, безопасные для медицинского персонала,

Медицинский генератор ^{113т}In предназначен для получения растворов хлоридных комплексов состава [^{113т}In(H₂0)_{6-n}Cl_n]⁽³⁻ⁿ⁾⁺ (n = 0, 1, 2, 3) в 0,05н соляной кислоте, которые применяются в ядерной медицине в диагностических целях при сканировании печени, легких, кровеносных сосудов, а также при идентификации опухолевых образований. Интерес к ^{113m}In вызван главным образом его благоприятными ядернофизическими свойствами (период полураспада $T_{1/2(In)}$ =99,4 мин., E_{γ} =392 кэВ). Кроме того, материнский изотоп имеет период полураспада $T_{1/2(Sn)} = 115$ суток, благодаря чему генератор можно использовать в течение длительного времени.

Действие генератора основано на цепочке радиоактивных превращений:

$$\stackrel{\beta^{+}, T_{1/}=115 \text{ суток}}{113} \text{Sn} \xrightarrow{\gamma, T_{1/}=99,4 \text{ мин}} \stackrel{\gamma, T_{1/}=99,4 \text{ мин}}{113} \text{In}$$

Материнский изотоп ¹¹³Sn претерпевает β -превращения (β^+ -распад и *K*-захват), в результате которых образуется дочерний метастабильный ^{113m}In, превращение которого (изомерный переход) в стабильный ¹¹³In сопровождается испусканием γ -квантов (E_{γ} =392 кэВ), электронов конверсии ($E \approx 365$ кэВ) и рентгеновского излучения ($E_X \approx 24$ кэВ).

Период полураспада материнского изотопа в 1666 раз больше периода полураспада дочернего ($T_{1/2(Sn)} >> T_{1/2(In)}$), а время наблюдения *t* (время выполнения задачи) много меньше периода полураспада ¹¹³Sn ($t << T_{1/2(Sn)}$). Накопление ^{113m}In в предварительно очищенном ¹¹³Sn описывается уравнением (6.1.):

$$A_{In,t} = A_{Sn,0}(e^{-\lambda_{Sn} \cdot t} - e^{-\lambda_{In} \cdot t}) = A_{Sn,0}(1 - e^{-0.4184 \cdot t})$$
(6.1)

где $A_{\text{Sn,o}}$ -активность ¹¹³Sn в момент t=0; $A_{\text{In},t}$ -активность ^{113m}In; λ -постоянные распада, t – время (ч)

В работе используется экстракционный изотопный генератор. К моменту начала выполнения работы радионуклиды уже находятся в состоянии векового равновесия и, следовательно, их абсолютные активности в растворе (бензол) равны друг другу.

Каждый радионуклид характеризуется свом периодом полураспада и специфическим, присущим только ему спектром испускаемых частиц и/или квантов электромагнитного излучения. Это позволяет идентифицировать изотопы и проверить радиохимическую чистоту получаемого препарата. В табл. 6.1 приведены энергия E_i , выход на распад p_i и парциальная керма-постоянная $\Gamma_{\text{в},i}$ для фотонного излучения ^{113m}In и излучения равновесной смеси изотопов ¹¹³Sn(^{113m}In). Появление в экспериментальном γ -спектре линий с энергиями, отличными от приведенных в табл. 6.1.1, свидетельствует о наличии в препарате примесей других радионуклидов.

Таблица 6.1.1

^{113m} In			1	13 Sn(113m In)	
<i>Е</i> _{<i>i</i>} , кэВ	<i>p</i> _{<i>i</i>} , %	$\Gamma_{\mathrm{B},i} \frac{\mathrm{a}\Gamma\mathrm{p}\cdot\mathrm{m}^2}{\mathrm{c}\cdot\mathrm{b}\mathrm{k}}$	<i>Е</i> _{<i>i</i>} , кэВ	<i>p</i> _{<i>i</i>} , %	$\Gamma_{\mathrm{B},i} \frac{\mathrm{a}\Gamma\mathrm{p}\cdot\mathrm{m}^2}{\mathrm{c}\cdot\mathrm{B}\mathrm{k}}$
391,69	64,20	9,4	391,69	64,20	9,4
24,66 (KX)	24,10	2,2	255,04	1,5	0,14
23,63 (KX)	0,05	$5 \cdot 10^{-3}$	24, 66 (KX)	96,1	8,8
			23,63 (KX)	0,05	$5 \cdot 10^{-3}$
Σ	88,35	11,7	Σ	161,85	18,3

Параметры фотонного излучения

Цель работы

Выделение ^{113m}In из экстракционного генератора ¹¹³Sn-^{113m}In. Идентификация ^{113m}In методом γ-спектрометрии. Определение выхода дочернего изотопа и радиохимической чистоты препарата ^{113m}In.

Оборудование и материалы

Экстракционный изотопный генератор ¹¹³Sn-^{113m}In.

Гамма-спектрометр, предварительно откалиброванный по энергии и эффективности (см. работу 3), с полупроводниковым или сцинтилляционным детектором.

Микропипетки на 0,02; 0,05 и 0,5 мл. Пробирки для измерения активности растворов. Экстракционные пробирки. Водный раствор НІ с концентрацией 6 моль/л.

Выполнение работы

Перед проведением эксперимента проводится дополнительный инструктаж по работе с радиоактивными веществами в открытом виде.

1. Определение активности равновесной пары ¹¹³Sn-^{113m}In в изотопном генераторе.

Отбирают в измерительные пробирки дозатором аликвотную часть (0,02 или 0,05 мл) содержащего радионуклиды бензола, исходный объем которого известен. Набирают γ -спектр этой пробы в течение времени t (5÷10 мин.). Используя программу обработки спектров, определяют истинную площадь пика полного поглощения энергии E_{γ} =392 кэВ (I_f) и вычисляют активность ^{113m}In (а, следовательно, и ¹¹³Sn) в аликвотной части раствора:

$$A_{In} = \frac{I_f}{0.64 \cdot \varepsilon_f} = A_{Sn} \tag{6.2}$$

При расчете используют известное (полученное ранее) значение эффективности регистрации (ε_f) γ -квантов E_{γ} =392 кэВ. Вычисляют активность ^{113m}In во всем растворе.

2. Выделение индия-113m из изотопного генератора.

Выделение индия осуществляют реэкстракцией из бензольного раствора генератора раствором НІ (6 моль/л). В этом случае коэффициенты распределения олова ($D_{\rm Sn}$) и индия ($D_{\rm In}$) равны, соответственно, 130±5 и 0,003±0,0003. Таким образом, одна реэкстракция позволяет практически полностью отделить^{113m}In от ¹¹³Sn.

Для выделения индия к раствору, содержащему ¹¹³Sn/^{113m}In, приливают равный объем 6 моль/л раствора HI, пробкой закрывают экстракционную пробирку и интенсивно встряхивают ее <u>над кюветой (</u>!) в течение 3÷5 минут. <u>Фиксируют текущее время начала встряхивания.</u> Экстракционную пробирку устанавливают в штатив для расслоения фаз примерно на 15 мин. Отбирают в счетные пробирки или флаконы дозатором по 0,5 мл каждой фазы и маркируют образцы.

3. Идентификация индия-113m. Определение периода полураспада. Определение выхода целевого продукта и его радиохимической чистоты.

3.1. Устанавливают пробирки в детекторы γ-спектрометра и получают примерно по 20 спектров водной и органической фаз. Спектры набирают по 2 минуты с интервалом в 5 минут в течение 1,5÷2 часов (время начала измерения и его продолжительность точно фиксируются).

3.2. По площади пика ППЭ определяют активности 113m In в водной и органических фазах на момент каждого измерения (см. п.1). По результатам измерения водной фазы строят (в координатах $lnA_{In,t}$ от t) график, иллюстрирующий распад выделенного дочернего радионуклида:

$$A_{ln,t} = A_{ln,o} \cdot exp(-\lambda \cdot t) \qquad \text{if } \qquad ln A_{ln,t} = ln A_{ln,o} - \lambda \cdot t \qquad (6.3),$$

где λ-постоянная распада индия-113m; *t* – время (мин.).

По наклону прямой определяют период полураспада^{113m}In.

По результатам измерения органической фазы строят график, иллюстрирующий накопление дочернего^{113m}In при распаде материнского изотопа:

$$A_{ln,t} = A_{ln,\infty} [1 - exp(-\lambda \cdot t)]$$
(6.4),

где $A_{\text{In},\infty}$ - равновесная активность ^{113m}In.

Рассчитывают, согласно (6.1), активность ^{113m}In во всем объеме водной фазы на <u>мо-</u> <u>мент начала разделения</u> и, сопоставляя ее с исходной активностью ^{113m}In в генераторе (см. п.1), рассчитывают выход целевого продукта.

4. Счетную пробирку с водной фазой и генератор сдают преподавателю.

На следующем занятии набирают γ -спектр водного раствора в диапазоне 50÷500 кэВ в течение ~ 30 мин. За время $t=10~T_{1/2(In)}$, т.е. приблизительно за 17 часов, ^{113m}In распадается практически полностью. Поэтому появление в аппаратурном γ -спектре в дополнении к линии $E_{\gamma}=255$ кэВ (см. табл. 6.1) новых пиков ППЭ будет указывать на наличие в препарате примесей. Если такие «посторонние» линии обнаружены, определяют соответствующую им энергию фотонов и идентифицируют примесные радионуклиды (см. задачу 3). Рассчитывают активность примесных нуклидов и радиохимическую чистоту полученного препарата ^{113m}In.

6.2. ГЕНЕРАТОР НЕПТУНИЯ-239

Цель работы

Выделение ²³⁹Np из экстракционного генератора ²⁴³Am-²³⁹Np. Идентификация ²³⁹Np методом γ-спектрометрии. Определение выхода целевого продукта.

Оборудование и материалы

Изотопный генератор ²⁴³Am-²³⁹Np. Гамма-спектрометр с полупроводниковым детектором. Пробирки для измерения активности растворов.

Экстракционные пробирки. Концентрированная соляная кислота; пероксид водорода; экстрагент: 10%-ный раствор три-н-октиламина в толуоле (бензоле).

Выполнение работы

Перед проведением эксперимента проводится дополнительный инструктаж по работе с радиоактивными веществами в открытом виде.

1. Для гамма-спектрометрии исходного раствора, содержащего равновесную пару радионуклидов 243 Am 239 Np, используют спектрометр, калибровка которого по энергии и эффективности ε_f была проведена ранее (см. работу 3). Спектр фона для этого спектрометра должен быть получен до начала работы.

В измерительные пробирки отбирают дозатором 2 мл исходного солянокислого раствора, набирают γ -спектр пробы в течение 1÷10 мин. (рис. 6.2.1.а). Длительность измерения определяется требуемой (как правило, 5%-ной) относительной погрешностью определения площади пика полного поглощения. Используя программу обработки спектров, определяют истинную площадь I_f пика полного поглощения энергии E_{γ} =74,7 кэВ (²⁴³Am). Вычисляют, согласно (3.8) или (3.10), активность ²⁴³Am (а, следовательно, и ²³⁹Np) в 2 мл исходного раствора. При расчете используют известное (для заданных условий измерения) значение эффективности ε_f для фотонов E_{γ} =74,7 кэВ. По площади пиков полного поглощения ²³⁹Np (табл. 6.2.1) аналогичным способом определяют активность дочернего нуклида в исходном растворе. Сопоставляют полученные результаты.

Таблица 6.2.1

239	Np	²⁴³ Am			
<i>Е</i> _{<i>i</i>} , кэВ	$p_i,\%$	<i>Е</i> _{<i>i</i>} , кэВ	<i>p</i> _{<i>i</i>} ,%		
99,6 ^(*)	14,0	74,7	68,2		
103,8(*)	22,5				
106,1	27,2				
$117,0^{(*)}$	8,4				
$120,7^{(*)}$	3,2				

Наиболее интенсивные рентгеновские и ү–линии ²³⁹Np и ²⁴³Am

(*) – характеристическое рентгеновское излучение

2. Выделение нептуния-239 из раствора.

2.1. Предварительно окисляют Np(V) до Np(VI), добавляя в исходный раствор несколько капель 30% пероксида водорода.

2.2. Экстрагент предварительно насыщают хлороводородом, встряхивая его с равным объемом концентрированной соляной кислоты в течение 1 мин. Для выделения

нептуния к 2 мл исходного раствора приливают 2 мл экстрагента, закрывают экстракционную пробирку и аккуратно встряхивают ее <u>над кюветой</u> в течение 3÷5 минут.

2.3. Экстракционную пробирку устанавливают в штатив примерно на 5÷10 мин. (расслоение фаз). Отделяют органическую фазу, содержащую ²³⁹Np, и промывают ее концентрированной соляной кислотой (2 мл) для удаления следов ²⁴³Am.

2.4. Из очищенной органической фазы реэкстрагируют ²³⁹Np равным объемом воды. Отбирают в счетные пробирки 2 мл этой водной фазы.

3. Идентификация нептуния-239. Определение выхода целевого продукта.

Устанавливают счетные пробирки на детектор γ-спектрометра и получают спектр водной фазы (рис. 6.2.1.б). По площади пиков полного поглощения спектра определяют активность ²³⁹Np (см. пункт 1). Делают заключение о полноте разделения радионуклидов (наличие или отсутствие линии 74,7 кэВ материнского нуклида ²⁴³Am в водной вытяжке). По результатам измерений активности ²³⁹Np в исходном растворе и в водной фазе определяют выход целевого продукта.



Рис.6.2.1. Гамма-спектры: а – равновесная смесь ²⁴³Am–²³⁹Np, б – препарат ²³⁹Np

6.3. FEHEPATOP 90 Sr \rightarrow 90 Y

В изотопном генераторе ⁹⁰Sr \rightarrow ⁹⁰Y при распаде материнского долгоживущего накапливается дочерний короткоживущий радионуклид ($T_{1/2}(^{90}Sr) = 28,7$ лет, $T_{1/2}(^{90}Y) = 64,2$ ч). Основные методы разделения этой пары базируются на хроматографических и экстракционных приемах разделения элементов. В данной работе за основу принята экстракционная технология разделения радионуклидной пары.

Выполнение работы

1. Приготовление экстрагента

В делительную воронку на 50-100 мл приливают 15-25 мл 100 % трибутилфосфата (ТБФ) и равный объем 13,5 моль/л HNO₃. Воронку закрывают пробкой и встряхивают примерно 10 минут (здесь и далее встряхивание проводят строго над рабочей кюветой), затем закрепляют в штативе для расслаивания фаз при открытой пробке. Через 10-15 минут всю водную фазу сливают в стакан (можно дополнительно слить 1-2 мл органической фазы). Органическая фаза - ТБФ, насыщенный азотной кислотой, в дальнейшем используется для проведения экстракции. 2. Экстракция

Каждая из подгрупп отбирает с помощью цилиндра в свою делительную воронку на 10 мл по 3 мл экстрагента. В эту воронку добавляют равный объем водной фазы (13,5 моль/л HNO₃) и, с помощью дозатора, 0,1 мл раствора нитрата стронция-90. Делительную воронку встряхивают примерно 5 мин и устанавливают в штативе над кюветой для расслаивания фаз.

После расслаивания водную фазу (I) сливают полностью в стакан. Органическую фазу *дважды* промывают равным объемом азотной кислоты (13,5 моль/л), встряхивая и отделяя затем водные фазы (II и III). Водные фазы (I), (II) и (III) сливают в бутыль для радиоактивных отходов, находящуюся под тягой.

Зависимость коэффициента распределения (D_Y) иттрия при экстракции из азотнокислых растворов в виде комплекса $Y(NO_3)_3$ ·ЗТБФ приведена в таблице*.

С(HNO ₃), моль/л	D_Y	С(HNO ₃), моль/л	D_Y	С(HNO ₃), моль/л	D_Y
0,71	0,044	7,14	1,38	12,2	32
1,52	0,100	9,10	3,6	13,1	62
4,84	0,64	10,9	13,8	14,6	198
6,55	1,10	11,9	25	15,0	220

3. Реэкстракция

После промывки органической фазы проводят *две* реэкстракции иттрия-90 водой (по 2 мл воды на каждую). Оба реэкстракта собирают в пробирке. Скорость счета реаэкстракта можно определять или на установке со счетчиком Гейгера-Мюллера, или с помощью жидкостного сцинтилляционного счетчика по излучению Черенкова.

Если определение скорости счета будет проводиться по излучению Черенкова, то весь собранный реэкстракт переносят в сцинтилляционный флакон, плотно закрывают его крышкой и тщательно протирают стенки флакона фильтровальной бумагой.

Пробу для работы на счетчике Гейгера-Мюллера готовят следующим образом. В чашечку для выпаривания отбирают 0,5 мл раствора реэкстракта иттрия-90. Чашечку маркируют и ставят под лампу. После испарения воды препараты ⁹⁰Ү помещают в чашку Петри и закрывают крышкой.

4. Измерение скорости счета. Определения периода полураспада

Определение скорости счета препаратов ($I = I_c - I_\phi$) проводят в течение 7-14 дней (всего 5-6 измерений) на жидкостном сцинтилляционном счетчике или на установках со счетчиком Гейгера-Мюллера в идентичных условиях, соблюдая постоянство коэффициента регистрации φ . В каждом случае проводят предварительные (продолжительностью t=1 мин) измерения скорости счета препарата I_c и фона I_{ϕ} . Используя соотношения (1.35; 1.36), рассчитывают время отдельного измерения препарата с фоном ($t_{c,min}$) и фона ($t_{\phi,min}$), необходимое для того, чтобы относительная погрешность определения скорости счета препарата I не превышала заданной величины $\delta_{\gamma,I} \leq 0,1$ (при доверительной вероятности $\gamma=0,95$). По результатам измерений строят зависимость изменения lnI от t, определяют период полураспада радионуклида, сравнивают с литературными данными для ⁹⁰Y и делают вывод о радиохимической чистоте препарата.

5. Уборка рабочего места

Во время выпаривания счетных препаратов студенты моют посуду, предварительно слив все рабочие растворы в бутыль для радиоактивных отходов, убирают рабочее место. Все детали этих процессов согласуются с преподавателем. В процессе и по окончании работы проводится дозиметрический контроль рабочего места, посуды, спецодежды и кистей рук.

* *Николотова З.И., Карташова Н.А.* Экстракция нейтральными органическими соединениями. Справочник. М.: Атомиздат, 1976, с. 177.

6.4. ГЕНЕРАТОР 44 Ti \rightarrow 44 Sc

Изотопный генератор ⁴⁴Ti \rightarrow ⁴⁴Sc ($T_{1/2}$ (⁴⁴Ti) = 47 лет, $T_{1/2}$ (⁴⁴Sc) = 3,93 ч) активно разрабатывается в последнее время как источник короткоживущего радионуклида для позитронной эмиссионной томографии. В качестве основной технологии разделения этих радионуклидов (элементов) используют ионообменную хроматографию.

Выполнение работы

1. Подготовка хроматографической колонки

На дно хроматографической колонки (высота 10-12 см, внутренний диаметр 0,8-1,0 см) помещают стекловату для предотвращения забивания сливного отверстия смолой. В каждую колонку помещается катионит (Dowex AG (CL, 100-200 меш) или Dowex 50WX8 (H, 200-400 меш)). Колонку плотно заполняют смолой, оставляя в верхней части колонки 1-2 см свободного пространства. Сверху помещают еще один слой стекловаты для предотвращения потерь смолы. Колонку промывается последовательно 5 мл концентрированной соляной кислотой и 5 мл дистиллированной воды (*операция проводится дважды*). Затем колонку промываются 5 мл 0,1 моль/л раствора щавелевой кислоты.

2. Измерение радиоактивности исходного раствора

Аликвоту (0,02 мл) раствора, содержащего радионуклидную пару ⁴⁴Ti(⁴⁴Sc), с помощью дозатора помещают в пластиковую пробирку Эппендорфа объемом 2 мл и измеряют исходную радиоактивность, используя гамма-спектрометр (см. работу 3). Такую же аликвоту вводят в хроматографическую колонку. Элюирование скандия начинают примерно через сутки.

3. Элюирование

Для элюирования скандия готовят водный раствор, содержащий HCl (0,07 моль/л) и $H_2C_2O_4$ (0,005 моль/л). В качестве элюента можно использовать также раствор ЭДТА (0,1 моль/л). Вымывание скандия проводят 20 мл элюента со скоростью не выше 1 мл в минуту. Порции элюента собирают в пластиковые пробирки Эппендорфа, отбирая фракции по 1 мл для последующего измерения радиоактивности. Фиксируют время отбора каждой фракции.

4. Измерение радиоактивности элюента. Проверка радиохимической чистоты

Для контроля состава фракций используют гамма-спектрометрию. Позитронный распад ⁴⁴Sc (максимальная энергия β^+ -частиц 1470 кэВ) сопровождается испусканием γ -квантов с энергией 1157 кэВ (выход на распад p = 0,999) и аннигиляционных квантов (E = 511 кэВ, p = 1,887). В то время как при распаде ⁴⁴Ti путем электронного захвата испускаются лишь низкоэнергетические γ -кванты (67,88 кэВ и 78,34 кэВ, p = 0,944 и p = 0,962, соответственно). Таким образом, радиоактивность скандия можно надежно определять по интенсивности пиков полного поглощения энергии квантов как 511, так и 1157 кэВ (см. работу 3).

Предварительно гамма-спектрометр калибруют по энергии и эффективности регистрации диапазоне 400÷1300 кэВ. Каждый образец (фракция элюента) измеряют в постоянной геометрии, для чего пластиковые пробирки с элюентом помещаются в один и тот же стеклянный бюкс. Измерения проводят сразу после отбора порции элюента (табл. 6.4.1).

Кроме того, для проверки радиохимической чистоты элюента радиоактивность некоторых фракций измеряют через 40 (или более) часов после завершения элюирования. Радиоактивность пробы, выдержанной 40 ч, при отсутствии материнского ⁴⁴Ti должна быть близка к фоновому значению. Наоборот, существенное превышение скорости счета фона будет указывать на наличие в элюенте долгоживущего радионуклида. Сравнивая исходную радиоактивность пробы и ее радиоактивность после наступления векового равновесия, можно оценить чистоту препарата.

Таблица 6.4.1.

No	Время	Радиоактивн	ость пробы	сразу	Радиоактивн	ость пробы с	пустя
фракции	отбора,	после отбора	і, Бк		40 ч, Бк		
	МИН	Активность	Активность	Фон	Активность	Активность	Фон
		по ППЭ	по ППЭ		по ППЭ	по ППЭ	
		511 кэВ	1157 кэВ		511 кэВ	1157 кэВ	

Результаты измерений активности фракций элюента

По результатам работы строят профиль элюирования (по оси *x* – номер фракции (или объем элюента), по оси *y* – радиоактивность фракции). Рассчитывают выход ⁴⁴Sc и делают вывод о радиохимической чистоте препаратов.

5. Уборка рабочего места

Вся одноразовая посуда после слива жидкой фракции в бутыль для радиоактивных отходов, помещается в приемник для сухих отходов. Разборка и промывка хроматографических колонок происходит только под контролем преподавателя. В процессе и по окончании работы проводится дозиметрический контроль рабочего места, посуды, спецодежды и кистей рук.

РАБОТА 7. РАДИОХРОМАТОГРАФИЯ. ОПРЕДЕЛЕНИЕ РАДИОАКТИВНОСТИ АМИНОКИСЛОТ В ИХ СМЕСИ

Органические вещества, меченные радионуклидами, широко используются в химических и биохимических исследованиях. Измерение радиоактивности меченого соединения позволяет контролировать его концентрацию в системах сложного химического состава без проведения трудоемких процедур выделения и анализа. Однако если в исследуемой системе происходят химические или ферментативные реакции, а исследователя интересует, какие вещества и в каком количестве образуются, то перед измерением радиоактивности необходимо разделить меченые компоненты. В настоящее время для этого используют различные варианты хроматографии в комплексе с современным радиометрическим оборудованием. Тонкослойная хроматография (TCX) является экспрессным и простым методом разделения веществ. С помощью специальных сканеров радиоактивности с небольшой зоной регистрации (1-2 мм) или авторадиографии можно с высокой точностью определить радиоактивность веществ даже с близкими значениями R_{f} . При анализе смесей веществ, которые хорошо разделяются с помощью ТСХ, допустимо измерять радиоактивность отдельных полосок хроматографической пластинки шириной 5-10 мм. Для измерения радиоактивности соединений, меченных радионуклидами ¹⁴C, ³H и ³⁵S, используют метод жидкостной сцинтилляционной спектрометрии.

При выполнении данной работы используются аминокислоты, меченные ¹⁴С. Регистрация β-излучения проводится с помощью сканера радиоактивности или на жидкостных сцинтилляционных спектрометрах.

Правила работы с веществами, содержащими ¹⁴С

Углерод-14 постоянно образуется в атмосфере Земли под действием космического излучения по реакции ¹⁴N(n,p)¹⁴C. Поэтому в живых организмах поддерживается постоянное соотношение изотопов ¹⁴C:¹²C \cong 1: 10¹². В организме взрослого человека содержится примерно 4 кБк ¹⁴C. Примерно такое же количество радионуклида будет наноситься на хроматографическую пластинку при выполнении настоящей работы.

Углерод-14 является мягким β -излучателем. Максимальный пробег его β -частиц составляет 31 мг/см², и излучение углерода-14 полностью поглощает слой воздуха 25 см или стенки пробирок с радиоактивными растворами. В случае попадания ¹⁴С внутрь организма его основная часть достаточно быстро выводится через легкие в форме ¹⁴CO₂. Однако некоторое количество этого долгоживущего нуклида ($T_{1/2} = 5600$ лет) может оказаться в составе молекул белков и нуклеиновых кислот.

Правила работы с радиоактивными веществами могут отличаться некоторыми деталями в зависимости от характера операций, используемого радионуклида и его количества. Однако есть общие требования, которые необходимо неукоснительно соблюдать при проведении любого исследования с радиоактивными препаратами в открытом виде. Применительно к данной работе эти требования таковы. Все операции с радиоактивными растворами и пластинками проводят над кюветами, в халате и в перчатках. Пробы отбирают специальными пипетками и капиллярами. Использованные наконечники пипеток и капилляры помещают в стаканы для радиоактивных отходов. После завершения работы проверяют радиохимическую чистоту халата, перчаток и рук. Проверяют степень загрязненности поверхности кюветы. Для этого измеряют радиоактивность взятого «мазка» с помощью жидкостного сцинтилляционного спектрометра или радиометра (см. работу 5). При нештатной ситуации (загрязнение радиоактивным веществом кожи рук, одежды, поверхности стола и т.п.) немедленно обращаются к преподавателю и под его руководством проводят дезактивацию.

Цель работы

Хроматографическое разделение смеси аминокислот, меченных углеродом-14, и определение их радиоактивности.

Оборудование, материалы и реактивы

Сканер радиоактивности «БетаХром» (опытный образец, изготовленный в НИИ молекулярной генетики РАН);

ЖС- спектрометр RackBeta 1215 (LKB Wallac) или TRI-CARB 1600 (PerkinElmer); хроматографические пластинки со слоем силикагеля (Silufol; Aldrich или Sorbfil); хроматографический стакан; микропипетки, капилляры, сцинтилляционные флаконы; растворы аминокислот: типичные набор - лизин (К), глицин (G), валин (V), лейцин (L), возможны и другие аминокислоты;

смеси [¹⁴С]аминокислот;

раствор нингидрина в ацетоне или этаноле;

йодная камера;

бутанол, уксусная кислота (98%), дистиллированная вода;

сцинтилляционные жидкости Scintilene BD, Ultima Gold, ЖС-8 или другие.

Выполнение работы

Готовят элюент для хроматографии, смешивая бутанол, уксусную кислоту и дистиллированную воду в отношении 3:1:1 по объему. Вдоль внутренней стенки хроматографического стакана размещают фильтровальную бумагу. Аккуратно наливают в стакан приготовленный элюент в количестве, достаточном для погружения в него хроматографической пластики примерно на 0,5 см. Фильтровальную бумагу рекомендуется смочить элюентом, что должно привести к более быстрому подъему элюента по пластинке и повысить воспроизводимость результатов. Стакан закрывают стеклянной крышкой.

Отрезают нижний край хроматографической пластинки шириной около 1 см и расчерчивают пластинку по образцу, приведенному на рис. 7.1. Стартовую линию проводят на расстоянии 10-12 мм от нижнего края пластинки, стараясь не нарушить слой сорбента. Вертикальные разделительные линии прочерчивают скальпелем, чтобы удалить слой сорбента. Ширина полосок примерно 15 мм. В верхней части пластинки обозначают аминокислоты-стандарты и номер смеси меченых аминокислот, выданных для анализа.

С помощью капилляра или микропипетки наносят на линию старта 1-2 капли растворов аминокислот-стандартов. Надевают перчатки. Переносят хроматографическую пластинку на кювету с радиоактивными растворами. С помощью капилляра или микропипетки наносят на линию старта 4 капли раствора смеси меченых аминокислот. Пластинку с нанесенными стандартами и радиоактивной смесью аминокислот ставят в хроматографический стакан. После этого можно снять перчатки, так как дальнейшие операции с хроматографической пластинкой не представляют опасности (активность нанесенного¹⁴С незначительна).

Через 30-60 минут, когда элюент поднимется по хроматографической пластинке примерно на 10 см, пластинку извлекают из хроматографического стакана, карандашом отмечают линию фронта элюента и высушивают. Ножницами отрезают полоску, на которой проводили разделение смеси меченых аминокислот. Полоски со стандартами аминокислот опрыскивают раствором нингидрина или наносят раствор нингидрина на полоски с помощью пипетки. Пластинку, обработанную раствором нингидрина, оставляют при комнатной температуре до появления фиолетовых и краснофиолетовых пятен – продуктов реакции нингидрина с аминокислотами. Для ускорения проявления пятен пластинку можно осторожно нагреть под лампой или в сушильном шкафу. При этом необходимо контролировать процесс, так как при «перегреве» нингидрин может окрасить всю пластинку. Контуры полученных пятен обводят карандашом и слой сорбента заклеивают скотчем.

Внимание! Нингидрин вступает в реакцию с аминокислотами, входящими в состав белков кожи, окрашивая руки в красно-фиолетовый цвет. Рекомендуется выполнять операции с растворами нингидрина в перчатках.



Рис. 7.1. Вид хроматографической пластинки, используемой в работе. Пояснения в тексте.

При наличии йодной камеры положение веществ на пластинке можно определить по адсорбции паров йода. Для полного удаления элюента пластинку сначала ненадолго помещают в нагретый сушильный шкаф, а затем - в йодную камеру до проявления пятен на пластинке. Обнаруженные на пластинке пятна обводят карандашом. **Определение радиоактивности аминокислот на пластинке с помощью сканера радиоактивности:** Готовят ленту скотча, размер которой чуть больше длины хроматографической пластинки. С помощью пипетки наносят 0,10÷0,15 мл сцинтилляционной жидкости Scintilene BD на пластинку с радиоактивностью таким образом, чтобы жидкость равномерно пропитала слой сорбента от старта до фронта хроматограммы. Аккуратно прикладывают полоску сорбентом к липкой стороне ленты скотча, заворачивают оставшиеся части ленты вокруг хроматограммы. Образованный скотчем футляр не позволяет испаряться сцинтилляционной жидкости и делает дальнейшую работу с пластинуой безопасной. Под руководством преподавателя проводят сканирование хроматограммы на приборе «БетаХром». Данные сканирования записывают в виде текстового файла.

На хроматограммах стандартов определяют R_f аминокислот как отношение $R_f = l/L$, где l – расстояние от стартовой линии до центра пятна соответствующей аминокислоты; L – расстояние от стартовой линии до фронта элюента (см. рис. 7.1). С помощью Microsoft Excel или любой другой программы по математической обработке данных строят графики зависимости интенсивности сигнала от положения детектора над пластинкой (рис. 7.2). Так как программа Power Graph фиксирует время сканирования, то



Рис. 7.2. Распределение радиоактивности по хроматографической пластинке, полученное из данных сканирования. Радиоактивность меченых соединений пропорциональна площади пиков S₁, S₂ и S₃.

необходимо преобразовать время в расстояние с помощью коэффициента, определяемого делением длины отсканированной части хроматограммы на время сканирования. Определяют фоновую линию на графике, исходя из интенсивности сигнала до стартовой линии и выше фронта элюента. В идеале фоновые значения сигнала должны быть постоянны во всем интервале сканирования. Однако часто наблюдается слабый дрейф фоновой линии, связанный с тем, что сканирование начали, не дождавшись выхода ФЭУ на стабильный режим работы. В этом случае требуется экстраполяция фоновой линии некоторой функцией, что поможет точнее определить площади пиков на графике. На полученном графике идентифицируют пики радиоактивности аминокислот (по величинам R_f) и определяют площади пиков, суммируя значения интенсивности сигнала в пределах пика за вычетом фона, определяемого по огибающей (см. рис. 7.2). Рассчитывают процентное соотношение радиоактивностей аминокислот, находящих-ся в исследуемой смеси:

%(X) =
$$\frac{S_X}{\sum_i S_{X,i}} \cdot 100\%$$
 (7.1), где

 S_X – площадь пика аминокислоты X; $\sum_i S_{X,i}$ – сумма площадей пиков всех аминокис-

лот, идентифицированных на хроматограмме.

Определение радиоактивности аминокислот на пластинке с помощью ЖСспектрометра

Возможно два варианта выполнения работы. В первом варианте пластинку смачивают сцинтиллятором и заклеивают скотчем, как описано в разделе по работе со сканером радиоактивности. Затем пластинку размечают с помощью линейки и фломастера на узкие полоски шириной 5-10 мм, разрезают и с помощью пинцета помещают полоски в сцинтилляционные флаконы так, чтобы они располагались слоем сорбента вверх. Флаконы закрывают крышками, на которых фломастером указывают номера изучаемой смеси аминокислот и номера полосок хроматограмм. Проводят измерение радиоактивности флаконов с помощью ЖС-спектрометра. Строят гистрограмму распределения активности по длине хроматографической пластины (Microsoft Excel или OriginPro).

Во втором варианте пластинку с разделенной смесью меченых аминокислот сначала ненадолго помещают в нагретый сушильный шкаф для полного удаления элюента, затем помещают в йодную камеру на 1-3 минуты до проявления пятен на пластинке. Обнаруженные на пластинке пятна обводят карандашом. Пластинку снова помещают в сушильный шкаф и нагревают для удаления йода. Затем пластинку заклеивают скотчем, участки пластинки с пятнами аминокислот вырезают, помещают во флаконы и добавляют к ним сцинтилляционную жидкость в количестве, которое укажет преподаватель. Закрывают флаконы крышками, на которые наносят соответствующие обозначения. Проводят измерение радиоактивности флаконов с помощью ЖС-спектрометра. Рассчитывают процентное соотношение радиоактивностей аминокислот, находящихся в исследуемой смеси.

РАБОТА 8. ОПРЕДЕЛЕНИЕ ЭФФЕКТИВНОСТИ РЕГИСТРАЦИИ ТРИТИЯ И УГЛЕРОДА-14 ПО СПЕКТРАМ, ПОЛУЧЕННЫМ С ПОМОЩЬЮ ЖИДКОСТНО-СЦИНТИЛЛЯЦИОННОГО СПЕКТРОМЕТРА

В настоящее время в научных исследованиях в области химии и биохимии широко используются соединения, меченные ³Н и ¹⁴С. Одной из причин этого является то, что указанные радионуклиды можно ввести практически в любую органическую молекулу. Кроме того, при работе с ³H и ¹⁴C, испускающих при распаде низкоэнергетические β-частицы, практически не требуется защита от внешнего облучения, что упрощает проведение эксперимента. Вместе с тем надежная регистрация излучения ³Н и ¹⁴С жидкостно-сцинтилляционных спектрометров возможна только с помощью (ЖС-спектрометров). Для этого раствор препарата смешивают с органической жидкостью (сцинтиллятором), обладающей способностью преобразовывать энергию излучения в кванты света видимой области спектра. С помощью ФЭУ световые импульсы преобразуются в электрический сигнал, который после усиления и дискриминации фиксируется в памяти спектрометра. В итоге регистрируется распределение импульсов по энергиям, то есть определяется спектр излучения.

Основой сцинтиллятора (растворителем) обычно используют ароматические углеводороды (толуол, ксилолы). Ранее в качестве основы сцинтиллятора широко использовали раствор нафталина в диоксане. Для придания способности преобразовывать энергию излучения в кванты света видимого диапазона к растворителю добавляют вещества-сцинтилляторы: 2,5-дифенилоксазол (РРО), 2,5-дифенил-1,3,4-оксадиазол (PPD), 2-(4-бифенилил)-5-фенилоксазол (PBO) и др. Для корректировки испускаемого спектра фотонов в область, наиболее соответствующую максимальной эффективности фотокатода ФЭУ, используют также добавки вторичных сцинтилляторов. Наиболее широко для этих целей применяется 1,4-бис-2-(5-фенилоксазолил)бензол (РОРОР). В настоящее время в состав коммерческих сцинтилляционных жидкостей в качестве растворителя используют 1,2,4-триметилбензол (псевдокумол), диизопропилнафталин, фенилксилилэтан, додецилбензол. Для того чтобы сцинтилляционная жидкость хорошо смешивалась с водными растворами, в нее добавляют поверхностно-активные вещества (ПАВ) как неиногенные (например, эфиры полиэтиленгликоля и алкилфенолов), так и ионные. Добавки ПАВ способствуют образованию устойчивой эмульсии воды в сцинтилляционной жидкости, что обеспечивает высокую эффективность регистрации даже для излучений с низкой энергией.

Одно из основных достоинств ЖС-метода – возможность проводить измерения αи β-излучающих препаратов, имеющих очень низкую абсолютную активность. Это объясняется тем, что исследуемое вещество вводится в рабочий объем детектора и, следовательно, значения коэффициентов ослабления, самоослабления, обратного рассеяния и геометрического (для гомогенных систем) практически равны единице. Таким образом, коэффициент регистрации φ в уравнении (2.1) определяется только эффективностью детектора ε, которая в случае α- и β-частиц может приближаться к 100%.

При введении в жидкий сцинтиллятор пробы вместе с исследуемым веществом вносится растворитель и другие вещества, которые могут влиять на регистрацию излучения. Добавки, снижающие вероятность преобразования энергии ядерного излучения в регистрируемые с помощью ФЭУ фотоны, называют гасителями. Различают процессы химического гашения, когда гасители снижают вероятность передачи энер-

гии возбуждения молекулам сцинтиллятора, и цветового гашения, когда гасителями поглощаются фотоны. На рисунке 8.1 представлена схема преобразования энергии βизлучения (на примере распада трития) в фотоны видимого света, которые регистрируются ФЭУ, и влияние на этот процесс гасителей. Добавки гасителей приводят к уменьшению числа квантов света, попадающих на ФЭУ, смещению регистрируемого спектра в область низких энергий и снижению эффективности регистрации. На рисунке 8.2 показано, как изменяется форма регистрируемого прибором спектра излучения трития при добавке гасителя.



Рис. 8.1. Схема преобразования энергии β-излучения в фотоны видимого света при его регистрации с помощью жидкостных сцинтилляторов (на примере распада трития).



Рис. 8.2. Изменение регистрируемого спектра β-излучения трития при добавке гасителя.

Между формой регистрируемого спектра излучения и эффективностью є существует однозначная связь. Таким образом, ЖС–спектрометрия имеет важное преимущество, которое заключается в том, что из полученного спектра можно определить эффективность регистрации радионуклида. Для определения параметров гашения обычно анализируют соотношение скоростей счета в различных энергетических каналах спектрометра. Для препаратов с низкой скоростью счета измеряют спектр излучения внешнего стандарта (например, ²²⁶Ra, ¹⁵²Eu, ¹³⁷Cs, ¹³³Ba), регистрируемый
спектр комптоновского рассеяния γ-квантов которого также смещается в область низких энергий при добавках гасителя.

В данной работе предполагается выявить влияние различных добавок на регистрируемый спектр излучения 3 H и 14 C.

Цель работы

Построение кривых гашения ³H и ¹⁴C по изменению скорости счета препаратов при добавке гасителей. Определение радиоактивности растворов ³H и ¹⁴C.

Оборудование и реактивы

ЖС-спектрометры RackBeta 1215 (LKB Wallac, Финляндия) и TRI-CARB 1600 (PerkinElmer);

флаконы сцинтилляционные;

микропипетки переменного объема на 200 и 1000 мкл, наконечники к ним; сцинтилляционная жидкость ЖС-8;

раствор меченного по ³Н вещества с известной удельной радиоактивностью; раствор меченного по ¹⁴С вещества с известной удельной радиоактивностью; гасители: 2% раствор нитробензола в этаноле (химический гаситель), 1% раствор голубого декстрана или другого окрашенного вещества (цветовой гаситель).

Выполнение работы

Работу проводят в подгруппах по 2-3 студента. Каждая подгруппа использует серию из 5 флаконов. Тип гасителя, раствор какого радионуклида, количество вносимой во флаконы сцинтилляционной жидкости, раствора радиоактивного вещества и раствора гасителей сообщается преподавателем.

В каждый флакон вносят сцинтилляционную жидкость, с помощью микропипетки добавляют растворы меченных тритием или ¹⁴С веществ, измеряют радиоактивность флаконов на ЖС-спектрометре. Затем добавляют в каждый флакон серии раствор нитробензола (химический гаситель) или раствор окрашенного вещества (цветовой гаситель) в количестве, которое укажет преподаватель. Проводят повторное измерение флаконов на ЖС-спектрометре.

Добавляют во флаконы по 100 мкл раствора с неизвестной радиоактивностью и опять проводят их измерение.

Обработка полученных результатов

Результаты измерения записываются в виде текстового файла, скорость счета препарата в котором выражается в единицах имп/мин (СРМ от англ. counts per minute). Спектрометры RackBeta и TRI-CARB 1600 дискриминируют регистрируемые импульсы по энергетическим каналам в диапазоне от 0 до 4 МэВ. Для удобства обработки результатов рассматриваем сумму зарегистрированных импульсов в трех диапазонах энергий (рис.8.3):

A) 0,1-156 кэВ (обозначение СРМА для TRI-CARB 1600 и СРМ1 для RackBeta 1215) – это скорость счета препарата (*I*);

B) 2-18,5 кэВ (СРМВ и СРМ2) – скорость счета ³Н в области высоких энергий;
 C) 18,5-156 кэВ (СРМС и СРМ3) - счета препарата ¹⁴С в области высоких энергий.

Для первой серии измерений (в сцинтилляционную жидкость добавили только радиоактивный раствор) рассчитывают по данным СРМА (СРМ1) среднее значение скорости счета внесенных проб, *Ī*, стандартное отклонение (1.17) и погрешность, соответствующую 95%-ной доверительной вероятности (1.19).



Рис. 8.3. Обозначения энергетических диапазонов при регистрации спектров β -излучения ³Н и ¹⁴С.

Учитывая равенство $\eta = k = S = q = 1$, эффективность детектора к излучению ³Н и ¹⁴С определяют как:

$$\boldsymbol{\varepsilon} = \boldsymbol{\bar{I}}/\boldsymbol{A} \tag{8.1},$$

где A – радиоактивность пробы в единицах расп/мин = DPM (decay per minute), ее рассчитывают из данных, предоставленных преподавателем.

Сопоставляют полученные значения доверительной погрешности с паспортными характеристиками микропипеток. Если погрешность определения \overline{I} превышает паспортные характеристики пипетки, то это означает, что отбор проб был сделан не очень точно. Для уменьшения погрешности определения эффективности регистрации в дальнейших экспериментах радиоактивность каждой пробы (A_i) по зарегистрированной скорости счета и значению ε , полученному ранее по (8.1):

$$A_i = I_i / \varepsilon \tag{8.2}$$

Измерения флаконов с добавками гасителей позволяют определить связь между изменением соотношения скорости счета в различных энергетических диапазонах и эффективностью регистрации. Эффективность регистрации β–частиц для каждого флакона определяют по изменению скорости счета после добавки гасителя:

$$\varepsilon_i = I_i^{(+\text{facuteab})} / A_i \tag{8.3}$$

В качестве характеристики загашенности спектра трития используют отношение скорости счета в окне В к скорости счета в окне А:

$$\boldsymbol{\delta}_{i} \left({}^{3}\mathrm{H} \right) = \boldsymbol{I}_{i}^{B} / \boldsymbol{I}_{i}^{A} \tag{8.4}$$

Для ¹⁴С используют аналогичное отношение скорости счета в окне С к скорости счета в окне А:

$$\boldsymbol{\delta}_{i} \begin{pmatrix} \mathbf{^{14}C} \end{pmatrix} = \boldsymbol{I}_{i}^{\boldsymbol{C}} / \boldsymbol{I}_{i}^{\boldsymbol{A}} \tag{8.5}$$

Строят калибровочные кривые зависимости эффективности регистрации (ε_i) от величин δ_i , полученных по формулам (8.4) и (8.5) для ³Н и ¹⁴С. Сопоставляют полученные кривые для разных типов гасителей и для двух радионуклидов.

По разности скорости счета после добавки контрольного раствора и с учетом полученной кривой гашения рассчитывают радиоактивность контрольного раствора (среднее значение по всей серии и погрешность, соответствующую 95%-ной доверительной вероятности).

РАБОТА 9. ОПРЕДЕЛЕНИЕ КОЭФФИЦИЕНТА ДИФФУЗИИ (САМОДИФФУЗИИ) ИОНОВ В РАСТВОРЕ НА ПРИМЕРЕ ОПРЕДЕЛЕНИЯ КОЭФФИЦИЕНТА САМОДИФФУЗИИ ИОДИД-ИОНОВ

При разработке промышленных химических реакторов большое значение имеют сведения о такой важной характеристике массопереноса вещества, как его коэффициент диффузии (самодиффузии).

Знание коэффициента диффузии (самодиффузии) в твердых и жидких средах дает возможность сделать важные выводы о массе диффундирующих веществ, силах межмолекулярного взаимодействия и других особенностях диффузионной среды. Определение коэффициентов диффузии одного вещества в среде другого вещества может быть выполнено не только с использованием радиоактивных индикаторов, но и с использованием обычных химических методик, позволяющих определять ультрамалые количества того или иного вещества. В данном случае радиоактивные индикаторы обеспечивают необходимую точность результатов при сравнительно небольших затратах времени и средств.

Другая задача – определение коэффициента самодиффузии того или другого иона, входящего в состав вещества, составляющего диффузионную среду, в среде того же вещества принципиально может быть решена только с использованием радиоактивных нуклидов – меток. Диффузионное поведение разных нуклидов одного и того же элемента в подавляющем большинстве случаев различается мало (изотопные эффекты незначительны), и поэтому обычно принимают, что диффузия радиоактивных атомов (ионов или молекул, содержащих радионуклид-метку) протекает с такой же скоростью, что и диффузия стабильных атомов исследуемого элемента.

Допустим, что вещество при постоянной температуре диффундирует вдоль координаты x. В таком случае концентрация вещества C во времени t вдоль координаты xподчиняется уравнению Фика:

$$\frac{dC}{dt} = \frac{\partial}{\partial x} \left(D \frac{\partial C}{\partial x} \right)$$
(9.1),

где *D* – коэффициент диффузии (самодиффузии) вещества, единица измерения в CИ – м²/с.

Если предположить, что $\partial D/\partial x = 0$ (такое предположение оправдано, в частности, при изучении как самодиффузии, когда различиями в концентрации от точки к точке всегда можно пренебречь, так и диффузии, когда речь идет о перемещении ничтожного количества меченного радионуклидом вещества в твердой или жидкой фазе), то уравнение (9.1) принимает более простой вид:

$$\frac{dC}{dt} = D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} \tag{9.2}$$

Входящий в уравнение (9.2) коэффициент *D* следующим образом зависит от абсолютной температуры *T*, при которой происходит диффузия (самодиффузия):

$$D = D_o \exp(-\frac{E}{RT})$$
(9.3),

где D_o – постоянная, не зависящая от температуры, R – газовая постоянная, E – энергия активации диффузии.

Решение уравнения (9.2) зависит от условий эксперимента (от граничных условий). Для нахождения коэффициента диффузии (*D*) ионов (молекул) в растворе предложен капиллярный метод, который позволяет на основании результатов сравнительно простого эксперимента найти решение этого уравнения и определить значение *D*.

При использовании капиллярного метода для нахождения значения *D* используют капилляр известной длины 1, запаянный с одного конца. Диаметр капилляра должен быть менее 0,9 мм. Экспериментально доказано, что при таком диаметре выход вещества из находящегося в капилляре раствора в жидкость, окружающую капилляр, происходит только за счет диффузии (сказанное справедливо, если жидкость перемешивают при скорости вращения мешалки не выше 400-500 об/мин).

Капилляр заполняют меченным радионуклидом веществом с известной регистрируемой активностью I_0 и вносят его в термостатированный сосуд с жидкостью, в среде которой хотят изучить диффузию. Объем жидкости в сосуде в тысячи раз больше объема капилляра. Так как жидкость в сосуде постоянно перемешивают, можно принять, что концентрация радиоактивных атомов в жидкости, окружающей капилляр, в ходе всего эксперимента остается равной нулю.

Решение уравнения (9.2) для данных граничных условий приводит к уравнению:

$$\frac{C}{C_o} = \frac{8}{\pi^2} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{1}{(2n+1)^2} exp\left[-\frac{(2n+1)^2 \pi^2 Dt}{4l^2} \right]$$
(9.4),

где C – концентрация диффундирующего вещества в растворе после завершения диффузии (по истечению времени t), C_0 – начальная концентрация раствора в капилляре, D – коэффициент диффузии (самодиффузии), l – длина капилляра, n – целое число (0, 1, 2, 3 и т.д.).

Концентрации растворов радиоактивного вещества в капилляре пропорциональны объемным удельным активностям раствора. Объем капилляра в ходе опытов, естественно, постоянен, и поэтому можно записать, что $C/C_o = I/I_o$, где I – радиоактивность раствора в капилляре после диффузии (по истечению времени t), I_o – начальная радиоактивность раствора в капилляре.

Если $Dt/l^2 > 0,2$ (или $I/I_o < 0,5$), то можно ограничиться первым членом ряда (9.4). При n=0 получаем:

$$\frac{I}{I_o} = \frac{8}{\pi^2} exp\left(-\frac{\pi^2 Dt}{4l^2}\right)$$
(9.5)

После несложных преобразований получаем формулу для определения D:

$$D = -\frac{l^2}{1,071 \cdot t} lg\left(\frac{\pi^2}{8} \frac{I}{I_o}\right)$$
(9.6)

Длину капилляра l обычно выражают в сантиметрах, а время t – в секундах.

В тех случаях, когда для определения значения коэффициента диффузии D_{μ} в жидкой среде трудно или невозможно приготовить соединение с нужной меткой, можно воспользоваться методом неизотопного индикатора. При этом должна существовать возможность приготовления меченого соединения с требуемой удельной активностью, пространственное строение молекул (ионов) которого было бы близко к пространственному строению молекул (ионов) исследуемого (немеченого) вещества. Далее капиллярным методом находят коэффициент диффузии в жидкости синтезированного меченого вещества D_{μ} и рассчитывают значение D_{μ} , используя соотношение:

$$D_{_{\mathcal{M}}}\eta_{_{\mathcal{M}}}\cdot\sqrt{M_{_{\mathcal{M}}}}=D_{_{\mathcal{H}}}\eta_{_{\mathcal{H}}}\cdot\sqrt{M_{_{\mathcal{H}}}}$$
(9.7),

где *D* – коэффициент диффузии, η – вязкость раствора, *M* – молекулярная масса; индекс *м* отвечает меченому соединению, а индекс *н* – немеченому.

Цель работы

Определение коэффициента самодиффузии иодид-иона в растворе иодида натрия Оборудование и материалы Радиометрическая установка с колодцевым сцинтилляционным детектором. Прибор для определения коэффициента самодиффузии. Термостат. Магнитная мешалка. Два капилляра с внутренним диаметром 0,8÷0,9 мм. Микропипетки. Пинцет. Пробирки для измерения активности капилляров. Стакан на 100 мл.

Раствор NaI или KI с концентрацией 0,01 моль/л, содержащий ¹³¹I; раствор NaI (или KI) с концентрацией 0,01 моль/л.

Выполнение работы

1. Преподаватель проводит дополнительный инструктаж по технике безопасности при работе с радиоактивными веществами в открытом виде.

2. Получают у преподавателя или лаборанта два капилляра и две пробирки-кюветы в пластмассовой подставке. Длина капилляров указана в находящейся в практикуме таблице. Нумеруют подставку и пробирки, записывают номера пробирок, номера капилляров и их длину на листе бумаги. Отмечают, какой капилляр в какую стеклянную пробирку помещен. Далее на радиометрической установке, снабженной сцинтилляционным детектором «с колодцем», измеряют фон стеклянных пробирок с капилляром. Если фон оказывается в пределах нормы (значение фона, отвечающее норме, узнают у преподавателя), то записывают результаты измерений в табл. 9.1 и продолжают с капиллярами дальнейшую работу. В противном случае получают новые капилляры и операцию измерения их фона повторяют.

3. Располагают пластмассовую подставку с пробирками, в которых находятся капилляры, на кювете. Ставят на кювету стакан с водой. Надевают защитные резиновые перчатки. Выбирают пипетку с иглой, проверяют ее работоспособность. Размещают капилляр на подставке в вертикальном положении открытым концом вверх. Полностью выдавливают из пипетки воду и заполняют её раствором, содержащим иод-131, с молярной концентрацией 0,01 моль/л. Опираясь на стол локтями, вводят иглу пипетки с радиоактивным раствором в капилляр до самого его дна.

4. Слегка надавливая на пипетку, одновременно медленно вынимают иглу пипетки из капилляра. Следят за тем, чтобы в капилляре не появились пузырьки воздуха. При обнаружении пузырьков иглу вновь опускают до дна капилляра и операцию по заполнению капилляра радиоактивным раствором повторяют. Когда игла пипетки извлечена, на срезе полностью заполненного капилляра должна находиться полусферическая «шапочка» из радиоактивного раствора. Капилляр с помощью пинцета ополаскивают в стакане с водой и затем переносят в пробирку для измерения радиоактивности. Заполняют второй капилляр.

5. Начальную регистрируемую активность (I_0) находящихся в пробирках капилляров измеряют на сцинтилляционном детекторе с колодцем. Каждое измерение продолжительностью по 10 с повторяют 3 раза. Записывают в лабораторный журнал (табл. 9.1) номер капилляра, его длину и результаты измерений регистрируемой активности I_0 .

6. Заполненный радиоактивным раствором капилляр с известной начальной радиоактивностью I_0 помещают в термостатированный 0,01 моль/л раствор NaI (или KI), диффузию в котором иона иода-131 изучают. Отмечают время начала диффузионного процесса.

7. Через 2 – 2,5 ч (чем больше продолжительность диффузии, тем точнее результат^(*)) капилляры извлекают из термостатированного раствора и помещают в соответствующие пробирки. В лабораторном журнале отмечают время завершения диффузии. Измеряют радиоактивность капилляров (*I*), как это было описано выше. Результаты измерений записывают в таблицу.

Таблица 9.1

N⁰	Длина		Скорость счета, имп/с					
капилляра	<i>l</i> , см	I_{ϕ}	I_o	$(\bar{I}_o - \bar{I}_\phi)^*$	Ι	$(\bar{I} - \bar{I}_{\phi})^*$		

Результаты измерений активности капилляров

* разность среднего значения скорости счета \bar{I}_{o} (или \bar{I}) и среднего значения фона \bar{I}_{d}

8. По полученным средним значениям ($\bar{I}-\bar{I}_{\phi}$) и ($\bar{I}_o-\bar{I}_{\phi}$), зная длину капилляра *l* и продолжительность диффузии *t*, по формуле (9.6) рассчитывают значение *D*. Полученные результаты вместе с результатами 3 - 4 других студентов обрабатывают как единый массив параллельных измерений. Находят среднее значение *D*, отвечающее выбранной температуре, и его погрешность, отвечающую 95%-ой доверительной вероятности (см. формулы 1.17, 1.19).

^{*} Полученный результат будет тем точнее, чем большее время протекает диффузия и чем длиннее капилляры. Увеличение длины капилляров до $4\div5$ см позволяет снизить вклад краевых эффектов в получаемые значения D, а увеличение длительности диффузии t до 48-60 ч (при длине капилляров $4\div5$ см) приводит к уменьшению отношения I/I_o и к снижению связанной с этим отношением погрешности нахождения D при использовании формулы (9.6).

РАБОТА 10. ОПРЕДЕЛЕНИЕ СТЕПЕНИ ОКИСЛЕНИЯ И ЛОКАЛЬНОГО ОКРУЖЕНИЯ АТОМОВ ЖЕЛЕЗА (ОЛОВА) В НЕОРГАНИЧЕСКИХ СОЕДИНЕНИЯХ МЕТОДОМ ЯДЕРНОЙ ГАММА-РЕЗОНАНСНОЙ СПЕКТРОСКОПИИ

10.1. Основные параметры мессбауэровских спектров

Ядерная гамма-резонансная спектроскопия основана на эффекте Мессбауэра - явлении испускания (в источнике) и поглощения (в поглотителе) γ-квантов ядрами атомов, связанных в твердом веществе, без потери части энергии излучения на отдачу. Вероятность протекания такого процесса излучения называют *f*-фактором (*f*'фактором в случае поглощения) или коэффициентом Лэмба-Мессбауэра.

Для наблюдения эффекта Мессбауэра используют низколежащие (энергия γ -квантов $E_{\gamma} \leq 200$ кэВ) ядерные уровни, естественная ширина которых составляет $10^{-6}-10^{-9}$ эВ. Среди множества мессбауэровских изотопов оптимальные ядерные свойства для проведения химических исследований имеют, прежде всего, ⁵⁷Fe и ¹¹⁹Sn. При испускании (поглощении) γ -квантов без отдачи их распределение по энергии характеризуются очень малой шириной (Γ_0) и относительное энергетическое разрешение является рекордно высоким (например, для ¹¹⁹Sn отношение $\Gamma_0/E_{\gamma} = 1,04 \cdot 10^{-12}$), что дает возможность фиксировать незначительные изменения в энергии γ -переходов, вызываемые взаимодействием мессбауэровского ядра с окружающими его электронами (это взаимодействие получило название «сверхтонкого»). Такие изменения энергетических уровней измеряют, модулируя энергию γ -квантов за счет эффекта Доплера: движение источника относительно поглотителя с некоторой скоростью $\pm \nu$ приводит к изменению энергии излучения на величину:

$$\pm \delta_D = \frac{\pm \nu}{c} E_{\gamma} \tag{10.1},$$

где *с* – скорость света, знак "+" соответствует движению источника навстречу поглотителю.

Таким образом, в мессбауэровской спектроскопии энергия выражается в единицах скорости (в спектрах ⁵⁷Fe 1 мм/с соответствует энергии 4,80766·10⁻⁸ эВ, в спектрах ¹¹⁹Sn – энергии 7,96534·10⁻⁸ эВ). Мессбауэровский спектр представляет собой зависимость числа γ -квантов, проходящих через поглотитель - исследуемое вещество и зарегистрированных детектором, от скорости ν и отражает влияние электронной оболочки на энергию ядерных переходов. Минимальное число γ -квантов (импульсов) N_0 регистрируется при скорости ν , соответствующей совпадению модулируемой энергии испускаемых γ -квантов энергии возбужденного уровня ядер в поглотителе; максимальное число γ -квантов (импульсов) N_{∞} детектор фиксирует в отсутствие резонанса (см. рис 10.1). Для получения полной картины резонанса, как правило, достаточны небольшие скорости порядка нескольких сантиметров в секунду.

Линии, составляющие мессбауэровский спектр, характеризуются шириной на полувысоте, интенсивностью (площадью) и смещением относительно нулевой скорости, которое определяется, прежде всего, сверхтонкими взаимодействиями.

Экспериментальная ширина линии

Линия мессбауэровского спектра при небольшой толщине поглотителя имеет лоренцевскую форму. Полную экспериментальную ширину линии на половине ее максимальной высоты обычно обозначают Г и называют «шириной линии». Минимальное (теоретическое) значение Γ определяется удвоенной естественной шириной линии поглощения (испускания) Γ_0 и, например, в случае ⁵⁷Fe не может быть меньше $2\Gamma_0 = 0,194$ мм/с (в случае ¹¹⁹Sn - 0,642 мм/с)^(*). Однако на практике ширина линии всегда превышает значение $2\Gamma_0$ и зависит от многих факторов: некоторой неоднородности локального окружения ядер в источнике, дефектов структуры изучаемого вещества, стабильности работы установки, толщины образца и т.д.

Для оценки увеличения параметра Γ за счет эффективной толщины поглотителя t_a (при $0 < t_a \le 5$) можно воспользоваться следующей зависимостью:

$$\Gamma = \Gamma_{t \to 0} + 0.27 t_a \cdot \Gamma_0 \tag{10.2},$$

где $t_a = n\sigma_0 f'$ - эффективная толщина поглотителя; σ_0 – сечение поглощения излучения, выраженное в см², f' - вероятность поглощения γ - квантов без отдачи, n – число резонансных атомов в расчете на 1 см² поверхности поглотителя; $\Gamma_{t\to 0}$ – ширина линии, экстраполированная к нулевой толщине поглотителя.

Уравнение (10.2) позволяет найти $\Gamma_{t\to 0}$ (минимальное для данных условий измерения значение Γ) и оценить соответствующее увеличение ширины $\Delta\Gamma=0,27t_a\cdot\Gamma_0$. Для используемой в практикуме аппаратуры и стандартных источников значение $\Gamma_{t\to 0}$ в спектрах ⁵⁷Fe и ¹¹⁹Sn составляет ~0,22 и ~0,8 мм/с, соответственно. Эффективная толщина поглотителей обычно меньше значения $t_a=2$ и относительное увеличение ширины линии в этом случае не слишком велико ($\Delta\Gamma/\Gamma_{t\to 0} \leq 0,2$). Более значительное увеличение Γ , проявляющееся в спектрах, может указывать или на некоторую неоднородность ближайшего окружения резонансных атомов, или на появление неразрешенной сверхтонкой структуры, отражающей взаимодействие ядер со слабыми электрическими и магнитными полями исследуемого вещества.

Площадь под резонансной линией. Вероятность резонансного поглощения.

Площадь S_{MC} линии в мессбауэровском спектре тонкого поглотителя ($t_a \le 2$) определяется выражением:

$$S_{MC} = K \cdot \chi \cdot f \cdot t_a = K \cdot \chi \cdot f \cdot \sigma_0 n f'$$
(10.3),

где χ -доля резонансных γ -квантов в потоке квантов, зарегистрированных детектором; $K=(\pi\Gamma_0/2)$ - постоянная для данного нуклида величина; остальные обозначения в (10.2).

Из уравнения (10.3) следует, что при проведении серии измерений с одним и тем же источником ($K\chi f = \text{const}$) площадь S_{MC} пропорциональна произведению nf' ($\sigma_0 = \text{const}$). Следовательно, для определения содержания в изучаемом образце различных химических форм резонансного атома по площади соответствующих спектральных компонент необходимо знать значение f'-фактора, которое может быть определено двумя способами. Один из них – сравнение зависимости площади линий от концентрации n для реперного поглотителя и исследуемого образца, другой – анализ температурной зависимости площади линий в спектре изучаемого вещества.

Величина f' зависит от тепловых колебаний атомов и определяется отношением:

$$f' = exp\left[-\frac{4\pi^2 < u^2 >}{\lambda^2}\right]$$
(10.4),

где <*u*²> - средний квадрат смещения резонансного атома от положения равновесия в направлении γ-луча, λ- длина волны излучения.

Измерение *f*'-фактора и его температурной зависимости позволяет получить информацию об особенностях движения атомов, прочности химических связей (увели-

^{*} исключением являются спектры, зарегистрированные с помощью резонансных детекторов.

чение f' cooтветствует увеличению прочности связей), фазовых переходах, изменении локального окружения и т.п. Таким образом, важным достоинством мессбауэровской спектроскопии по сравнению с другими методами является возможность одновременного изучения электронной структуры, окружения резонансного атома и его динамических свойств.

Изомерный (химический) сдвиг

Изомерный (химический) сдвиг δ - смещение линии поглощения (центра тяжести спектра) относительно нулевой скорости, которое появляется, если химическое окру-



Рис. 10.1. Диаграмма энергетических уровней ядер в источнике и поглотителе и соответствующий мессбауэровский спектр. ($R_e^2 - R_g^2$)>0; $\delta E \ll E_0$; $\delta = E_A - E_S$.

жение мессбауэровских ядер в источнике и поглотителе не идентично.

Энергия ядерного уровня в взаимодействия результате заряда ядра конечных размеров с внешним электрическим полем смещается на величину δE по сравнению с энергетическим уровнем ядра, не имеющим электронной оболочки («голого» ядра) (рис. 10.1). Таким образом, энергия ядерного перехода как в источнике (E_S), так и в поглотителе (E_A) отличаются от энергии E₀, соответствующей «голому» ядру. Знак и величина б

определяется соотношением:

$$\delta = E_A - E_S = \frac{2\pi}{5} e^2 Z \left(R_e^2 - R_g^2 \right) \left\{ \left| \Psi(0) \right|_a^2 - \left| \Psi(0) \right|_s^2 \right\}$$
(10.5),

где *е* – заряд электрона (протона), *Ze* – заряд ядра, ($R_e^2 - R_g^2$) – изменение зарядового радиуса ядра при переходе из возбужденного состояния в основное; $|\Psi(0)|_a^2$ и $|\Psi(0)|_s^2$ – электронная плотность на ядре резонансного атома в поглотителе *A* и в источнике *S*, соответственно.

Как правило, определяют относительное изменение δ в ряду различных поглотителей при одном и том же (стандартном) источнике. Для конкретного нуклида значение $(R_e^2 - R_g^2)$ постоянно и сдвиг δ определяется только различием в значениях электронной плотности на ядрах, находящихся в стандартном источнике и поглотителе.

Плотность электронного заряда на ядре $|\Psi(0)|^2$ в основном определяется *s*-электронами различных оболочек, для которых орбитальный момент l = 0. Так, химический сдвиг для любого соединения двухвалентного олова (диапазон значений δ от +2,5 до +4,5 мм/с) существенно больше сдвига для соединений четырехвалентного олова ($-0,4 \div +1,5$ мм/с). Это связано в первую очередь с изменением числа валентных 5s-электронов при окислении (восстановлении): в предельном случае полностью ионных соединений атом Sn(II) имеет конфигурацию $4d^{10}5s^25p^0$, в случае Sn(IV) -

 $4d^{10}5s^05p^0$. Ковалентные соединения имеют промежуточное число 5s- электронов и изменение δ внутри каждой группы зависит от гибридизации и степени ионности образуемых оловом связей. Например, увеличение значения δ в ряду SnF₄, SnO₂, SnCl₄, SnS₂ соответствует увеличению числа 5s- электронов и отражает уменьшение ионности связи.

Зависимость величины δ от степени окисления отчетливо наблюдается и в случае высокоспиновых соединений железа, хотя электронные конфигурации атомов железа в них различаются, прежде всего, числом d–электронов, которые сами не дают вклада в $|\Psi(0)|^2$. Это объясняется тем, что последовательное удаление 3d-электронов при переходе от Fe(II) к Fe(VI) $(3d^6 \rightarrow 3d^5 \rightarrow 3d^4 \rightarrow 3d^2)$ вызывает увеличение $|\Psi(0)|^2$ за счет уменьшения экранировки s–электронов и, следовательно, уменьшает сдвиг.

Химический сдвиг зависит, таким образом, от заселенности валентных s-состояний атомов, участвующих в ядерном гамма-резонансе. Электроны других оболочек (p, d, f) могут в разной степени оказывать косвенное влияние на величину δ посредством частичного экранирования s-электронов или образования с s-орбиталями гибридных состояний, что в общем случае требует их учета при интерпретации химических сдвигов. Исследования величины δ позволяют делать выводы о характере химической связи, ее ковалентности, координационном числе, делокализации электронов и т.д.

Квадрупольное расщепление

Взаимодействие резонансного ядра, в котором распределение заряда отличается от сферического, с неоднородным электрическим полем приводит к энергетическому сдвигу и расщеплению уровней ядра, энергия которых определяется соотношением:

$$E_{Q} = \frac{eQV_{zz}}{4I(2I-1)} \Big[3m_{I}^{2} - I(I+1) \Big] (1 + \frac{\eta^{2}}{3})^{\frac{1}{2}}$$
(10.6),

где *eQ*- квадрупольный момент ядра, V_{zz} - значение главной компоненты градиента электрического поля на ядре, е – заряд электрона (протона), *I* – спин ядра, $m_I = I$, *I*-*I*, ...-*I*, η - параметр асимметрии ($\eta = V_{zz} - V_{yy}$)/ V_{zz} , $0 \le \eta \le 1$).

В результате в спектре появляется сверхтонкая структура, компоненты которой отвечают γ-переходам между подуровнями разных уровней (рис. 10.2), а число линий определяется спинами основного и возбужденного состояния ядра и правилами отбора для этих переходов.

Отклонение распределения ядерного заряда от сферического характеризуется квадрупольным моментом ядра eQ, причем знак Q зависит от того, "сплющено" или "растянуто" ядро относительно направления спина. Для многих мессбауэровских нуклидов (в том числе, для ⁵⁷Fe и ¹¹⁹Sn) спин основного состояния $I_g=1/2$, что отвечает сферической симметрии распределения ядерного заряда и, соответственно, нулевому значению eQ. Однако возбужденное состояние ($I_e = 3/2$) характеризуется несферическим распределением ядерного заряда и обладает квадрупольным моментом $eQ \neq 0$. В результате для перехода $I_g=1/2 \rightarrow I_e=3/2$ в мессбауэровском спектре появляются две линии (см. рис. 10.2), расстояние между которыми (квадрупольное расщепление Δ) в энергетической шкале равно:

$$E_{A1} - E_{A2} = \Delta = \frac{eQV_{zz}}{2} \left(1 + \frac{\eta^2}{3}\right)^{\frac{1}{2}}$$
(10.7)



Рис.10.2. Схема ядерных переходов при квадрупольном взаимодействии в случае $QV_{zz} > 0$ и соответствующий мессбауэровский спектр. E_S и (E_{A1} , E_{A2}) - энергии переходов в ядрах источника (s) и поглотителя (A).

Величина квадрупольного расщепления Δ позволяет (при известном значении η) экспериментально определить абсолютное значение константы квадрупольного взаимодействия eQV_{zz} . Значение градиента электрического поля (ГЭП) на ядре определяется следующими факторами:

- геометрией расположения и эффективными зарядами ионов, окружающих резонансное ядро в исследуемом веществе;
- присутствием частично заполненных несферических электронных оболочек (*p*, *d*, *f*) в самом резонансном атоме.

Таким образом, в общем случае квадрупольные взаимодействия мессбауэровского ядра содержат в себе информацию о структуре его атомного окружения в кристаллической решетке и о состоянии собственных валентных оболочек. Например, в высокоспиновых соединениях Fe(III) (наполовину заполненная 3d-оболочка) и в соединениях Sn(IV) распределение валентных электронов, как правило, сферически симметрично, а небольшое квадрупольное расщепление спектров некоторых из них обусловлено решеточным вкладом в ГЭП. Существенно большее квадрупольное расщепление наблюдается для высокоспиновых соединений Fe(II), где основной вклад в ГЭП дает неспаренный d-электрон ($3d^6$), и для соединений Sn(II), имеющих неподеленную электронную пару.

Количественная интерпретация данных по квадрупольному расщеплению часто оказывается, однако, очень сложной задачей и требует привлечения дополнительных сведений. Одновременное присутствие в мессбауэровском спектре исследуемого соединения химического сдвига и квадрупольного расщепления, на которые поразному влияют s- и p- электроны, позволяет получить более разностороннюю информацию о состоянии электронной оболочки резонансного атома и локальной структуре кристаллической решетки.

Магнитное сверхтонкое расщепление

Под действием магнитного поля H основное и возбужденное состояние ядра, обладающие соответствующим спином I и магнитным моментом μ , расщепляется на (2I+I) подуровней, энергия которых определяется соотношением:

$$E_m = -\frac{\mu H m_I}{I} = -g\mu_N H m_I \tag{10.8},$$

где магнитный момент $\mu = g\mu_N I$, g- ядерное гиромагнитное отношение для основного или возбужденного состояния, μ_N –ядерный магнетон, m_I – проекция спина на направление поля H ($m_I = I$, *I*-*I*, ...-*I*).



Рис. 10.3. Схема ядерных уровней ⁵⁷Fe: в отсутствие поля и градиента электрического поля ($H=0;V_{zz}=0$), в случае магнитного сверхтонкого ($H>0; V_{zz}=0$) и комбинированного электрического квадрупольного и магнитного сверхтонкого взаимодействия ($H>0; V_{zz} \neq 0; |\mu H| >> eQV_{zz}$). E_S - энергия перехода в ядрах источника; (**1-6**) – энергии переходов для ядер поглотителя. Мессбауэровский спектр соответствует случаю комбинированного взаимодействия.

На рис. 10.3 представлена схема ядерных уровней ⁵⁷Fe. В этом случае при поглощении резонансного γ -кванта ядро переходит из одного из подуровней основного состояния ($I_g = \frac{1}{2}$) на один из четырех подуровней возбужденного состояния ($I_e = \frac{3}{2}$). Шесть разрешенных дипольных переходов ($\Delta m=0, \pm 1$) приводят к появлению в мессбауэровском спектре магнитной СТС, состоящей из секстета линий. Расстояние между компонентами магнитной СТС (с учетом соответствующих переходов и значений g) позволяет определить поле H, действующее на резонансное ядро.

При одновременном участии ядра в магнитном и квадрупольном взаимодействиях расчет энергетических уровней и интенсивности соответствующих переходов усложняется. В частном случае, когда магнитное взаимодействие намного сильнее квадрупольного и электрическое поле имеет аксиальную симметрию, линии магнитной СТС сдвигаются на величину:

$$\delta_{\varrho} = \frac{eQV_{zz}}{4} \frac{3\cos^2 \theta - 1}{2} \tag{10.9},$$

где θ - угол между направлениями V_{zz} и H.

Если угол θ известен, спектр позволяет определить константу eQV_{zz} . Например, при $\theta=0$ значение eQV_{zz} равно разности расстояний между линиями 1-2 и 5-6 спектра (рис. 10.3).

Величина внутреннего поля зависит от различных структурных и электронных параметров: числа неспаренных d-электронов, характера химической связи резонансного атома, состава и геометрии катионного окружения и т.д. Таким образом, проявление сверхтонкого магнитного расщепления значительно увеличивает информативность мессбауэровских спектров, позволяя сделать выводы об особенностях электронной, кристаллохимической и магнитных структур изучаемых соединений.

Одна из важных задач, которая может быть решена с помощью мессбауэровской спектроскопии, – идентификация соединений и фаз, образующихся в тех или иных процессах. Значения химического сдвига δ , константы квадрупольного взаимодействия eQV_{zz} и поля H можно рассматривать как основные параметры, позволяющие идентифицировать соединения. К настоящему времени получены спектры огромного числа веществ и соответствующие параметры приведены в справочниках международного центра "Mössbauer Effect Data Center". Сопоставление полученных результатов с данными международной базы позволяет во многих случаях однозначно охарактеризовать состав и структуру локального окружения мессбауэровского атома, а также идентифицировать соединения мессбауэровских элементов.

10.2. Получение мессбауэровских спектров соединений железа и олова.

Цель работы

Практическое ознакомление с работой мессбауэровского спектрометра; определение степени окисления и локального анионного окружения атомов железа (олова) в их соединениях.

Оборудование и препараты

Мессбауэровский спектрометр Ms-110Em (или MC1101Э).

Источники резонансного ү-излучения: ⁵⁷Co(Rh) или Ba^{119m}SnO₃

Стандартные поглотители для калибровки шкалы скорости: Na₂[Fe(NO)(CN)₅]·2H₂O; α-Fe; α-Fe₂O₃.

Исследуемые соединения железа (FeSO₄, Fe₂(SO₄)₃, K₄[Fe(CN)₆], K₃[Fe(CN)₆] и др.) или олова (SnO, SnO₂, SnS₂ и др.). Контрольные образцы смеси этих веществ.

Выполнение работы

Настоящая работа выполняется, как правило, на двух занятиях. На первом студенты знакомятся с устройством и работой спектрометра, методикой получения и обработки спектров ЯГР, проводят калибровку скоростного диапазона. На втором проводят измерения и анализируют полученные спектры соединений железа или олова.

1. Методика регистрации спектров ядерного гамма-резонанса

Мессбауэровские измерения проводятся на спектрометре Ms-110Em. Блок-схема установки представлена на рис. 10.4.

Спектрометр функционирует в циклическом режиме: в пределах каждого цикла движение модулятора (1) соответствует изменению скорости движения источника (2) от максимального отрицательного до максимального положительного значения. Каждому *i*-тому каналу памяти накопителя (блок USB - 4) соответствует свой (задаваемый заранее) интервал скорости ($\Delta v = v_i$). В результате каждый цикл скоростной развертки позволяет получить «элементарный» мессбауэровский спектр, представляющий собой зависимость числа импульсов N_i , прошедших через исследуемое веществопоглотитель (3) при скорости v_i и зарегистрированных детектором (5), от номера канала.

Пересчет номеров каналов (n) в шкалу абсолютных скоростей (v, мм/с) осуществ-



Рис. 10.4. Блок-схема мессбауэровской установки.
1 – модулятор; 2 –источник γ-излучения;
3 – поглотитель; 4 – адаптер USB (электронные модули драйвера модулятора, накопителя импульсов, управления детектором); 5 – детектор; 6 - компьютер

ляется по калибровочным спектрам эталонных поглотителей с хорошо известной структурой сверхтонкого расщепления ядерных уровней. В программе управления спектрометром амплитуда скорости движения источника задается в относительных единицах. Например, запись «cod30» может соответствовать амплитуде от – 10 до +10 мм/с. Спектр эталона позволяет получить график линейной зависимости в координатах «v - n» и определить канал, соответствующий скорости v=0. Значения изомерных сдвигов б, полученные при обработке спектров исследуемых образцов, пересчитывают относительно центров тяжести спектров эталонных поглотителей, находящихся при комнатной температуре: α -Fe (для спектров ⁵⁷Fe) и $Ba^{119}SnO_3$ (для спектров ^{119}Sn).

. Для получения спектров используются источники γ–излучения:

 $Ba^{119m}SnO_3$ (спектрометрия ¹¹⁹Sn) и ⁵⁷Co, внедренный в металлическую матрицу (Rh или Pd, спектрометрия ⁵⁷Fe). Гамма-кванты регистрируются детектором сцинтилляционного типа, состоящим из тонкого (0,5 и 0,15 мм в случае ¹¹⁹Sn и ⁵⁷Fe, соответственно) кристалла NaI(Tl) и фотоэлектронного умножителя ФЭУ-93. Интенсивность линий мессбауэровского спектра (а, следовательно, и качество спектра) пропорциональна доле полезного (резонансного) излучения χ (см. уравнение (10.3)). Поэтому при мессбауэровском измерении выходные сигналы с ФЭУ «направляются» на вход дискриминатора (блок USB - 4), с помощью которого из общего фотонного спектра выделяются импульсы, отвечающие резонансным γ -квантам. В случае ¹¹⁹Sn и ⁵⁷Fe используются участки амплитудного спектра, включающие линии с энергией 23,8 и 14,4 кэВ, соответственно.

Исследуемые образцы (3) представляют собой порошкообразные вещества. Для проведения измерений их обычно помещают в кассету из органического стекла или запрессовывают в алюминиевую фольгу.

2. Подготовка спектрометра к работе

2.1. Закрепить мессбауэровский источник на штоке драйвера, поместить исследуемый образец (поглотитель - 3) в держатель между источником и детектором. В навеске исследуемого вещества должно содержаться примерно 25-50 мг железа или 10-20 мг олова (при площади поглотителя от ~ 2 до ~ 4 см²).

2.2. Включить компьютер (при этом одновременно подается электропитание на модули блока USB, детектор и модулятор). Включить блок USB.

3. Программа управления спектрометром представлена ниже в сжатой форме. Необходимые детали подскажет преподаватель.

3.1. Запустить управляющую программу Ms110Em.exe, которая обеспечивает управление всеми модулями спектрометра. При запуске на экране компьютера открываются 4 окна модулей (накопитель, дискриминатор, модулятор, криостат), из которых в каждый момент времени активно только одно.

3.2. Перейти в окно драйвера модулятора, в котором (по согласованию с преподавателем) выбрать и установить требуемую амплитуду скорости движения источника в зависимости от того, какое соединения предполагается исследовать. Нажать клавишу «пуск» - источник начнет движение по заданной программе.

3.3. Перейти в окно дискриминатора, задать напряжение на ФЭУ и коэффициент усиления детектора. Нажав клавишу «пуск», произвести измерение амплитудного спектра. Остановить набор и выделить, установив пороги дискриминации, рабочую область амплитудного спектра, отвечающую резонансным γ-квантам 14,4 кэВ (⁵⁷Fe) или 23,8 кэВ (¹¹⁹Sn). Повторить измерение, и убедившись в том, что окно сканирования выбрано верно, остановить набор амплитудного спектра.

3.4. Перейти в окно накопителя. Записать название спектра (имя файла). Для начала набора мессбауэровского спектра нажать клавишу «пуск».

3.5. Для остановки процесса измерения нажать клавишу «стоп» в окне накопителя, и для страховки сохранить спектр (хотя файл спектра автоматически запоминается компьютером в процессе съемки).

4. Получение спектров и расчет их параметров

Спектры исследуемых соединений железа (олова) набирают в изложенной выше последовательности (см. п.п. 2 и 3). Для математической обработки спектров используют различные программные приложения, например, UnivemMC. Краткое описание методики обработки спектра получают у преподавателя.

По калибровочным спектрам эталонных поглотителей определяют номер канала, соответствующий нулевой скорости, и интервал скорости, приходящийся на 1 канал («цена деления канала»). Используя программное приложение и параметры калибровки, рассчитывают изомерный сдвиг, квадрупольное расщепление и площади линий спектра. Полученные значения параметров δ и Δ сравнивают с литературными данными. Определяют степень окисления и возможный состав ближайшего анионного окружения мессбауэровских атомов. Если в исследуемом поглотителе обнаружено нескольких химических форм мессбауэровского элемента, определяют их содержание по площади соответствующих спектральных компонент, учитывая при этом значение f'-фактора (уравнение (10.3)).

РАБОТА 11. ОПРЕДЕЛЕНИЕ СОДЕРЖАНИЯ КАЛИЯ В СОЛЯХ И ПРИРОДНЫХ ОБЪЕКТАХ ПО ЕГО РАДИОАКТИВНОСТИ



Рис.11.1. Схема распада ⁴⁰К

Элемент калий помимо двух стабильных нуклидов ³⁹К и ⁴¹К (массовая доля 93,08 и 6,91%), содержит также радионуклид ⁴⁰К (0,012 %). Период полураспада ⁴⁰К 1,28·10⁹ лет, то есть он сохранился на Земле с момента ее образования и является первичным естественным радионуклидом. При распаде ⁴⁰К с вероятностью 89,3 % испускаются β -частицы с максимальной энергией 1,314 МэВ и с вероятностью 10,7 % фотоны с энергией 1,46 МэВ (см. схему распада на рис. 11.1). Один моль природного калия испускает каждую секунду 1089 β -частиц и 130 фотонов.

Калий является биогенным (жизненно необходимым) элементом. В норме концентрация ионов калия во внутриклеточном цитозоле составляет 140÷160 ммоль/л, во внеклеточной жидкости – 3÷5 ммоль/л. От соотношения концентрации К⁺ и других ионов зависит состояние нервно-мышечной возбудимости, сократительная способность миокарда, секреция желез пищеварительного канала. Ионы калия необходимы для функционирования многих внутриклеточных ферментов. Суточная потребность человека в калии составляет 2÷4 г, и полностью обеспечивается при нормальном режиме питания.

В организме человека (массой 70 кг) содержится около 160 г калия, и радиоактивность ⁴⁰К вносит заметный вклад во внутреннее естественное облучение человека (среднемировое значение ~1,54 мЗв/год), которое создается природными радионуклидами, попадающими с воздухом, пищей и водой внутрь организма. При этом короткоживущие продукты распада вдыхаемого ²²²Rn создают около 60% дозы внутреннего облучения, далее следуют ⁴⁰К (~13%), ²²⁰Rn и продукты его распада, ²¹⁰Po, ¹⁴C, ²³⁸U, ²³²Th и другие.

Для техногенных и природных радионуклидов нормируются допустимые значения их содержания в пищевых продуктах, питьевой воде и воздухе (²²²Rn и ²²⁰Rn). Пределы поступления радионуклидов в организм с учетом их распределения по компонентам рациона питания и питьевой воде, а также с учетом поступления радионуклидов через органы дыхания нормируются так, чтобы соответствующий предел дозы облучения населения составил не более 1,0 мЗв/год. Например, пределы годового поступления (ПГП) через органы пищеварения для ²³⁸U, ²³²Th и ²²⁶Ra ограничивают величинами 8,4, 2,2 и 0,67 кБк, для мягкого β-излучателя ¹⁴C – 630 кБк. Для ⁴⁰K в составе природной смеси изотопов ПГП не нормируется. Введено только ограничение в 24 кБк при поступлении ⁴⁰K дополнительно к природной смеси изотопов, равное годовому потреблению этого радионуклида человеком с пищей при нормальном питании.

Содержание калия в некоторых продуктах и их удельная радиоактивность по ⁴⁰К приведены в табл. 11.1.

Таблица 11.1

Продукты	%	Бк/г	Продукты	%	Бк/г
Чай	2,48	0,76	Орехи грецкие	0,66	0,20
Курага	1,88	0,57	Картофель	0,57	0,17
Какао-порошок	1,69	0,52	Грибы белые	0,45	0,14
Кофе в зернах	1,60	0,49	Бананы	0,40	0,12
Фасоль	1,10	0,34	Мед пчелиный	0,39	0,12
Изюм	1,02	0,31	Крупа гречневая	0,38	0,12
Кедровые орехи	0,78	0,24	Крупа перловая	0,17	0,05
Шпинат	0,77	0,24	Мука пшеничная	0,12	0,04
Горох	0,73	0,22	Крупа рисовая	0,10	0,03

Массовая доля калия в некоторых продуктах (%) и их радиоактивность

Для идентификации ⁴⁰К и определения его содержания в материалах и природных объектах обычно применяют γ-спектрометрию. Вместе с тем, в ряде случаев определить радиоактивность ⁴⁰К можно и по его β-излучению, в частности, с помощью счетчика Гейгера-Мюллера. В этом случае для правильной постановки эксперимента надо учитывать следующие обстоятельства:

1. Счетчик Гейгера-Мюллера регистрирует с той или иной эффективностью любое ионизирующее излучение, проникшее внутрь детектора. Наивысшая эффективность регистрации (до 100%) достигается для β- и α-частиц. Однако проникающая способность α-излучения очень мала, и для полного поглощения α-частиц природных радионуклидов исследуемый препарат достаточно экранировать плотной бумагой. Эффективность счетчиков Гейгера-Мюллера к γ-излучению не превышает, как правило, 1%.

Таким образом, хотя при интерпретации полученных результатов следует учитывать возможный вклад в скорость счета β - и γ -излучений других радионуклидов, существенно исказить измерение активности ⁴⁰К может только наличие в образце β излучающих нуклидов.

2. Скорость счета β -излучения пропорциональна концентрации радионуклида, если использовать препараты с толщиной, равной или больше ³/₄ максимального пробега β -частиц в веществе (см. раздел 2.1, метод насыщенных слоев, уравнение 2.5). Так как через слой $0,75R_{max}$ проходит менее 1% β -излучения, то в случае ⁴⁰К это условие регистрации выполняется для препаратов с толщиной более 0,45 г/см². Таким образом, для измерения скорости счета солей калия можно использовать препараты толщиной около 2 мм, для порошкообразных образцов с насыпной плотностью более 0,4 г/см³ - толщиной 1 см. При этом измерение серии препаратов необходимо проводить в одинаковых условиях (в частности, использовать препараты одинакового размера и толщины), соблюдая постоянство коэффициента регистрации φ .

Цель работы. Определение содержания калия в ряде солей неизвестного состава и идентификация этих соединений. Оценка содержания калия в пищевых продуктах.

Оборудование и материалы:

Радиометр с торцовым счетчиком Гейгера-Мюллера.

Кюветы для измерения.

Набор солей калия.

Пищевые продукты (кофе, чечевица и др.)

Выполнение работы.

1. Измеряют фон радиометрической установки.

2. Измеряют скорость счета ($I_{c,i}$) препаратов солей калия известного состава: KCl, KIO₃, K₂Cr₂O₇, K₂CrO₄;

3. Измеряют скорость счета ($I_{np,1}$) одного из трех препаратов солей калия неизвестного состава (номерами 1,2,3 могут быть зашифрованы K₂SO₄, KBr, KNO₃);

4. Измеряют радиоактивность (*I*_{*np*,2} и *I*_{*np*,3}) двух препаратов пищевых продуктов (кофе, чай, чечевица, изюм, фасоль, гречневая и рисовая крупа);

5. Измеряют скорость счета препарата зерна, выращенного на территории с повышенным содержанием 90 Sr и 137 Cs.

Все измерения проводят 4 раза, продолжительность каждого 100 с.

6. Рассчитывают средние значения скорости счета (имп/с) для солей калия известного состава ($\bar{I}_{c,i,}$), фона (\bar{I}_{ϕ}), а также солей калия неизвестного состава и пищевых продуктов ($\bar{I}_{np,i}$). Для каждого препарата находят средние значение скорости счета за вычетом фона: $\bar{I}_{9m,i} = \bar{I}_{c,i} - \bar{I}_{\phi}$ и $\bar{I}_{x,i} = \bar{I}_{np,i} - \bar{I}_{\phi}$. Рассчитывают погрешности ($\Delta_{\gamma,t}$) определения $\bar{I}_{9m,i}$ и $\bar{I}_{x,i}$ для 95%-ной доверительной вероятности, используя уравнения (1.19, 1.26 и 1.33) и табл. П.2.

7. Для серии солей известного состава строят график зависимости $\bar{I}_{_{9m,i}}$ от процентного содержания в них калия ($\omega_{_{9T,i}}$). Определяют коэффициент *В* линейной зависимости: $I_{_{9m}} = B \cdot \omega$

8. Вычисляют содержание калия (ω_i , %) в соли неизвестного состава и в пищевых продуктах: $\omega_i = (\bar{I}_{np,i} - \bar{I}_{\phi}) \cdot B^{-1}$

9. Рассчитывают доверительную погрешность полученных значений ω_i .

10. Используя значение массовой доли калия в неизвестной соли, определяют ее химический состав.

11. Сопоставляют найденные значения ω_i в пищевых продуктах с данными табл. 11.1 и делают вывод о возможности применения используемой методики для оценки содержания калия.

12. Определяют содержание калия в зерне, выращенном на загрязненной ⁹⁰Sr и ¹³⁷Cs территории (авария на Чернобыльской АЭС). Сравнивают полученный результат с данными табл. 11.1. Объясняют, почему рассматриваемую методику нельзя применять для определения содержания калия в образцах, загрязненных техногенными радионуклидами.

РАБОТА 12. ИЗУЧЕНИЕ АДСОРБЦИИ НА ПОВЕРХНОСТИ ТВЕРДЫХ ТЕЛ МЕТОДОМ РАДИОАКТИВНЫХ ИНДИКАТОРОВ

Радиоактивные индикаторы – удобный, а в ряде случаев единственный метод изучения адсорбции веществ на различных поверхностях и границах раздела фаз. Для исследования адсорбции органических веществ обычно применяют радионуклиды с мягким β -излучением (³H, ¹⁴C, ³⁵S), правила работы с которыми изложены в работе 7. Радиоактивность в этом случае измеряется с помощью жидкостных сцинтилляционных (ЖС) спектрометров, которые позволяют регистрировать радиоактивность от 1Бк.

Используя радионуклиды, количество вещества, адсорбированного твердым телом из раствора, можно определять двумя способами:

1) по радиоактивности твердой фазы;

2) по изменению удельной радиоактивности (концентрации) раствора адсорбата.

В первом случае количество адсорбированного вещества определяют непосредственно по радиоактивности твердой фазы, и при использовании соединений с высокой удельной радиоактивностью могут быть обнаружены сверхмалые количества адсорбата. Например, для содержащего тритий соединения с удельной радиоактивностью 1 ТБк/ммоль (в каждой молекуле один атом трития) с помощью ЖС спектрометрии можно определить до 10⁻¹⁵ моль адсорбированного вещества. Объектами исследования являются, как правило, вещества с малой адсорбционной емкостью, например, полимерные пленки. Максимальная эффективность регистрации излучения с помощью ЖС спектрометра в этом случае достигается тогда, когда пленки прозрачны для видимого света.

Если адсорбция определяется по радиоактивности твердой фазы (например, полимерной пленки), то адсорбент отделяют от раствора, помещают во флакон с жидким сцинтиллятором и измеряют скорость счета. Адсорбцию Γ (мг/м²) рассчитывают по формуле:

$$\Gamma = \frac{I}{\varepsilon \cdot m \cdot A_{\nu \partial} \cdot S_{\nu \partial}}$$
(12.1),

где I – скорость счета (за вычетом фона) адсорбента (имп/мин); $A_{y\partial}$ - удельная радиоактивность меченого соединения в расп./(мин·мг); m – масса адсорбента (г); $S_{y\partial}$ – удельная поверхность адсорбента (м²/г); ε - эффективность регистрации β-излучения (см. ниже).

Следует отметить, что для объективного измерения адсорбированной радиоактивности необходимо тщательно планировать и проводить эксперимент, в частности, учитывать возможность десорбция вещества при отделении адсорбента и промывания его от остатков раствора.

Во втором случае адсорбцию Γ (мг/м²) определяют по разности концентраций исходного и равновесного раствора адсорбата:

$$\Gamma = \frac{(c_0 - c) \cdot V}{m \cdot S_{vo}} \tag{12.2},$$

где c_0 и c – начальная и равновесная концентрация раствора (мг/мл), V – объем раствора (мл), m - масса адсорбента (г), S_{vo} - удельная поверхность адсорбента (м²/г).

Равновесную концентрацию раствора адсорбата, которая пропорциональна

удельной радиоактивности этого раствора, вычисляют по скорости счета (за вычетом ϕ она) его аликвотной части V_1 , используя зависимость вида:

$$c = \frac{I}{\varepsilon \cdot V_1 \cdot A_{\nu \partial}} = \frac{I_{o \delta}}{\varepsilon \cdot A_{\nu \partial}}$$
(12.3),

где I – скорость счета (имп/мин) раствора адсорбата объемом V_1 (мл); $I_{ob.}$ – объемная скорость счета (расп./мин·мл) равновесного раствора адсорбата; $A_{yd.}$ - удельная радиоактивность адсорбата в расп./(мин·мг); ε – эффективность регистрации β -излучения.

Таким же способом, измерив объемную скорость счета раствора до внесения адсорбента, можно установить и начальную концентрацию c_0 . Однако значение c_0 обычно рассчитывают, зная массу адсорбата и объем исходного раствора.

Необходимо отметить, что надежное определение величины адсорбции по способу 2) возможно только в случае значительного (более 10%) изменения концентрации раствора, так как относительная погрешность измерения радиоактивности может достигать нескольких процентов. Как правило, таким способом определяют адсорбцию на пористых и порошкообразных веществах с развитой поверхностью: активированном угле, силикагеле, гидроксиаппатите и др. При этом желательно использовать небольшие объемы раствора адсорбата.

При изучении адсорбция меченных тритием и/или углеродом-14 соединений с помощью ЖС спектрометра RackBeta 1215 эффективность регистрации ε можно установить с помощью «калибровочной кривой гашения» – зависимости эффективности регистрации β-излучения трития (углерода) от отношения скорости счета в энергетических каналах спектрометра. Проведение калибровки прибора описано в практической работе 8. В настоящей работе можно использовать калибровочные кривые, приведенные на рис. 12.1, которые получены для жидких сцинтилляторов на основе диоксана («Брей», ЖС-8), толуола (ЖС-106, ЖС-7А), ксилолов (OptiPhase, Ultima Gold).



Рис. 12.1. Кривая гашения для определения эффективности регистрации β-излучения трития (1) и углерода-14 (2) при измерении радиоактивности с помощью ЖС спектрометра RackBeta 1215

Цель работы

Построить изотерму адсорбции поверхностно-активного вещества, меченного тритием или углеродом-14, на одном из высокопористых адсорбентов.

Оборудование, материалы и реактивы

Жидкостной сцинтилляционный спектрометр, сцинтилляционная жидкость, флаконы, центрифуга, шейкер, весы, микродозаторы переменного объема и наконечники к ним, микропробирки с крышкой типа Эппендорф.

Раствор поверхностно-активного вещества (додецилсульфат натрия, бромид додецилтриметил аммония, альбумин и др.), меченного ³Н или ¹⁴С; адсорбент (активированный уголь, мезопористый силикагель и др.); дистиллированная вода или другой растворитель (в зависимости от исследуемого вещества).

Выполнение работы

1. Получают у преподавателя исходный раствор адсорбата и адсорбент, а также конкретный план работы, в котором указаны: 1) удельная радиоактивность адсорбата и концентрация его раствора, 2) примерные значения начальных концентраций раствора адсорбата ($c_{0,i}$), которые будут использоваться для определения значений Γ_i , 3) объемы равновесных растворов адсорбата, отбираемых для измерения скорости счета, 4) плотность растворителя, 5) удельная поверхность адсорбента.

2. Проводят проверку точности микродозаторов, взвешивая отбираемые пробы воды.

3. Готовят шесть растворов адсорбата с различными начальными концентрациями $c_{0,i}$, смешивая в пробирках эппендорф порцию исходного раствора с требуемым объемом растворителя. Определяют массу растворов, рассчитывают объемы растворов и их начальные концентрации $c_{0,i}$. Плотность водных растворов принимают равной 1,00 г/мл. Результаты заносят в табл. 12.1.

Таблица 12.1.

N₂	Масса су- хих пробирок, г	Масса пробирок с растворителем, г	Масса пробирок с растворителем и добавкой ад- сорбата, г	Объем рас- твора ад- сорбата в пробирках, мл	Начальная концентрация раствора ад- сорбата, мг/мл
1 2					
2 6					

4. Готовят точные навески адсорбента в микропробирках, в которые затем переносят полученные растворы (табл. 12.2).

Таблица 12.2.

					тасспица
N⁰	Macca	Масса про-	Масса ад-	Масса пробирок с	Объем
	пробирок,	бирок с	сорбента, г	навеской адсорбента	суспензии,
	Г	навеской ад-		и раствором	МЛ
		сорбента, г		адсорбата, г	
1					
2					
6					

5. Перемешивают полученные суспензии с помощью шейкера в течение 40 мин.

6. Отделяют адсорбент с помощью центрифуги.

7. Отбирают аликвоту раствора над адсорбентом (осадком) и переносят ее во флакон, содержащий сцинтилляционную жидкость. Измеряют, используя программное обеспечение ЖС спектрометра, скорость счета аликвоты. Вычисляют, учитывая фон, объемную скорость счета (имп/мин·мл) растворов и равновесную концентрацию адсорбата c_i (уравнение 12.3). Результаты заносят в табл. 12.3.

9. Определяют эффективность регистрации ε (рис. 12.1). Рассчитывают, согласно 12.2, значение адсорбции Γ_i для каждой концентрации (табл. 12.3).

Таблица 12.3

Nº	Объем аликвоты, мл	Скорость счета фона, имп/мин	Скорость счета аликвоты (без фона), имп/мин	Отношение счета в каналах ЖС спектро- метра*	Эффектив- ность реги- страции β- излучения*	<i>С</i> і, мг/мл	Г _і , мг/м ²
1 2 6							

* - см. рис. 12.1

9. Строят изотерму адсорбции – зависимость адсорбции от равновесной концентрации растворенного вещества при постоянной температуре.

1. Построить схему распада нуклида ⁴⁰К. Тип распада: электронный захват (вероятность $p_{3.3} = 0,11$) или β -распад ($p_{\beta} = 0,89$). Максимальная энергия β -частиц 1,3 МэВ ($p_{\beta}=0,89$), энергия γ -кванта 1,46 МэВ ($p_{\gamma} = 0,11$). 2. Полная энергия ядерного превращения ¹⁰¹Мо \rightarrow ¹⁰¹Тс равна 2,39 МэВ; макси-

2. Полная энергия ядерного превращения ¹⁰¹Мо \rightarrow ¹⁰¹Тс равна 2,39 МэВ; максимальная энергия испускаемых частиц – 1,20 МэВ (выход на распад *p*=0,7) и 2,20 МэВ (*p*=0,3); энергия γ -квантов – 1,0 МэВ (*p*=0,7) и 0,19 МэВ (*p*=1,0). Построить схему распада ¹⁰¹Мо.

3. Ядерное превращение ²¹⁹Rn \rightarrow ²¹⁵Po (полная энергия 6,95 МэВ) сопровождается испусканием α -частиц (энергия $E_{\alpha} = 6,82, 6,56$ и 6,43 МэВ), а также γ -квантов ($E_{\gamma} = 0,39, 0,32, 0,19, 0,13$ и 0,07 МэВ). Построить схему распада ²¹⁹Rn.

4. Определить для β -частиц ³²Р R_{max} в воздухе при н.у. Ответ: 602 см 5. Рассчитать минимальную толщину экрана из органического стекла ($\rho = 1,07$ г/см³), полностью задерживающего поток β -частиц ⁸⁹Sr. Ответ: 0,62 см

6. Определить ослабление потоков β -частиц и γ -квантов, испускаемых ⁴⁰K, пластинками алюминия толщиной 270 и 810 мг/см² ($\rho_{Al} = 2,7$ г/см³).

Ответ: поглощается 93 и 100% потока В-частиц; 1,3 и 3,9% потока у-квантов.

7. Параллельные потоки моноэнергетических электронов, β-частиц и α-частиц проходят через экраны, толщина которых равна 0,6 пробега каждого типа излучения. Какая доля электронов, β- и α–частиц задерживается экранами?

Ответ: ~60%, ~98% и 0%

8. Определить абсолютную активность 1 кг хлорида калия (доля ⁴⁰К в природной смеси изотопов равна 0,000118). Ответ: 16121 Бк

9. В природной смеси изотопов рубидия содержится 27,85% долгоживущего нуклида ⁸⁷Rb. Определить период его полураспада, если установлено, что скорость счета навески RbCl массой 120 мг равна 447 имп/мин (коэффициент регистрации $\varphi = 0,1$).

Ответ:4,8·10¹⁰ лет

10. Препарат радиоактивной серы содержит 50 МБк 35 S и примесь 32 P (4 МБк). Какое минимальное время следует хранить препарат, чтобы активность примеси не превышала 1% общей активности препарата. *Ответ: 1236,5 ч*

11. Измерение скорости счета радионуклида ¹⁴⁴Pr начали спустя 7 мин после выделения из мишени и проводили в течение 10 мин. За это время было зарегистрировано 18342 имп. Определите скорость счета (имп/мин) ¹⁴⁴Pr в момент выделения.

Ответ: 2917 имп/мин

12. Для выделения дочернего радионуклида ^{113m}In ($T_{\frac{1}{2}} = 99$ мин) через колонку изотопного генератора пропустили 10 мл 0,05 н раствора HCl. Объемная активность элюата, измеренная спустя 33 мин после выделения, оказалась равной 20 МБк/мл. Рассчитайте активность материнского изотопа ¹¹³Sn ($T_{\frac{1}{2}} = 115$ суток), предполагая, что было выделено 72% равновесного количества ^{113m}In. *Ответ: 350 МБк*

13. Хроматографическую колонку заполнили сорбентом, на котором было адсорбировано 100 МБк материнского радионуклида ¹⁴⁰Ва. Спустя 360 ч, для выделения дочернего ¹⁴⁰La, через колонку пропустили 20 мл элюента. Определить удельную активность (кБк/мл) элюата через 24 ч после извлечения ¹⁴⁰La, предполагая, что он не содержит радиоактивных примесей, а используемая методика позволяет выделить 80% накопившегося лантана. *Ответ: 1341 кБк/мл.* 14. Определить время накопления максимального количества 112 Ag ($T_{\frac{1}{2}} = 3,4$ ч), образующегося при распаде 112 Pd ($T_{\frac{1}{2}} = 21$ ч). Ответ: 10,66 ч

15. Ниже приведена схема ядерных превращений ²¹⁰Pb.

210 рь β , $T_{1/2}=21$ год 210 ві β , $T_{1/2}=5$ сут 210 ро α , $T_{1/2}=138$ сут 206 рь Активность ²¹⁰ Ро, находящегося в равновесии с ²¹⁰ Рь, равна 120 Бк. Чему равна активность ²¹⁰ Ві и через какое время она уменьшится в 5 раз? *Ответ: 120 Бк, 48,8 года* 16. Имеется цепочка превращений ²³⁸U \rightarrow ²³⁴ Th \rightarrow ²³⁴ Ра \rightarrow Периоды полураспада ²³⁸U, ²³⁴ Th и ²³⁴ Ра равны, соответственно, 4,5·10⁹ лет, 578 ч и 1,18 мин. При *t*=0 число ядер ²³⁸ U $N_{U,0} = 10^{19}$, а число ядер ²³⁴ Th $N_{Th,0} = 0$. Чему будет равно число ядер N_{Th} через а) 578 ч, б) 4,5·10⁹ лет? *Ответ: а) 7,3·10⁷*; *б) 7,3·10⁷* 17. Сколько атомов гелия образуется в течение 1 года из 1 г ²³² Th, находящегося в

17. Сколько атомов гелия образуется в течение 1 года из 1 г 232 Th, находящегося в равновесии с продуктами распада. *Ответ:* 7,7 $\cdot 10^{11}$

18. При облучении мишени образуется радионуклид Z с периодом полураспада 3 ч и короткоживущий примесный X ($T_{\frac{1}{2}} = 15$ мин). Мишень облучали в течение 9 ч. Ее активность спустя 15 мин после окончания облучения составила 280 кБк, а спустя 3 ч – 90 кБк. Определите а) отношение активности радионуклида Z в момент второго измерения к максимально возможной при данных условиях облучения, б) отношение активностей нуклидов Z и X в момент окончания облучения.

Ответ: а) 0,438; б) 0,818

19. Рассчитайте минимально необходимое время облучения навески As_2O_3 массой 100 мг потоком нейтронов (плотность 10^{12} см⁻²·c⁻¹) для получения препарата ⁷⁶As₂O₃ с удельной активностью 40 МБк/г. Единственный стабильный нуклид - ⁷⁵As, эффективное сечение (*n*, γ) реакции равно 4,3·10⁻²⁴ см⁻², период полураспада ⁷⁶As - 27,6 ч.

Ответ: 35 мин

20. В природной смеси изотопов сурьмы содержится 43% ¹²³Sb и 57% ¹²¹Sb. При облучении навески массой 1 г нейтронным потоком (плотность 10^{12} см⁻²с⁻¹) в течение суток в мишени образуется ¹²⁴Sb ($T_{\frac{1}{2}} = 60$ сут) и короткоживущий ¹²²Sb. Удельная активность мишени, измеренная сразу после окончания облучения, составила 2886 кБк/мг. Определить период полураспада ¹²²Sb, считая, что условия облучения соответствуют случаю тонкой мишени, сечение обеих (n,γ) реакций примерно одинаковы и равны 4,4·10⁻²⁴ см². *Ответ: 66 ч*

21. В воздухе на высоте уровня моря за счет космического излучения за 1 ч в среднем образуется 7560 пар ионов в 1 см³. Определите поглощенную дозу в воздухе за год, если на образование одной пары ионов затрачивается энергия 33,9 эВ.

Ответ: ~ 278 мкГр

22. Рассчитайте толщину защитного экрана из свинца, снижающего эквивалент дозы, создаваемый в течение 6-часового рабочего дня на расстоянии 0,5 м от источника ¹²⁴Sb активностью 370 МБк, до уровня 36 мкЗв/день. *Ответ: 5,9 см*

23. Толщина защитного свинцового экрана равна 10 см. Проверьте, обеспечит ли такая защита безопасные условия работы в течение 6-ти часового рабочего дня на расстоянии 25 см от источника ⁵⁹Fe активностью 0,5 ГБк.

Ответ: Обеспечит; мощность эквивалента дозы за защитой 4,12 мкЗв/ч 24. Определите наименьшее расстояние от источника ⁶⁵Zn активностью 0,37 ГБк, на котором можно находиться без защитного экрана в течение 1 ч, если величина эквивалента дозы не должна превышать 30 мкЗв. *Ответ: 98 см*

25. В лаборатории ежедневно в течение 2 ч проводится работа с точечным источником ¹³⁷Cs (^{137m}Ba) активностью 394 МБк на расстоянии 30 см. При этом в другое

время источники ИИ не эксплуатируются. Определите: a) эквивалент дозы при отсутствии защиты; б) толщину защитного экрана из свинца, обеспечивающего безопасные условия работы.

Ответ: 722 мкЗв; при условии 2^x -часовой работы в день d = 3 см 26. Ладонь оказалась загрязненной радионуклидом ³⁵S. Установлено, что скорость счета пятна 150 имп/(с·см²). Условия измерения: счетчик Гейгера-Мюллера ($d_{okha} = 5$ мг/см²), слой воздуха 5 мм, геометрический коэффициент $\eta = 0,5$. Оцените энергию частиц, поглощенную в 1 г биологической ткани в течение 1 ч.

Ответ: 7,08.10⁻⁷ Дж/г

27. В организме человека (масса 70 кг) содержится ~ 160 г калия. Оцените среднюю поглощенную дозу от β -излучения ⁴⁰К за год, предполагая равномерное распределение элемента в организме. *Ответ: 0,18 мГр*

28. На карман халата площадью около 120 см² попало 0,5 мл раствора, содержащего равновесную смесь ⁹⁰Sr(⁹⁰Y), с удельной активностью 18500 Бк/мл. Загрязненность определялась радиометром с площадью детектора 300 см² и толщиной окна 0,01 г/см². Рассчитать показания радиометра (в имп/с) и определить, во сколько раз загрязненность халата превышает допустимой уровень, если геометрический коэффициент η =0,4. *Ответ: 3070 имп/с; в 2,3 раза*

29. Реактор объемом 50 мл, в котором хранился меченный ¹⁴С карбонат бария массой 296 мг, заполнили углекислым газом (24°С, 99 кПа), герметично закрыли и выдержали несколько часов при 100°С. Определить степень изотопного обмена, если установлено, что за время нагревания удельная активность $Ba^{14}CO_3$ уменьшилась в 1,25 раза. *Ответ:* F=0,35

30. Какой объем раствора Na¹³¹I (без носителя) с удельной активностью 800 Бк/мл необходимо взять, чтобы с помощью изотопного обмена получить 0,1 моль меченного иодом-131 алкилиодида с удельной активностью 4 кБк/моль? Ответ: 0,5 мл

31. Для введения метки в 1-иодбутан используется изотопный обмен ¹³¹I между C_4H_9I и Na¹³¹I. С какой максимальной удельной активностью (МБк/моль) можно получить меченный 1-иодбутан, если взять для его получения 1 мл 0,01 моль/л спиртового раствора C_4H_9I и а) 1 мл спиртового раствора Na¹³¹I (без носителя) активностью 1 МБк/мл, б) 1 мл спиртового раствора Na¹³¹I концентрации 0,01 моль/л и активностью 1 МБк/мл? *Ответ: а)* 10⁵, б) 5 ·10⁴

32. Проведено изучение изотопного обмена ¹³¹ I между изо- C_3H_7I и Na¹³¹ I в 90% ном этанольном растворе при концентрации каждого вещества 0,1 моль/л и при температурах 40, 60 и 80⁰ С. Периоды полуобмена $\tau_{1/2}$ оказались равны соответственно 6,27·10⁴, 6,88·10³ и 1,67·10³ с. Вычислите энергию активации процесса.

Ответ: 83,5 кДж/моль

33. 100 мл раствора, содержащего радионуклид **A*** без носителя, с удельной активностью 10 МБк/мл поместили в стеклянный стакан. Предполагается, что молекулы **A*****B** за счет молекулярной адсорбции могут покрыть монослоем всю поверхность соприкосновения раствора со стеклом (100 см²). Как изменится удельная активность раствора, если площадь, занимаемая молекулой **AB**, равна 10^{-14} см²? (Постоянная распада **A*** равна $2 \cdot 10^{-8}$ с⁻¹). *Ответ: уменьшится до 8 МБк/мл*

34. В результате экстракции радиоактивного вещества из 10 мл водного раствора в 8 мл органического растворителя радиоактивность водной фазы уменьшилась в 3 раза. Рассчитайте коэффициент распределения. *Ответ: 2,5*

35. Проводится экстракция радиоактивного вещества из 12 мл водного раствора порциями органического экстрагента по 4 мл. Определите, сколько нужно провести последовательных экстракций, чтобы обеспечить значение фактора извлечения радиоактивного вещества, равное 98 %, если коэффициент распределения 3,6.

Ответ: n =5 (98,05%)

36. Вычислите процентное содержание урана в пробе, если при измерении βнасыщенных слоев образцового и анализируемого веществ были зарегистрированы скорости счета (без фона) 980 и 1250 имп/мин соответственно. Содержание урана в образцовом веществе составляет 8%. Ответ: 10,2%

37. Какое минимальное количество (в граммах) а) углерода, меченного углеродом-14, б) серы, меченной серой-35 и в) брома, меченного бромом-82 можно определить радиометрическим методом, если имеются меченные указанными радионуклидами препараты с удельной активностью 1 МБк/г? Минимально надежно определяемая с помощью сцинтилляционного детектора скорость счета равна 5 имп/с. Коэффициент регистрации 0,95. Ответ: во всех случаях 5.10⁻⁶ г элемента

38. При анализе методом изотопного разбавления раствора, содержащего ионы стронция, к раствору добавили 1,5 мл 0,2 моль/л раствора ⁸⁹SrC1₂ с удельной активностью 2,7·10⁶ имп/(мин·моль). Осадив часть стронция в виде сульфата, нашли, что удельная активность полученного осадка равна 9,3·10⁵ имп/(мин·моль). Определите массу стронция в анализируемой пробе. *Ответ: 50,2 г*

39. Для определения содержания сульфат-иона к раствору прибавили 100 мг BaCl₂, осадок BaSO₄ отфильтровали и к фильтрату прибавили 100 мг радиоактивного BaCl₂, содержащего ¹⁴⁰Ba (очищенный от дочернего ¹⁴⁰La) общей активностью 6650 имп/мин. Из полученного раствора выделили часть BaSO₄. Измерения показали, что активность 20 мг этого осадка составляет 618 имп/мин. Определите содержание количество вещества сульфат-ионов в исходном растворе. *Ответ: 3,77.10⁻⁶ моль*

40. Для получения $Sr_3(PO_4)_2$, меченного ³²P, использовали 0,005 моль/л раствор $SrCl_2$, содержащий ⁸⁹Sr. Объемная регистрируемая активность разбавленного в 50 раз раствора ⁸⁹SrCl₂ составляла 17050 имп/(мин·мл). Осадок $Sr_3(PO_4)_2$ был получен добавлением небольшого избытка ортофосфата натрия к 100 мл раствора ⁸⁹SrCl₂. Суспензия части осадка длительное время перемешивалась при 298 К в 50 мл 0,001 моль/л раствора перхлората натрия. Объемная регистрируемая активность насыщенного раствора оказалась равной 52 имп/(мин·мл). Определите растворимость (моль/л) $Sr_3(PO_4)_2$ в 0,001 моль/л растворе NaClO₄. Оцените произведение растворимости этой соли.

Ответ:
$$s = 3,05$$
 моль/л, $\Pi P = 1 \cdot 10^{-3}$

41. Растворимость хлорида серебра при комнатной температуре составляет около 10^{-6} г/мл. Какова должна быть удельная радиоактивность твердой фазы для точного определения растворимости этой соли, если объем пробы составляет 1 мл, минимальная регистрируемая активность 10 имп/с (без фона), а коэффициент регистрации $\varphi = 0.25$. *Ответ: не менее 40 МБк/г*

42. Капиллярным методом с использованием радионуклида ³⁶C1 определяли коэффициент самодиффузии иона C1⁻ в 1 моль/л водном растворе LiC1 при 15° С. Длина использованного капилляра 2,2 см, начальная активность раствора в капилляре 8000 ипм/мин, опыт продолжался 30 ч, активность раствора в капилляре по окончании опыта 3190 имп/мин. Найдите значение коэффициента самодиффузии иона C1⁻.

Ответ: 1,29.10⁻⁵ см²/с

«Основы радиохимии и радиоэкологии» Образец билета контрольной работы № 1

1. Ядро ¹⁷⁰ Tm распадается по двум механизмам: а) β^{-} -распад, при этом дочернее ядро может оказаться в основном состоянии (81,6%) или на первом возбужденном уровне 84,3 кэВ (18,25%), б) путем электронного захвата с переходом на основное состояние ядра (0,12%) или на первый возбужденный уровень 78,6 кэВ (0,03%). Массы атомов: ¹⁷⁰ Tm 169,935801 а.е.м., ¹⁷⁰ Er 169,935464 а.е.м., ¹⁷⁰ Yb 169,934762 а.е.м. Определите энергии испускаемых при распаде: моноэнергетических нейтрино, γ -квантов и максимальные энергии β -частиц. Постройте схему распада ¹⁷⁰ Tm.

2. Какое давление создается в закрытой ампуле объемом 24 см³ при 18°С, если в ней находится 30 Ки газообразного трития? Период полураспада трития 12,3 года.

епочка радиоактивных превращений	⁶⁸ C a	EC	⁶⁸ C ~	β+	68 7
er dene na padrioakrinbildin npebpadenini	Се Т _{1/2}	→ 271 сут	Ga	→ 67,7 м	2 <i>п</i> ин

может быть использована для создания радионуклидного генератора – устройства, из которого извлекается дочерний радионуклид (⁶⁸Ga), образующийся из материнского. Для генератора с начальной радиоактивностью ⁶⁸Ge 1 ГБк (без продуктов распада) определите:

a) радиоактивность ⁶⁸Ga, накопившегося в генераторе через 24 ч после начала его эксплуатации; б) через какое время после полного извлечения накопится 75% от максимально возможного количества атомов ⁶⁸Ga; в) через сколько дней работы генератора извлекаемая радиоактивность уменьшится в 2 раза; г) мольное соотношение $v(^{68}Ga)$: $v(^{68}Ge)$ через 1 сутки после очередного извлечения ⁶⁸Ga.

4. В природной смеси изотопов иридия содержится $37,2\%^{191}$ Ir и $62,7\%^{193}$ Ir. При захвате ядрами иридия тепловых нейтронов наиболее вероятны следующие реакции: ¹⁹¹Ir(n,γ)¹⁹²Ir, ¹⁹²Ir(n,γ)¹⁹³Ir, ¹⁹³Ir(n,γ)¹⁹⁴Ir. Сечения поглощения тепловых нейтронов ядрами ¹⁹¹Ir, ¹⁹²Ir и ¹⁹³Ir равны 924, 1100 и 112 барн, соответственно. Образующиеся при нейтронном облучении радионуклиды ¹⁹²Ir ($T_{\frac{1}{2}} = 74$ сут.) и ¹⁹⁴Ir ($T_{\frac{1}{2}} = 19,2$ ч) превращаются в стабильные ¹⁹²Pt и ¹⁹⁴Pt. Рассчитать активность (на момент окончания облучения) тонкой пластинки иридия массой 200 мг, выдержанной в нейтронном потоке с плотностью 10^8 см⁻²·с⁻¹ в течение 3-х лет. Выгоранием ¹⁹²Ir в процессе облучения пренебречь.

5. Энергия γ-фотонов и максимальная энергия β-частиц одинаковы и равны 500 кэВ. Какая доля β- и γ-излучения задержится алюминиевым экраном, толщина которого равна 4 слоям половинного ослабления β-излучения.

6. Измеренная скорость счета препарата, содержащего равновесную смесь ⁹⁰Sr и ⁹⁰Y, составила 5200 имп/мин. Вычислить коэффициент(ы) регистрации и определить активность материнского радионуклида, если: 1) толщина препарата 50 мг/см², 2) разрешающее время счетчика $\tau = 1 \cdot 10^{-4}$ с, 2) скорость счета фона 30 имп/мин, 3) расстояние до окна счетчика 5 см, 4) толщина окна счетчика 3 мг/см², 5) геометрический коэффициент 0,07. Остальные поправочные коэффициенты принять равными 1.

радионуклид	<i>p,%</i>	$E_{\beta,max}$, M β B	$R_{max},\Gamma/cm^2$	$d_{\frac{1}{2},\Gamma/cM^2}$	μ,cm ² /г
⁹⁰ Sr	100	0,546	0,19	0,021	35
⁹⁰ Y	100	2,274	1,1	0,156	4,5

Характеристики излучений радионуклидов ⁹⁰Sr и ⁹⁰Y

«Основы радиохимии и радиоэкологии» Образец билета контрольной работы №2

1. Распад ¹⁰³Pd ($T_{1/2} = 17$ суток) путем электронного захвата сопровождается испусканием γ -квантов с энергией 0,02 МэВ (p = 0,77). Препараты ¹⁰³Pd применяют при брахиотерапии (вид радиотерапии, когда закрытый источник излучения вводится внутрь поражённого органа). Определите мощность эквивалента дозы, создаваемого в биологической ткани точечным источником ¹⁰³Pd активностью 1 ГБк на расстоянии в 1 см в начальный момент времени. Определите эквивалент дозы за 17 суток. Ослаблением γ -излучения в материале источника пренебречь. Плотность биологической ткани 1,04 г/см³; коэффициент истинного поглощения $\mu_e \gamma$ -излучения с энергией 0,02 МэВ в биологической ткани составляет 0,555 см²/г.

2. Распад ²³⁶Np происходит путем электронного захвата (87.3%), β^{-} -распада (12,5%) и α распада (0,16%). Энергия α -частиц 5,0 МэВ, максимальная энергия β -частиц 0,48 МэВ. На поверхности стола помещения периодического пребывания разлили раствор этого радионуклида радиоактивностью 40 кБк, и образовалось загрязнение площадью 24 см². После дезактивации это загрязнение удалось полностью удалить. Превышало ли загрязнение допустимый уровень: а) по α -излучению ²³⁶Np, б) по β -излучению ²³⁶Np?

3. Реактор объемом 50 мл, в котором хранился карбонат бария, меченный ¹⁴С, массой 296 мг, заполнили углекислым газом (24°С, 99 кПа), герметично закрыли и выдержали 3 ч при 100°С. Определите степень изотопного обмена, если установлено, что за время нагревания удельная активность Ba¹⁴CO₃ уменьшилась в 1,25 раза. Через какое время активность твердой фазы уменьшится в 1,5 раза?

4. Определить массу ионов иода, захваченных частицами формирующегося осадка гидроксида алюминия, по результатам радиохимического эксперимента. К 50 мл 0,2 моль/л раствора All₃ прилили небольшой избыток раствора аммиака, полученный осадок отделили, тщательно промыли и затем растворили в 40 мл азотной кислоты. В полученный раствор внесли 3 мл 0,001 моль/л раствора нитрата серебра, меченного ^{110m}Ag, общей регистрируемой активностью 9600 имп/мин. Скорость счета раствора, измеренная после отделения осадка, составила 8320 имп/мин.

5. Определите растворимость (г/мл) ²²⁶RaSO₄ в 0,01 моль/л растворе K₂SO₄ и погрешность определения этой величины, если скорость счета 0,1 мл насыщенного раствора ²²⁶RaSO₄ составила 1000±100 имп/с, коэффициент регистрации измерительной установки 0,185±0,005. Какую минимальную концентрацию радия ²²⁶Ra и ²²³Ra в растворе можно определить на этой установке, если минимальное значение регистрируемой скорости счета составляет 10 имп/с? Периоды полураспада ²²⁶Ra 1600 лет, ²²³Ra 11,4 суток.

6. Для определения методом нейтронно-активационного анализа содержания мышьяка два препарата выдержали в потоке нейтронов $2,5 \cdot 10^{12} \text{ c}^{-1} \cdot \text{см}^{-2}$: первый в течение 24 ч, второй - 96 ч. Активность ⁷⁶As измерили помощью гамма-спектрометра, регистрируя пик полного поглощения энергии $E_{\gamma}=0,56$ МэВ (вероятность испускания гамма-кванта p=0,45, эффективность регистрации $\varepsilon=0,08$). Время выдержки препаратов между окончанием облучения и измерением радиоактивности составило 4 часа. Определите массу мышьяка в препаратах, если скорость счета (за вычетом фона) оказалась равной 3600 имп/мин (24 ч облучения), 7080 имп/мин (96 ч облучения). Природный мышьяк содержит только ⁷⁵As, сечение реакции ⁷⁵As (n, γ) ⁷⁶As составляет 4,2 барн, период полураспада ⁷⁶As равен 26,3 ч.

Рекомендуемая литература

- 1. Лукьянов В.Б., Бердоносов С.С., Богатырев И.О., Заборенко К.Б., Иофа Б.З. // Радиоактивные индикаторы в химии. Основы метода. М.: Высшая школа, 1985,287 с.
- 2. Лукьянов В.Б., Бердоносов С.С., Богатырев И.О., Заборенко К.Б., Иофа Б.З. // Радиоактивные индикаторы в химии. Проведение эксперимента и обработка результатов. М.: Высшая школа, 1977, 280 с.
- 3. Алиев Р.А., Калмыков С.Н. // Радиоактивность. СПб ; Лань, 2013, 304 с.
- 4. Бекман И.Н. // Радиохимия (том I, II). М.: Юрайт, 2014
- 5. Zvara I., Povinec P., Sykora I. Determination of very low levels of radioactivity. Pure & Appl. Chem. V.66 No.12. P.2537 (1994).
- 6. Нормы радиационной безопасности (НРБ-99/2009), М.: Роспотребнадзор, 2009, 100 с.
- Основные санитарные правила обеспечения радиационной безопасности, (ОСПОРБ-99/2010), М.: Роспотребнадзор, 2009, 83 с.
- 8. Козлов В.Ф. // Справочник по радиационной безопасности М.: Энергоатомиздат, 1991, 192 с.
- 9. Машкович В.П., Кудрявцева А.В. // Защита от ионизирующих излучений. М., Энергоатомиздат, 1995, 496 с.
- 10. Сапожников Ю.А, Калмыков С.Н., Алиев Р.А. // Радиоактивность окружающей среды. Теория и практика. М.: БИНОМ, 2006, 286 с.
- 11. Хольнов Ю.В. и др. // Оцененные значения ядерно-физических характеристик радиоактивных нуклидов. Справочник. М.; Энергоатомиздат, 1982, 311 с.
- 12. Гусев Н.Г., Дмитриев П.П. // Квантовое излучение радиоактивных нуклидов. Справочник. М.: Атомиздат, 1977, 400 с.
- 13. Глоссарий МАГАТЭ по вопросам безопасности. Терминология, используемая в области ядерной безопасности и радиационной защиты. STI/PUB/1290. МАГАТЭ, Вена, 2007. [http://www-pub.iaea.org/MTCD/publications/PDF/IAEASafetyGlossary-2007/Glossary/SafetyGlossary_2007r.pdf]
- 14. Кутьков В.А. Величины в радиационной защите и безопасности. АНРИ (Аппаратура и новости радиационных измерений), 2007 № 3, с. 2-25. [http://www.doza.ru/docs/pub/2007/-02-25%203%202007.pdf]

ПРИЛОЖЕНИЯ

Таблица П.1

Характеристики	радионуклидов	[2,11]
----------------	---------------	--------

Нуклид	Получение и сече-	Период по-	Тип	Энерги	я Еивы	ход на ра	аспад р
	ние ядерной реак-	лураспада	распада	част	ицы	ү-ква	анты
	ции, барн*	$T_{\frac{1}{2}}$		<i>Е</i> , кэВ	p, %	<i>Е</i> , кэВ	p, %
1*	2	3*	4	5	6	7	8
$^{3}_{1}$ H, (T)	$^{6}\text{Li}(n,\alpha)T;$ 70	12,26 года	β-	18,6	100	H	ет
$^{14}_{6}$ C	$^{14}N(n,p)^{14}C; 1,81$	5700 лет	β-	156	100	н	ет
$^{22}_{11}$ Na	24 Mg(d, α) 22 Na;	2,60 года	β ⁺ (90%) ЭЗ (10%)	546	90	511* 1274	180 100
$^{24}_{11}$ Na	23 Na(n, γ) ²⁴ Na; 0,53	15,0 ч	β-	1390	100	1368 2754	100 100
$^{32}_{15}$ P		14,4 сут	β-	1710	100	H	ет
$^{35}_{16}$ S	35 Cl(n,p) 35 S; 0,19	87 сут	β^{-}	167	100	н	ет
³⁶ ₁₇ Cl	$^{35}Cl(n,\gamma)^{36}Cl;$ 30	3,1·10 ⁵ лет	β⁻, ЭЗ	710	98	н	ет
⁴⁰ ₁₉ K	в природной смеси изотопов 0,0118%	1,3·10 ⁹ лет	β ⁻ (89%) Э.3.(11%)	1312	89	1460	11
$^{42}_{19}$ K	41 K(n, γ) 42 K; 1,2	12,4 ч	β-	1997 3521	19 81	1524	19
$^{45}_{20}$ Ca	44 Ca(n, γ) 45 Ca; 0,72	163 сут	β^{-}	257	100	н	ет
$^{51}_{24}$ Cr	${}^{50}Cr(n,\gamma){}^{51}Cr;$ 16	28,7 сут	Э3	н	ет	320	10
$^{52}_{25}$ Mn	52 Cr(p,n) 52 Mn	5,6 сут	β^{+} (28%)	574	28	511*	56
			ЭЗ (72%)			744	87
						935	94
						1434	100
	55 57					+др	угие
$^{56}_{25}$ Mn	$^{55}Mn(n,\gamma)^{56}Mn; 13$	2,6 ч	β^{-}	735	15	847	99
				1037	28	1811	27
				2848	56	2112	14
59	585 ()595 0.00	45		+сла	иоые	+др	угие
$_{26}^{39}$ Fe	59 C ₂ (n, γ) ⁵⁹ Fe; 0,98	45 cyt	β-	2/3	45 52	1099	50 42
	Co(n,p) Fe; 0,006			403	55	1292	45
58 C	58 Ni(n n) 58 Co: 0.22	71 очт	$\beta^{+}(150/)$	+CJI2 175	юыс 15	+др 511*	ути с 30
27 CO	(1,p) = C0, 0,23	/1 Cy1	р (15%) Эз (85%)	475	15	811	99
			55 (6570)			+сла	бые
$^{60}_{27}$ Co	59 Co(n, γ) 60 Co: 37	5,27 года	β-	318	100	1173	100
2/ = 0			r			1333	100

* 1 барн = 10⁻²⁸ м²

* - в столбцах 1 и 3 в скобках указаны короткоживущие дочерние изотопы и их периоды полураспада; сведения об излучении в этих случаях относятся к равновесной смеси материнского и дочернего изотопов

511* - фотоны, возникающие в результате аннигиляции β⁺

1*	2	3*	4	5	6	7	8
$^{64}_{20}$ Cu	$^{63}Cu(n,\gamma)^{64}Cu; 4,3$	12,7 ч	β ⁻ (37%)	578	37	511*	36
29			β^+ (18%)	653	18		
			ЭЗ (45%)				
$^{65}_{20}$ Zn	64 Zn(n, γ) 65 Zn; 0,77	244 сут	ЭЗ (98,5%)	330	1,5	511*	3,0
50		-	eta^+ (1,5%)			1116	51
$^{74}_{33}$ As	$^{75}As(n,2n)^{74}As$	17,8 сут	$\beta^{-}(34\%)$	716	15	511*	56
55			$\beta^{+}(28\%)$	939	25	596	59
			ЭЗ (38%)	1351	19	634	15
	5.5			1535	3	+др	угие
⁷⁶ ₃₃ As	75 As(n, γ) 76 As; 4,3	26,3 ч	β-	1216	8	560	45
				2404	35	657	6
				2963	51	1216	4
82 -	$81_{\rm D}$ () $82_{\rm D}$ 2.1	26.2	2 -	+др	угие	+др 554	угие
$_{35}^{62}$ Br	$^{\circ}Br(n,\gamma)^{\circ}Br; 3,1$	30,3 4	β-	204 444	2	554 610	/1 /2
				444	90	608	45
						098 776	20 84
						828	24
						1044	27
						1317	28
						+ др	угие
⁸⁶ ₂₇ Rb	85 Rb(n, γ) 86 Rb; 0,91	18,8 сут	β-	698	9	1077	9
57			,	1774	91		
$^{89}_{89}$ Sr +	$U(n, f)^{89}Sr$	50,6 сут	β-	1492	100	Н	ет
(^{90m}V)		(16 c)	P				
⁹⁰ Sr	$U(n, f)^{90}Sr$	28,7 года	ß [–]	546	100	Н	ет
³⁸ V		64 ч	<u>в</u> -	2274	100	н	ет
39 I	$U(n \wedge \theta^{91} \mathbf{V})$	50 or T	ρ	1544	100	1204	0.2
³¹ ₃₉ Y	$U(\Pi, f) = I$	39 Cyr	β	1344	~100	1204	0,5
$^{95}_{40}$ Zr+	$U(n, f) \overset{95}{\sim} Zr;$	64 cyt	β-	366	55	724	44
(^{95m}Nb)	$r(n,\gamma)^{3}$ Zr; 0,08	(90 4)		399	44	/5/	<u> </u>
				+др	угие	+CJI	аоые
$^{95}_{41}$ Nb		35 сут	β-	160	100	766	100
$^{106}_{44}$ Ru +	$U(n, f)^{106}Ru$	367 сут	β-	39	100	513	20
(^{106}Rh)		(30 c)		2407	10	622	10
` <i>`</i>				3029	8		
				3541	79		<u></u>
110 m	109 A ()110m A (250		+др	угие	+сл	аоые
$^{110}_{47}$ Ag	$\operatorname{Ag}(\mathbf{n},\boldsymbol{\gamma})$ $\operatorname{Ag}(\mathbf{r},\boldsymbol{\gamma})$	250 cyt	β-	84 521	0/	03/ 762	94 22
$\binom{110}{47}$ Ag)		(23 C)		2225	52 5	703 884	23 73
				2255	95	937	75 34
				2075))	1384	26
						1500	15
				+др	угие	<u></u> + др	угие

1*	2	3*	4	5	6	7	8
¹¹¹ Δ σ	110 Pd(d,n) ¹¹¹ Ag	7.5 cvt	ß -	686	7	245	1
47 Mg	(-,)8	.,= _j _	Ч	783	1	342	7
				1082	92	0.1	
¹²⁴ Sh	123 Sb(n v) 124 Sb: 4.4	60 cvt	ß -	211	8	606	98
51 50	50(II,7) 50, 4,4	000	р	611	53	645	7
				1579	5	722	11
				2302	21	1691	49
				<u>+πn</u>	игие	+πn	лие
131 T	$130_{T_{0}}(n_{1})^{131}T_{0}:0.2$	8 05 cVT	0 -	248	2	284	6
₅₃ 1	$131_{T_{2}}$ 0 - 131_T	0,05 Cy1	р	334	7	364	81
	$1e^{-p} \rightarrow 1$			606	90	637	7
	$U(\mathbf{n},f) = \mathbf{I}$			<u>+πn</u>	угие	+π n	, угие
134 C a	$133C_{\rm S}(n_{\rm M})^{134}C_{\rm S}: 20$	2.06 гола	0 -	<u>89</u>	27	567	23
55 CS	$CS(\Pi,\gamma)$ CS, 50	2,0010да	р	415	27	507 604	23 07
				658	70	707	03
				0.50	70	<u></u>	
137 C a +	$U(n-f)^{137}Cs$	30 лет	ρ-	512	95	<u>- др.</u> 662	85
55 CS +	0 (11, <i>j</i>) C3	(2.6 MMH)	р	1173	5	002	05
$^{137m}_{56}$ Ba		(2,0 MIII)		1175	5		
¹³³ Ba	133 Cs(d,2n) 133 Ba	10,7 года	ЭЗ	H	ет	81	34
56						303	19
						356	63
						+др	угие
¹⁴⁰ Ba	$U(n, f)^{140}Ba$	12,8 сут	β ⁻	454	25	30	13
56			P	567	10	162	6
				872	4	305	4
				991	36	424	3
				1005	25	537	24
						+сла	бые
¹⁴⁰ La	140 Ba— $\beta^- \rightarrow ^{140}$ La	40 ч	β-	1260	23	328	20
5/	139 Ln(n, γ) 140 La: 8.2		P	1344	44	487	44
	,,,,,,			1412	5	751	4
				1677	20	815	23
				2164	7	867	6
						925	7
						1596	95
				+др	угие	+др	угие
$^{141}_{59}$ Ce	140 Ce(n, γ) 141 Ce; 0,6	32,5 сут	β-	436	69	145	48
38				581	31		
¹⁴⁴ Co	$II(n f)^{144}Ce$	284 cvt	ß –	185	20	134	11
58 Ce		207 Cy1	р	238	5	1.5-7	11
				318	75	+ сла	абые
¹⁴⁴ Dr	144 Co Ω^{-} 144 Dr	17 мин	Ω -	810	1	696	13
59 PT	$cc-p \rightarrow PT$	1 / WIRIII	р	2300	1	2185	0.8
				2996	98	<u>2105</u> 	<u>, 0,0</u> бые
	4.7.4			2770	70	10110	
$^{155}_{63}$ Eu	154 Sm(n, γ) 155 Sm;5,5	4,7 года	β-	141	48	87	36
	155 Sm $-\beta^- \rightarrow ^{155}$ Eu			160	27	105	24
				246	13		
				+др	угие	+др	угие

1*	2	3*	4	5	6	7	8
¹⁷⁰ ₆₀ Tm	169 Tm(n, γ) 170 Tm;	129 сут	β-	884	24	84	3
07	130		•	968	76		
$^{185}_{74}{ m W}$	184 W(n, γ) ¹⁸⁵ W; 2,1	75 сут	β-	432	~100	сла	бые
$^{192}_{77}$ Ir	191 Ir(n, γ) 192 Ir; 1120	74 сут	β- (96%)	256	6	296	29
//			ЭЗ (4%)	536	41	308	29
				672	49	317	82
						468	48
	202					+др	угие
²⁰³ ₈₀ Hg	202 Hg(n, γ) 203 Hg; 5	46,7 сут	β-	212	100	279	82
²⁰⁴ ₈₁ Tl	203 Tl(n, γ) 204 Tl; 8	3,78 года	β ⁻ (98%) Э3 (2%)	763	98	He	ет
²¹⁰ ₈₃ Bi	В ряду ²³⁸ U	5,0 сут	β-	1161	100	H	ет
	210 Pb $-\beta^- \rightarrow^{210}$ Bi						
²¹⁰ ₈₄ Po	$^{210}\text{Bi}-\beta^{-}\rightarrow^{210}\text{Po}$	138 сут	α	5304	100	сла	бые
$^{222}_{86}$ Rn	226 Ra $-\alpha \rightarrow ^{222}$ Rn	3,82 сут	α	5490	100	сла	бые
$^{231}_{90}$ Th	$^{235}\text{U} \rightarrow ^{231}\text{Th}$	25,6 ч	β-	140	2	25	14
50				206	12	84	8
				288	85	90	1
				+сла	абые	+сла	бые
$^{232}_{90}$ Th	в природной смеси	1,40·10 ¹⁰ лет	α	3954	23	сла	бые
50	изотопов 100%			4013	77		
$^{234}_{90}$ Th	$^{238}\text{U} \rightarrow ^{234}\text{Th}$	24,1 сут	β-	22	1	63	4
,0				60	5	93	5
				104	21	+сла	бые
				199	73		
$^{234m}_{91}$ Pa	234 Th $-\beta^- \rightarrow ^{234m}$ Pa	1,2 мин	β^{-}	2281	98	сла	бые
-	224			+сла	абые		
$^{234}_{91}$ Pa	234m Ра-И.П. \rightarrow^{234} Ра	6,7 ч	β-	424	5	101	57
				484	50	131	20
				514	7	226	11
				654	17	569	13
				711	5	882	26
				1183	6	926	21
				+др	угие	946	20
$^{235}_{92}{ m U}$	в природной смеси	7,04·10° лет	α	4367	17	144	11
	изотопов 0,72%			4397	54	186	57
		0		+др	угие	+др	угие
$^{238}_{92}$ U	в природной смеси	4,47·10 [°] лет	α	4150	23	сла	бые
	изотопов 99,28%			4197	77		

Таблица П. 2

f	Доверите	льная веро	ятность ү	f	Доверительная вероятность ү			
	0,90	0,95	0,99		0,90	0,95	0,99	
1	6,31	12,71	63,66	11	1,80	2,20	3,11	
2	2,92	4,30	9,93	12	1,78	2,18	3,06	
3	2,35	3,18	5,84	13	1,77	2,16	3,01	
4	2,13	2,78	4,60	14	1,76	2,15	2,98	
5	2,02	2,57	4,03	15	1,75	2,13	2,95	
6	1,94	2,45	3,71	20	1,73	2,09	2,85	
7	1,90	2,37	3,50	30	1,70	2,04	2,90	
8	1,86	2,31	3,36	60	1,67	2,00	2,66	
9	1,83	2,26	3,25	120	1,66	1,98	2,62	
10	1,81	2,23	3,17	00	1,64	1,96	2,58	

Величины t_γ для различных значений доверительной вероятности γ и числа степеней свободы *f*

Таблица П.3

Значения χ^2	для 5%-ного	уровня	значимости
-------------------	-------------	--------	------------

Число степеней свободы, <i>f</i>	$\chi^{2}_{0,05}$	Число степеней свободы, <i>f</i>	$\chi^{2}_{0,05}$	Число степеней свободы, <i>f</i>	$\chi^{2}_{0,05}$
1	3,841	11	19,675	21	32,671
2	5,991	12	21,026	22	33,924
3	7,815	13	22,362	23	35,172
4	9,488	14	23,685	24	36,415
5	11,070	15	24,996	25	37,652
6	12,592	16	26,296	26	38,885
7	14,067	17	27,587	27	40,113
8	15,507	18	28,869	28	41,337
9	16,919	19	30,144	29	42,557
10	18,307	20	31,410	30	43,773

Таблица П. 4

Максимальные пробеги *R_{max}*, слои половинного ослабления *d*^{1/2} и коэффициенты ослабления μ β–излучения с максимальной энергией *E*_{β,max} в алюминии [2]

$E_{\beta,max}$,	$R_{max},$	$d_{\frac{1}{2}},$	μ,	$E_{\beta,max},$	$R_{max},$	$d_{\frac{1}{2}},$	μ,
МэВ	мг/см ²	Mr/cm ²	CM^2/Γ	МэВ	мг/см ²	мг/см ²	cM^2/Γ
0,01	0,16	0,1	6930	0,70	250	30	23
0,02	0,70	0,3	2310	0,80	310	37	19
0,05	3,9	0,8	866	0,90	350	45	15
0,10	14	1,8	385	1,00	410	53	13
0,20	42	3,9	178	1,25	540	74	9,4
0,30	76	7,0	99	1,50	670	97	7,1
0,40	115	11,7	59	1,75	800	119	5,8
0,50	160	17,5	40	2,00	950	140	5,0
0,60	220	24,0	29	2,50	1220	173	4,0

Таблица П. 5

E_{γ} ,	μ', α	μ', cm ⁻¹		$E_{\gamma}, \mu', cm^{-1}$		E_{γ} ,	μ', α	см ⁻¹	
МэВ	Al	Pb		МэВ	Al	Pb	МэВ	Al	Pb
0,02	8,61	939		0,15	0,356	21,8	1,0	0,165	0,771
0,03	2,70	323		0,20	0,321	10,7	1,25	0,148	0,658
0,04	1,33	151		0,30	0,278	4,25	1,5	0,135	0,577
0,05	0,861	82,1		0,40	0,248	2,44	2,0	0,116	0,508
0,06	0,656	50,8		0,50	0,226	1,70	3,0	0,096	0,468
0,08	0,489	23,6		0,60	0,209	1,33	4,0	0,084	0,472
0,10	0,424	60,3		0,662	0,201	1,18	5,0	0,076	0,481
0,145	0,362	24,6		0,80	0,184	0,95	6,0	0,072	0,494

Линейные коэффициенты ослабления μ' узкого пучка фотонов для алюминия и свинца в зависимости от энергии *E*_γ [9]

Таблица П. 6

Коэффициенты истинного поглощения μ_e (см²/г) рентгеновского и γ -излучения в воздухе и воде (биологической ткани) в зависимости от энергии E_{γ} (МэВ) [9]

E_{γ}	μ _{е, возд.}	μ _{е, вода}	E_{γ}	µ _{е, возд.}	µ _{е, вода}	E_{γ}	µ _{е, возд.}	$\mu_{e, \ водa}$
0,01	4,650	4,840	0,125	0,0240	0,0265	0,70	0,0292	0,0324
0,015	1,300	1,340	0,15	0,0249	0,0276	0,80	0,0288	0,0320
0,02	0,527	0,536	0,20	0,0267	0,0297	1,00	0,0279	0,0310
0,03	0,150	0,152	0,25	0,0278	0,0309	1,3	0,0264	0,0293
0,04	0,0671	0,0680	0,30	0,0287	0,0319	1,5	0,0254	0,0283
0,05	0,0404	0,0415	0,40	0,0295	0,0328	2,0	0,0234	0,0260
0,06	0,0301	0,0315	0,50	0,0297	0,0330	3,0	0,0206	0,0228
0,08	0,0239	0,0258	0,60	0,0295	0,0328	4,0	0,0187	0,0206
0,10	0,0232	0,0254	0,662	0,0294	0,0326	5,0	0,0174	0,0192

Таблица П. 7

Зависимость нормализованных дифференциальных керма- и гамма-постоянных от энергии фотонов *E*_v (MэB) [9]

E_{γ}	$\Gamma^*_{e,i}$	$\Gamma^*_{\mathfrak{I},i}$	E_{γ}	$\Gamma^*_{{}_{{}_{\!$	$\Gamma^*_{\mathfrak{I},i}$
0,03	5,74	0,875	0,4	15,0	2,295
0,04	3,42	0,522	0,5	18,9	2,888
0,05	2,58	0,393	0,6	22,6	3,443
0,06	2,30	0,351	0,7	26,2	3,976
0,07	2,32	0,368	0,8	29,4	4,481
0,08	2,44	0,372	0,9	32,6	4,972
0,10	2,96	0,451	1,0	35,6	5,427
0,15	4,76	0,726	1,5	48,6	7,411
0,20	6,81	1,039	2,0	59,7	9,103
0,30	11,0	1,675	3,0	78,8	12,02

 $\Gamma^*_{e,i}$ (аГр·м²/с·Бк) - нормализованная дифференциальная керма-постоянная;

 $\Gamma^*_{\mathfrak{s},i}$ (Р·см²/ч·мКи) - нормализованная дифференциальная гамма-постоянная.
Таблица П. 8

Полные керма-постоянные $\Gamma_{\mathfrak{s}}$ (а $\Gamma p \cdot m^2/c \cdot b\kappa$) и гамма-постоянные $\Gamma_{\mathfrak{s}}$ ($P \cdot cm^2/q \cdot mKu$)
некоторых радионуклидов [9]

Нуклид	Γ_{θ}	Г,	Нуклид	Γ_{e}	Г,
²² Na	77,7	11,86	$^{95}Zr + ^{95m}Nb$	27,4	4,183
²⁴ Na	120	18,32	⁹⁵ Nb	28,3	4,321
40 K	5,10	0,779	106 Ru+ 106 Rh	7,48	1,142
42 K	8,89	1,357	$^{110m}Ag + ^{110}Ag$	99,3	15,16
⁵¹ Cr	1,16	0,177	¹¹¹ Ag	0,968	0,148
⁵² Mn	120	18,32	^{113m} In*	9,42	1,438
⁵⁴ Mn	30,5	4,656	113 Sn+ 113m In	9,59	1,464
⁵⁶ Mn	56,1	8,565	¹²⁴ Sb	61,0	9,313
⁵⁹ Fe	40,6	6,198	¹³¹ I	14,1	2,153
⁵⁷ Co	3,69	0,563	^{134}Cs	57,6	8,794
⁵⁸ Co	35,9	5,481	$^{136}Cs + ^{137m}Ba$	21,4	3,267
⁶⁰ Co	84,6	12,92	¹³³ Ba	19,6	2,992
⁶⁴ Cu	7,13	1,089	¹⁴⁰ Ba	6,66	1,017
⁶⁵ Zn	20,2	3,084	¹⁴⁰ La	76,4	11,66
⁷⁴ As	28,5	4,351	¹³⁹ Ce	7,97	1,217
⁷⁶ As	15,5	2,366	¹⁴¹ Ce	2,88	0,440
⁷⁵ Se	13,5	2,061	$^{144}Ce + ^{144}Pr$	2,21	0,337
82 Br	94,7	14,46	144 Pr	1,03	0,157
⁸⁶ Rb	3,31	0,505	¹⁵⁵ Eu	2,23	0,340
^{87m} Sr	11,9	1,817	¹⁹² Ir	30,1	4,595
⁸⁹ Sr- ^{89m} Y	$3,1\cdot 10^{-3}$	$4,7.10^{-4}$	²⁰³ Hg	8,55	1,305
⁹¹ Y	0,123	0,019	²²⁶ Ra**	57,8	8,824

* - без учета характеристического рентгеновского излучения $E_x = 24,6$ кэВ ** - в равновесии с продуктами распада.

Таблица П. 9

Εγ,		μ <i>d</i>												
МэВ	0,5	1	2	3	4	5	6	7	8	10	15	20		
0,13	1,40	1,59	2,06	2,46	2,88	3,38	3,99	4,77	5,82	9,21	39,7	220		
0,15	1,29	1,40	1,59	1,70	1,77	1,82	1,86	1,91	1,95	2,05	2,36	2,83		
0,2	1,15	1,18	1,23	1,25	1,27	1,28	1,29	1,30	1,31	1,33	1,37	1,40		
0,3	1,10	1,13	1,21	1,26	1,30	1,34	1,37	1,40	1,42	1,47	1,56	1,64		
0,4	1,11	1,17	1,29	1,38	1,45	1,51	1,57	1,62	1,67	1,76	1,95	2,11		
0,5	1,12	1,22	1,38	1,50	1,61	1,71	1,80	1,89	1,96	2,10	2,42	2,69		
0,6	1,12	1,22	1,41	1,57	1,69	1,80	1,90	2,00	2,10	2,28	2,65	2,97		
0,8	1,14	1,28	1,53	1,74	1,91	2,08	2,24	2,39	2,54	2,83	3,44	4,00		
1,0	1,16	1,31	1,61	1,87	2,10	2,32	2,52	2,75	2,96	3,37	4,30	5,17		
2,0	1,21	1,39	1,76	2,12	2,47	2,83	3,20	3,58	3,97	4,76	6,80	8,89		
3,0	1,23	1,39	1,73	2,09	2,46	2,86	3,29	3,76	4,25	5,31	8,39	12,0		
4,0	1,25	1,41	1,74	2,11	2,49	2,92	3,40	3,92	4,50	5,80	10,1	16,1		

Дозовые факторы накопления для свинца (точечный изотропный источник в бесконечной среде) [9]

Таблица П.10

E_{γ} ,						μd					
МэВ	1	2	3	4	5	6	7	8	10	15	20
0,1	2,78	4,63	6,63	8,80	11,1	13,6	16,3	19,2	25,6	44,9	69,1
0,15	2,82	5,13	7,92	11,2	15,0	19,3	24,2	29,7	42,7	87,6	153
0,2	2,72	5,05	8,00	11,6	15,9	20,9	26,7	33,4	49,6	109	201
0,3	2,52	4,66	7,42	10,8	15,0	19,9	25,6	32,2	48,2	107	198
0,4	2,37	4,31	6,80	9,85	13,5	17,8	22,8	28,5	42.1	90,7	162
0,5	2,27	4,03	6,26	8,97	12,2	15,9	20,2	25,0	36,4	75,6	131
0,6	2,18	3,80	5,82	8,25	11,1	14,3	18,0	22,2	31,8	63,6	107
0,8	2,06	3,47	5,18	7,18	9,47	12,0	14,9	18,1	25,1	47,4	75,7
1,0	1,98	3,24	4,72	6,42	8,33	10,4	12,7	15,2	20,7	37,2	57,1
1,5	1,85	2,86	4,00	5,35	6,60	8,05	9,58	11,2	14,6	24,2	35,0
2,0	1,77	2,65	3,60	4,61	5,68	6,80	7,97	9,18	11,7	18,6	26,0
3,0	1,67	2,38	3,09	3,84	4,61	5,40	6,20	7,03	8,71	13,1	17,7
4,0	1,61	2,18	2,77	3,27	3,98	4,60	5,23	5,86	7,15	10,5	13,9

Дозовые факторы накопления для бетона (р=2,3 г/см³) (точечный изотропный источник в бесконечной среде) [9]

Таблица П.11

k		Энергия ү–излучения, МэВ														
	0,1	0,2	0,3	0,4	0,5	0,6	0,662	0,7	0,8	0,9	1,0	1,25	1,5	2,0	3,0	4,0
1,5	0,02	0,05	0,12	0,21	0,32	0,39	0,45	0,48	0,58	0,66	0,74	0,89	1,0	1,2	1,4	1,4
2	0,03	0,08	0,19	0,34	0,36	0,65	0,75	0,80	0,97	1,1	1,2	1,5	1,7	2,0	2,2	2,2
5	0,06	0,17	0,42	0,76	1,1	1,5	1,7	1,8	2,1	2,4	2,7	3,2	3,7	4,4	4,7	4,7
8	0,08	0,21	0,54	0,97	1,4	1,9	2,1	2,3	2,7	3,1	3,4	4,1	4,7	5,5	5,9	5,9
10	0,08	0,24	0,59	1,1	1,6	2,0	2,3	2,5	3,0	3,4	3,8	4,5	5,2	6,0	6,5	6,5
20	0,11	0,30	0,76	1,4	2,0	2,6	3,0	3,2	3,8	4,3	4,8	5,7	6,6	7,6	8,3	8,2
30	0,12	0,34	0,86	1,5	2,3	3,0	3,4	3,6	4,3	4,8	5,4	6,4	7,4	8,6	9,3	9,3
40	0,14	0,37	0,93	1,7	2,5	3,2	3,6	3,8	4,6	5,2	5,8	6,9	8,0	9,2	10,0	10,0
50	0,14	0,39	0,98	1,8	2,6	3,4	3,8	4,0	4,8	5,5	6,1	7,3	8,4	9,7	10,6	10,6
60	0,15	0,40	1,0	1,8	2,7	3,5	4,0	4,2	5,0	5,7	6,4	7,6	8,7	10,1	11,0	11,0
80	0,16	0,43	1,1	2,0	2,9	3,7	4,2	4,5	5,4	6,1	6,8	8,1	9,3	10,8	11,8	11,7
100	0,17	0,45	1,2	2,1	3,0	3,9	4,4	4,7	5,6	6,4	7,1	8,4	9,7	11,3	12,3	12,3
200	0,20	0,52	1,3	2,4	3,5	4,5	5,1	5,4	6,4	7,3	8,1	9,6	11,1	12,8	14,0	14,0
500	0,24	0,60	1,5	2,7	4,0	5,2	5,9	6,2	7,4	8,4	9,4	11,1	12,8	14,9	16,3	16,3
1000	0,28	0,67	1,7	3,0	4,4	5,7	6,5	6,9	8,2	9,3	10,4	12,3	14,1	16,4	17,9	17,9
2000	0,31	0,74	1,9	3,3	4,9	6,3	7,1	7,6	9,0	10,2	11,3	13,4	15,5	17,9	19,6	19,6
5000	0,35	0,82	2,1	3,7	5,4	7,0	8,0	8,4	10,0	11,3	12,6	14,9	17,2	19,8	21,8	21,8
$1 \cdot 10^4$	0,38	0,89	2,3	4,0	5,8	7,6	8,6	9,1	10,8	12,2	13,5	16,0	18,5	21,3	23,4	23,5
$2 \cdot 10^4$	0,42	0,95	2,4	4,3	6,3	8,1	9,2	9,7	11,5	13,0	14,5	17,2	19,7	22,8	25,1	25,1
$5 \cdot 10^4$	0,46	1,0	2,6	4,7	6,8	8,8	10,0	10,6	12,5	14,2	15,7	18,6	21,4	24,7	27,2	27,3
$1 \cdot 10^{5}$	0,50	1,1	2,8	5,0	7,2	9,3	10,6	11,2	13,3	15,0	16,7	19,7	22,7	26,2	28,9	29,0
$2 \cdot 10^{5}$	0,53	1,2	3,0	5,3	7,7	9,9	11,2	11,8	14,1	15,9	17,6	20,9	24,0	27,7	30,5	30,6
$5 \cdot 10^5$	0,58	1,2	3,2	5,6	8,2	10,6	12,0	12,7	15,1	17,0	18,9	22,3	25,7	29,6	32,6	32,8
$1 \cdot 10^{6}$	0,61	1,3	3,4	5,9	8,6	11,1	12,6	13,3	15,8	17,9	19,8	23,4	27,0	31,1	34,2	34,4

Толщина защиты из свинца (см) в зависимости от кратности ослабления *k* и энергии ү–излучения (широкий пучок)

Таблица П.12

k		Энергия ү–излучения, МэВ														
	0,1	0,2	0,3	0,4	0,5	0,6	0,662	0,7	0,8	0,9	1,0	1,25	1,5	2,0	3,0	4,0
1,5	4,9	7,2	7,5	7.6	7,6	7,6	7,7	7,7	7,8	7,9	8,0	8,4	8,7	9,2	10,2	10,9
2	6,2	9,0	9,9	10,4	10,8	11,1	11,3	11,3	11,5	11,7	11,9	12,5	13,0	14,0	15,8	16,9
5	9,7	14,3	16,2	17,5	18,5	19,3	19,8	19,9	20,7	21,5	22,1	23,8	25,2	27,6	31,6	34,2
8	11,3	16,8	19,0	20,7	22,0	23,1	23,8	23,8	25,0	25,9	26,8	28,8	30,6	33,8	39,0	42,5
10	12,1	17,9	20,4	22,2	23,6	24,8	25,6	25,6	26,9	27,9	28,9	31,2	33,2	36,7	42,4	46,3
20	14,4	21.2	24,3	26,6	28,4	29,9	30,9	31,0	32,6	34,0	35,3	38,2	40,7	45,3	52,8	57,9
30	15,7	23,1	26,5	29,1	31,1	32,9	34,0	34,1	35,9	37,4	38,8	42,2	45,0	50,2	58,7	64,6
40	16,7	24,4	28,1	30,8	33,0	34,9	36,1	36,2	38,2	39,8	41,4	44,9	48,1	53,6	62,8	69,2
50	17,4	25,5	29,3	32,2	34,5	36,5	37,7	37,9	39,9	41,7	43,3	47,1	50,4	56,2	66,0	72,8
60	18,0	26,3	30,2	33,3	35,6	37,7	39,0	39,2	41,3	43,1	44,8	48,8	52,3	58,4	68,6	75,7
80	18,9	27,6	31,8	35,0	37,5	39,7	41,1	41,3	43,6	45,5	47,3	51,5	55,2	61,7	72,6	80,3
100	19,6	28,6	32,9	36,3	38,9	41,2	42,7	42,9	45,3	47,3	49,2	53,6	57,4	64,3	75,7	83,8
200	21,7	31,6	36,4	40,2	43,2	45,9	47,5	47,8	50,5	52,8	55,0	60,0	64,4	72,2	85,3	94,6
500	24,5	35,6	41,1	45,4	48,8	51,9	53,8	54,1	57,2	59,9	62,4	68,2	73,3	82,4	97,8	109
1000	26,6	38,5	44,4	49,2	52,9	56,4	58,5	58,8	62,3	65,2	68,0	74,4	80,0	90,1	107	119
2000	28,7	41,4	47,8	52,9	57,0	60,7	63,0	63,4	67,1	70,4	73,4	80,4	86,7	97,7	116	130
5000	31,4	45,2	52,2	57,8	62,4	66,5	69,0	69,4	73,6	77,1	80,5	88,2	95,2	108	128	143
$1 \cdot 10^4$	33,4	48,1	55,6	61,6	66,4	79,8	73,5	74,0	78,5	82,3	85,9	94,2	102	115	137	154
$2 \cdot 10^4$	35,5	50,9	58,9	65,3	70,5	75,2	78,0	78,6	83,3	87,4	91,3	100	108	122	146	164
$5 \cdot 10^4$	38,2	54,7	63,3	70,2	75,8	80,9	84,0	84,6	89,8	94,2	98,4	109	117	132	158	177
$1 \cdot 10^{5}$	40,2	57,4	66,5	73,8	79,7	85,1	88,4	89,1	94,5	99,2	104	114	123	140	167	188
$2 \cdot 10^{5}$	42,2	60,2	69,7	77,3	83,6	89,3	92,8	93,5	99,2	104	109	120	130	147	176	198
$5 \cdot 10^5$	44,8	63,9	73,9	82,1	88,8	94,8	98,5	99,3	105	111	116	127	138	157	188	211
$1 \cdot 10^{6}$	46,8	66,7	77,1	85,7	92,6	99,0	103	104	110	116	121	133	144	164	197	221

Толщина защиты из бетона (см) в зависимости от кратности ослабления *k* и энергии ү–излучения (широкий пучок)

Содержание

	стр.
РАБОТА 1. Измерение радиоактивности с помощью счетчиков	
Гейгера-Мюллера	4
1.1. Принцип работы газовых ионизационных детекторов	4
1.2. Обработка результатов измерения радиоактивности	7
1.3. Установка со счетчиком Гейгера-Мюллера	14
РАБОТА 2. Определение абсолютной активности методом	
фиксированного телесного угла	16
2.1. Влияние свойств изотопа и условий измерений на величину	
регистрируемой активности	16
2.2. Определение абсолютной активности препарата 90 Sr(90 Y)	20
РАБОТА 3. Идентификация радионуклидов методом гамма-спектрометрии	22
3.1. Гамма-спектрометрия	22
3.2. Определение абсолютных активностей радионуклидов в	
препаратах диоксида обедненного урана	32
3.3. Идентификация радионуклидов и определение их абсолютной	
активности методом сцинтилляционной гамма-спектроскопии	34
РАБОТА 4. Дозиметрия ионизирующих излучений	39
4.1. Радиационная безопасность и основные понятия дозиметрии	39
4.2. Дозиметрия у-излучения. Оценка радиационной обстановки при	
наличии неизвестного у-излучателя.	52
РАБОТА 5. Определение загрязненности радиоактивными вешествами	
рабочих поверхностей	55
РАБОТА 6. Изотопные генераторы	58
6.1. Генератор инлия-113m	58
6.2. Генератор нептуния-239	61
6.3. $\Gamma e \mu e p a \tau p 90 \text{ Sr} \rightarrow 90 \text{ Y}$	62
6.4. $\Gamma_{ehepatop} {}^{44}\text{Ti} \rightarrow {}^{44}\text{Sc}$	64
РАБОТА 7 Радиохроматография Определение радиоактивности	
аминокислот в их смеси	66
РАБОТА 8. Определение эффективности регистрации трития и углерода-14	00
по спектрам, полученным, с помощью жилкостно-сцинтилляционного	
спектрометра	71
РАБОТА 9 Определение коэффициента диффузии (самодиффузии) ионов в	71
растворе на примере определения коэффициента самолиффузии иолил-ионов	75
РАБОТА 10 Определение степени окиспения и покального окружения	10
атомов железа (одова) в неорганических соединениях методом ядерной	
гамма-резонансной спектроскопии	79
10.1. Основные параметры мессбауэровских спектров	79
10.2 Получение мессбауэровских спектров соединений железа и одова	85
РАБОТА 11. Определение содержания калия в содях и природных объектах	05
по его радиоактивности	89
РАБОТА 12 Изучение адсорбнии на поверхности твердых тел методом	07
палиоактивных инликаторов	92
РАСЧЕТНЫЕ ЗАЛАЧИ	96
Питепатура	102
Приложения	102
приложения	105