

УДК 539.1.074

ТОЧНЫЙ МЕТОД ИЗМЕРЕНИЯ АБСОЛЮТНОЙ АКТИВНОСТИ ИСТОЧНИКОВ β -ИЗЛУЧЕНИЯ ДВУХКАМЕРНЫМ ГАЗОРАЗРЯДНЫМ 4П-СЧЕТЧИКОМ

А. С. КАМЕНЕВ

(Кафедра применения изотопов и радиации в сельском хозяйстве)

Предложен метод измерения абсолютной активности β -излучающих препаратов с учетом поглощения излучения в подложке, рассеяния от нее и отражения β -частиц от стенок измерительных камер. Учтены коэффициенты поглощения и рассеяния вплоть до 4-го порядка малости, а также их комбинации. Экспериментальная проверка, произведенная на отечественном счетчике 2151-1-1М «Протока», показала воспроизводимость в пределах точности метода результатов в широком интервале толщин подложек (алюминиевые фольги до $0,5d_{1/2}$), простоту и удобство в работе.

В настоящее время во многих радиохимических и биофизических исследованиях с применением радиоизотопных индикаторов широко используются жидкостные сцинтилляционные счетчики и спектрометры (ЖСС) β -излучения. Исследуемый образец, содержащий меченое вещество в том или ином агрегатном состоянии, помещают в сосуд с жидким сцинтиллятором (ЖС), высвечивающим фотоны видимого спектра в ответ на энергетическое воздействие β -излучения. При этом в зависимости от физико-химического сродства образца к сцинтиллятору возникают различные явления, отрицательно влияющие на результаты счета, которые необходимо учитывать для получения адекватных и воспроизводимых данных. Так, при разделении и идентификации меченых продуктов биосинтеза методом тонкослойной радиохроматографии интересующую область хроматограммы помещают в сцинтиллятор или соскабливают слой носителя с сорбиро-

ванным меченым веществом и также помещают в сцинтиллятор. Во многих случаях различные вещества, разделенные на хроматограмме, в одном и том же сцинтилляторе по-разному экстрагируются и, следовательно, регистрируемая активность метки недостоверно отражает относительное содержание этих соединений в исходной смеси. Кроме того, важным фактором, требующим учета, является степень гашения (поглощения) фотонов в самом веществе сцинтиллятора, что также зависит от сродства образца к ЖС и типа используемого для регистрации ЖС. Существует и ряд других факторов [8—10], влияющих на адекватность измерений, останавливаться на которых нет необходимости.

Хотя для построения кривой гашения к каждому прибору прилагается фабричный эталон, желательно иметь независимый метод, позволяющий проводить нужную калибровку и находить поправочные коэффициенты, например, при

изменении типа используемого сцинтиллятора, совместимости к нему образца и т. п. Эта калибровка заключается в сравнении абсолютных активностей идентичных препаратов, полученных при измерении на ЖСС и на другом приборе, лишенном указанных выше недостатков. К таким приборам, в частности, относится двухкамерный газоразрядный 4л-счетчик, отличающийся высокой чувствительностью к β -излучению различных энергий и эффективностью регистрации, близкой к 100 %. Этот прибор, правда, не лишен недостатков, главным из которых является недосчет активности вследствие поглощения низкоэнергетической части β -спектра в подложке, на которую помещается измеряемый образец и наличие которой, следовательно, неизбежно. Однако двухкамерное устройство счетчика позволяет учесть данный фактор.

Принцип предлагаемого метода измерения абсолютной активности состоит в следующем (рисунок). В верхней камере (режим «2л-верх») регистрируются частицы, направленные от источника (*a*) вверх (1), часть отраженного от подложки (*b*) излучения, направленного первоначально вниз (2), а также частицы, направленные вниз, но не отразившиеся от подложки, а прошедшие через нее, затем отразившиеся от стенок нижней камеры и вернувшиеся в верхнюю, избежав поглощения в подложке и рассеяния от нее (3). Если обозначить полный поток частиц в секунду от препарата N_0 , количество зарегистрированного в режиме «2л-верх» излучения — N_b , часть отраженных подложкой частиц — q , от стенок камеры — p и долю излучения, прошедшего сквозь подложку препарата, — S , то для регистрации β -излучения в

верхней камере можно записать уравнение с учетом малых величин 2-го и 3-го порядков, соответствующих процессам двойного и тройного отражения и поглощения, а также их комбинациям

$$2N_b = N_0 + qN_0 + S^2p(1-q)^2N_0. \quad (1)$$

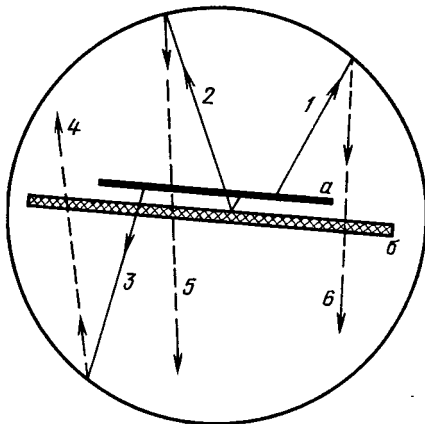
В нижней камере (режим «2л-низ») регистрируются (N_n) излучение потока (3), часть потока (1), отразившаяся от стенок верхней камеры и избежавшая поглощения в подложке и рассеяния от нее, и аналогичная часть потока (3), что соответствует уравнению

$$2N_n = S(1-q)N_0 + Sp(1-q)N_0 + Spq(1-q)N_0. \quad (2)$$

В двух камерах одновременно (режим «2л-верх» + «2л-низ»-4л) регистрируются ($N_{вн}$) частицы из потоков (1), (2) и (3), причем

Схема регистрации β -излучения двухкамерным 4л-счетчиком.

a — препарат; *b* — подложка; 1, 2, 4 — компоненты первичного потока излучения, регистрируемые в режиме 2л (верх); 3, 5, 6 — то же в режиме 2л (низ); 1, 2, 3 — то же при совместном счете в режиме 4л (остальные пояснения даны в тексте).



двукратно отраженное излучение отдельно не регистрируется из-за конечного разрешающего времени счетчика τ :

$$2N_{\text{он}} = N_0 + qN_0 + S(1-q)N_0. \quad (3)$$

И, наконец, в том же режиме, но с препаратом, накрытым идентичным подложке фильтром, регистрируется (N^*) излучение такого состава:

$$N^* = S(1-q)N_0 + Sq(1-q)N_0. \quad (4)$$

Эта система уравнений была рассмотрена в [1, 2] без уравнения (4) и в [4, 7], где приводится приближенное решение без учета членов 2-го и 3-го порядков малости, в связи с чем на сам метод были наложены некоторые ограничения, а в ряде практически важных случаев обнаружена значительная погрешность результатов измерений. В настоящей работе дается решение, учитывающее двойные и тройные акты поглощения и рассеяния β -частиц, что особенно важно при измерении активности испускающих жесткое излучение радионуклидов, помещенных на подложках значительной толщины $d_n \leq 0,5d_{1/2}$, где $d_{1/2}$ — толщина половинного поглощения для излучения данного энергетического спектра. Необходимость использования толстых подложек и вытекающие отсюда последствия будут рассмотрены ниже. Кроме того, предлагаемый метод можно будет применять не только для точечных источников [4], но и для таких, размеры которых соизмеримы с площадью сечения камеры счетчика.

Последнее обстоятельство расширяет сферу использования данного метода и выводит его за пределы калибровочных целей. Оно важно при работе с источниками малой удельной активности, когда для получения достоверных резуль-

татов желательно ввести в камеру как можно больше активного материала при небольшой его поверхностной плотности I_{np} , чтобы не вносить больших ошибок измерения за счет поглощения излучения в самом материале источника. Такие задачи, в частности, характерны для радиологической практики зональных агрохимических лабораторий при изучении выпадения и миграции в объектах биосферы радионуклидов различного происхождения. Заметим, что здесь, как и во всех цитированных публикациях, коэффициенты S , p , q предполагаются постоянными, хотя это приближенно выполняется лишь при относительно небольшой ($< 0,2d_{1/2}$) толщине подложек.

Преобразуем уравнения (1)...(4) и сгруппируем их в систему:

$$2N_n N_0^{-1} = (1+q) + p[S(1-q)]^2; \quad (5)$$

$$2N_{\text{он}} N_0^{-1} = (1+q) + [S(1-q)]; \quad (6)$$

$$2N_n N_0^{-1} = S(1-q)[1+p(1+q)]; \quad (7)$$

$$N^* N_0^{-1} = S(1-q)(1+q). \quad (8)$$

Последнее соотношение (7) на (8) получим

$$(1+q) = N^*(2N_n - pN^*)^{-1}, \quad (9)$$

а деление уравнения (6) на (8) позволяет найти выражение в квадратной скобке:

$$[S(1-q)] = N^*(1+q)[2N_{\text{он}}(1+q) - N^*]. \quad (10)$$

И, наконец, после деления уравнения (5) на (6) выражение примет вид

$$\frac{N_n}{N_{\text{он}}} = \frac{(1+q) + p[S(1-q)]^2}{(1+q) + [S(1-q)]}, \quad (11)$$

откуда после подстановки соотношений (9) и (10) можно опре-

делить параметр p — долю излучения, отраженного от стенок измерительных камер:

$$p = 2(N_{\sigma} + N_{\kappa} - N_{\text{вн}}) [N^* (K + 1)]^{-1}, \quad (12)$$

где $K = (N_{\text{вн}} - N_{\sigma})(N_{\text{вн}} - N_{\kappa})^{-1}$ — так называемый коэффициент проницаемости подложки, аналогичный используемому в [1]. После этого нетрудно найти выражения и для других параметров измерений. Доля излучения, прошедшего сквозь подложку (величина, обратная поглощению), равна

$$S = K(K + 1) \left(K \frac{4N_{\text{вн}} - N^*}{N^*} - 1 \right)^{-1}, \quad (13)$$

а часть излучения, отраженного от подложки источника, выглядит так:

$$q = \frac{(K + 1)N^*}{2KN_{\text{вн}}} - 1. \quad (14)$$

Окончательный результат, т. е. полное количество частиц, испускаемых препаратом, получим из уравнения (8)

$$N_0 = \frac{4N_{\text{вн}}^2 K}{N^* (K + 1)^2}; \quad K = \frac{N_{\text{вн}} - N_{\sigma}}{N_{\text{вн}} - N_{\kappa}} < 1, \quad (15)$$

причем при $K \rightarrow 1$ (бесконечно тонкая подложка) $N^* \rightarrow N_{\text{вн}}$ и $N_0 \rightarrow N_{\text{вн}}$, а при $K \rightarrow 0$ ($d_n > R_{\text{max}}$) можно подставить (14) в (15) и получить другое предельное выражение $N_0 \rightarrow 2N_{\sigma}(1 + q)^{-1}$, где q — экспериментально определяемый коэффициент обратного рассеяния. Если при одном распаде ядра излучается одна $\beta \pm$ -частица, то формула (15) выражает абсолютную активность образца в Бк, в противном случае необходимо учесть схему распада данного нуклида и рассчитать относительный выход заряженного излучения на один распад [6].

Поскольку N_0 в (15) есть результат косвенных измерений, то в общем случае статистическая ошибка такой величины может быть значительной. Для вывода формулы, оценивающей точность δ_{N_0} абсолютной активности N_0 (15), предположим, что статистические ошибки отдельных измерений δ_i приблизительно равны ($N_i t_i \approx \approx \text{Const}$), где t_i — время отдельного измерения. Это несложно осуществить на практике: Тогда, применяя известные методы расчета [2], после необходимых преобразований получим

$$\delta_{N_0} = N_0^{-1} \left[\sum_i \left(\frac{\partial N_0}{\partial N_i} \right)^2 \delta_i^2 N_i^2 \right] = \\ = \left[5\delta_i^2 + \left(\frac{1 - K}{1 + K} \delta_K \right)^2 \right]^{1/2}, \quad (16)$$

где N_0 — выражается формулой (15), δ_K — статистическая ошибка величины K , которую можно представить в виде неравенства, получаемого при подстановке максимально возможных значений входящих сюда переменных:

$$\delta_K = \frac{[N_{\sigma}^2 (N_{\text{вн}} - N_{\kappa})^2 + N_{\text{вн}}^2 (N_{\sigma} - \\ - N_{\kappa})^2 + N_{\kappa}^2 (N_{\text{вн}} - N_{\kappa})^2]^{1/2} \delta_i}{(N_{\text{вн}} - N_{\sigma})(N_{\text{вн}} - N_{\kappa})} < \\ < \frac{\sqrt{3}\delta_i}{K}. \quad (17)$$

После подстановки максимума (17) в (16) выражение для оценки точности результата примет вид

$$\delta_{N_0} \leq \left\{ 5 + 3 \left[\frac{1 - K}{K(1 + K)} \right]^2 \right\}^{1/2} \delta_i. \quad (18)$$

Прикидочные расчеты, сделанные на основании табличных значений коэффициентов поглощения и рассеяния β -излучения различных энергий, а также непосредственные измерения показывают, что при выполнении условия «бесконечно тонкого» образца ($l_{np} \leq 0,01d_{1/2}$) относительная статистическая ошибка результата, вычисляемого по формуле (15), будет изменяться при изменении толщины подложки препарата d_n в интервале от $\sim 0,02d_{1/2}$ до $\sim 1,0d_{1/2}$ (когда параметр $K \leq 0,3$) в пределах $\leq (2,3 \dots 4,0)\delta_i$, причем точность δ_i при необходимости может составлять 1% и менее даже для 95% доверительного интервала.

Работоспособность формулы (15) при различных экспериментальных условиях проверяли на отечественном 4л-счетчике типа 2154-1-1М «Протока», работающем в газопротоочном режиме, разрешающее время которого $\tau \approx 10^{-6}$ с. Активность препаратов была такой, что погрешность, обусловленная просчетами, не превышала 0,1%. В качестве источников использовали различные β -излучатели — ^{14}C ($E_{m.1} = 0,155$ Мэв), ^{204}Tl ($E_m = 0,765$), ^{32}P ($E_m = 1,71$), а также равновесную смесь $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$ ($E_{m.1} = 0,61$, $E_{m.2} = 2,27$ Мэв) с весьма широким энергетическим диапазоном. Подложкой служила алюминиевая фольга в интервале толщин $(0,01 \dots 0,5)d_{1/2}$ для различных спектров — таким образом снимался вопрос о недосчете вследствие поляризации подложки [3, 5]. Активность всех препаратов была достаточно высокой для получения статистической точности каждого измерения δ_i порядка 0,5% за вполне приемлемое время. Сначала измерения производили при условии $l_{np} \leq 0,01d_{1/2}$, что

обеспечивало весьма малую степень поглощения излучения в веществе препарата. Такие препараты получали путем испарения в специальных условиях [3] капли раствора точного объема, содержащего данный радионуклид с ничтожным количеством носителя. Кроме точечных, измеряли тонкослойные препараты, распределенные по площади подложки.

Калибровку счетчика производили на основании результатов измерения абсолютной активности с 5 повторностями препаратов, которые приготовлены из образцового раствора (ОРР), содержащего $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$, 1-го разряда ($\pm 3\%$ в 95% доверительном интервале). Для подложек всех используемых толщин отклонения результатов измерений от паспортного значения активности ОРР находились в пределах статистических ошибок (17). Хорошая воспроизводимость результатов и их соответствие, независимо от толщины подложки в указанных пределах, были свойственны и перечисленным выше радионуклидам.

Такая некритичность метода к толщине подложки объясняется, с одной стороны, учетом факторов многократного отражения и поглощения β -частиц и их комбинаций, а с другой, — видимо, происходящей при совместном учете компенсацией значений соответствующих коэффициентов, которые не могут быть константами уже после 1-го поглощения, поскольку энергия β -спектра при этом в целом уменьшается.

Акцент на использовании подложек относительно большой толщины не является надуманным, так как в ряде случаев исследуемый образец необходимо на месте подвергнуть сушке или прокаливанию, что легко может при-

ЛИТЕРАТУРА

вести к деформации излишне тонкой фольги и сделать препарат непригодным по геометрическим соображениям. Существующие же руководства ориентируют на использование тончайших ($d_n \leq \leq 0,01d_{1/2}$) органических пленок, напыленных металлом, что невозможно без специальной аппаратуры и довольно затруднительно [1, 5]. Несмотря на то, что факторами поглощения и отражения при этом можно без существенной потери точности пренебречь, все же на пути излучения, проходящего под острым углом к поверхности подложки, может оказаться весьма значительное количество поглотителя. Это особенно ощутимо для мягкой компоненты β -спектра и, несомненно, приводит к большему или меньшему недосчету, что зависит от максимальной энергии данного спектра излучения.

Таким образом, можно заключить, что рассмотренная модификация метода 4 измерений абсолютной активности тонкослойных источников β -излучения проста в использовании, не критична к выбору подложек и в интервале толщин $(0,02 \dots 0,5)d_{1/2}$ обеспечивает точность результата не хуже $3\delta_i$ (18), где δ_i — точность отдельных измерений. Это вполне соответствует целям калибровки растворов и эталонирования препаратов, поскольку значение δ_i при соответствующем наборе импульсов можно довести до любого заданного минимума.

1. *Аглинцев К. К.* Дозиметрия ионизирующих излучений.— М.: Атомиздат, 1957.— 2. *Гольданский В. И., Куценко А. В., Подгорецкий М. И.* Статистика отсчетов при регистрации ядерных частиц.— М.: Физматгиз, 1959.— 3. *Дробот В. И., Штуккенберг Ю. М.* Измерение активности источников при помощи счетчиков с геометрией 4л. Второй вариант.— В сб.: Дозиметрические и радиометрические методики. М.: Атомиздат, 1966, с. 374—381.— 4. *Каменев А. С.* Измерения абсолютной активности тонкослойных источников бета-излучения 4л-счетчиком «Протока».— Изв. ТСХА, 1975, вып. 4, с. 219—221.— 5. *Нежелский Ю. В., Шарлапов В. И.* Определение активности источников бета-излучения 4л-счетчиком.— В сб.: Дозиметрический и радиометрический контроль. М.: Энергониздат, 1981, т. 2, с. 170—174.— 6. Таблицы физических величин / Под ред. И. К. Кирилина.— М.: Атомиздат, 1976.— 7. *Штуккенберг Ю. М., Дробот В. И.* Метод измерения абсолютной активности тонкослойных источников в 4л-геометрии.— Тр. Всесоюз. науч.-техн. конф. по применению радиоактивных и стабильных изотопов в народном хозяйстве и науке.— М.: Изд-во АН СССР, 1958, с. 270—277.— 8. *Шрам Э., Ломбер Р.* Органические сцинтилляционные детекторы.— М.: Атомиздат, 1967.— 9. *Коломийцева Г. Я., Сенченков Е. П.* Измерение радиоактивности методом сцинтилляции в жидкой среде.— Физико-химические методы молекулярной биологии. М.: Наука, 1978, с. 173—195.— 10. *Остерман Л. Н.* Исследование биологических макромолекул электрофокусированием, иммуноэлектрофорезом и радиоизотопными методами.— М.: Наука, 1983.

Статья поступила 26 декабря 1991 г.

SUMMARY

A precise method of measuring the β -source absolute activity by two-chamber gas-discharge 4 π -counter has been proposed. The factors of scattering and absorption of β -radiation from the source-backing and β -particles reflection on the measuring chamber walls are taken into account up to coefficients of cubic-order term.