

УДК 539.107.42:539.16.08

ИЗМЕНЕНИЕ АКТИВНОСТИ СМЕСИ БЕТА-ИЗЛУЧАЮЩИХ РАДИОНУКЛИДОВ МЕТОДОМ ЧАСТИЧНОГО ПОГЛОЩЕНИЯ ИЗЛУЧЕНИЯ

А.С. КАМЕНЕВ, Е.Н. ПОПОВА

(Кафедра физики, кафедра применения изотопов и радиации
в сельском хозяйстве)

Анализируется точность измерений активности двухкомпонентной смеси радионуклидов методом последовательной регистрации излучения до и после частичного поглощения мягкой составляющей бета-спектра в фильтре с последующим расчетом парциальных активностей каждого из компонентов. Учитывается накопление суммарной погрешности окончательного результата при наличии в расчетах статистически флуктуирующих величин в зависимости от соотношения концентраций компонентов в смеси и эффективности регистрации излучения от каждого из компонентов. Приводятся некоторые выражения для расчета реальной погрешности измерений и оценки предполагаемой ошибки при различных условиях измерений в общем случае.

Несмотря на наличие высокоэффективных жидкостных сцинтилляционных бета-спектрометров, часто бывает удобнее и проще измерять активность радионуклидов по β -излучению, используя газоразрядные счетчики типа Гейгера-Мюллера с 2л- или 4л-геометрией и системой активного понижения фона. При этом удается избежать некоторые трудности, связанные с эталонированием, учетом гашения и т.п., что вообще присуще методу ЖСС, и получить вполне адекватные результаты даже в случае работы со смесями радионуклидов.

Один из таких методов измерения малых активностей радионуклидов в объектах окружающей среды предлагается в [1] на основе малофонового радиометра, разработанного авторами. Однако предлагая методику для раздельного измерения изотопов ^{89}Sr и ^{90}Sr в образце при помощи частично поглощающего фильтра и последовательной регистрации излучения до и после поглощения в фильтре, авторы [1] при анализе точности окончательного результата не учитывают накопленные суммарной погрешности при наличии в расчетной формуле разности близких величин, которая в данном случае зависит от соотношения активностей компонентов смеси и относительной проникающей способности излучения каждого из них через используемый разделительный фильтр.

В радиометрии малых активностей известна формула [4]

$$A_{\min} \sim (1 + 2\delta_A \sqrt{n_\phi t}) / \delta_A^2 t F, \quad (1)$$

где δ_A — относительная статистическая ошибка величины A_{\min} для выбранного доверительного интервала, A_{\min} — минимальная величина активности измеряемого препарата с нужной точностью δ_A в данных условиях, n_ϕ (имп/с) — характерная скорость счета фона радиометра, F — полная эффективность регистрации излучения данного β -спектра используемым детектором, $t(c)$ — суммарное время измерения скорости счета фона t_ϕ и препарата $t_{\text{пр}}$. Выражение (1) имеет оптимизирующий характер и позволяет рассчитывать один из параметров при заданных прочих. Обычно рассчитывают время измерений t_ϕ и $t_{\text{пр}}$ при заданной точности δ_A для известных F и n_ϕ данного радиометра и ориентировочной величине $n_{\text{пр}}$. [4].

$$t_{\text{пр}} = (n_{\text{пр}} + \sqrt{n_\phi n_{\text{пр}}}) / \delta_A^2 (n_{\text{пр}} - n_\phi)^2, \\ t_\phi = t_{\text{пр}} \sqrt{n_\phi / n_{\text{пр}}}. \quad (2)$$

Однако такие расчеты применимы к случаю измерения активности препаратов, содержащих один радионуклид или при измерениях суммарной активности без конкретизации вклада каждого компонента. Получение данных по каждому из компонентов смеси радионуклидов разностным методом с применением фильтра для отсекающей мягкой составляющей спектра приводит к следующим уравнениям:

$$n_0 = n_1 + n_2; n_i = n_i / f_1 + n_i / f_2; \\ A_1 = K_1 n_1; A_2 = K_2 n_2,$$

решение которых дадим здесь в обозначениях из работы [1]:

$$A_1 = A(^{89}\text{Sr}) = K(^{89}\text{Sr})(n_1 f_1 - n_0) f_2 / (f_1 - f_2),$$

$$A_2 = A(^{90}\text{Sr}) = K(^{90}\text{Sr})(n_0 - n_1 f_2) f_1 / (f_1 - f_2), \quad (3)$$

где A_i — активности соответствующих изотопов, f_i — коэффициенты поглощения излучения компонентов в материале фильтра, K — эффективности регистрации β -излучения соответствующей энергии используемым детектором, n_0 и n_1 — скорости счета импульсов радиометром до и после установки фильтра. По этим формулам несложно рассчитать абсолютную активность ^{89}Sr в присутствии ^{90}Sr , и наоборот, причем в общем случае результат зависит от соотношения нескольких независимых параметров, изменяющихся в самых широких пределах; в частности, отсюда видно, что в формулу (3) для косвенного определения искомого значения A входят разности величин, причем в числителе — довольно близких и имеющих в ряде случаев значительную статистическую ошибку δ_n . Это само по себе, согласно правилу переноса ошибок случайных величин, входящих в формулу для расчета результата [3], может существенно влиять на относительную погрешность δ_A искомого величины $A(^{89}\text{Sr})$ или $A(^{90}\text{Sr})$ и в общем случае делать ее гораздо больше, чем ожидается по формуле (1).

Даже если считать, что коэффициенты эффективности регистрации $K(^{89}\text{Sr}) \approx K(^{90}\text{Sr}) \approx K$ и поглощения f_1, f_2 измерены при помощи эталонов высокого класса и могут считаться константами, то и тогда погрешность окончательного результата будет определяться членом $(n_0 - n_1 f_2)$, здесь

n_{70} — это n_1 при использовании фильтра 70 мг/см^2 . Для упрощения расчетов примем, что статистические ошибки скорости счета импульсов δ_n и δ_{n_1} примерно равны: $\delta_n \approx \delta_{n_0} \approx \delta_{n_{70}}$. Это не трудно осуществить, используя выражение (2), хотя счет n_1 при наличии фильтра 70 мг/см^2 для выполнения этого условия потребует значительно больше времени, чем счет препарата без фильтра n_0 . Тогда относительная погрешность величины рассчитываемой по (3) активности ^{89}Sr в присутствии ^{90}Sr наоборот определяется так:

$$\delta_A(^{89}\text{Sr}) = \delta_n \sqrt{n_1^2 f_1^2 + n_0^2} / (n_1 f_1 - n_0),$$

$$\delta_A(^{90}\text{Sr}) = \delta_n \sqrt{n_1^2 f_2^2 + n_0^2} / (n_0 - n_1 f_1), \quad (4)$$

что может существенно превышать указанные в [1] $\delta_A = 25\%$ в аналогичных условиях. Априорная оценка δ_A для этих условий может быть сделана исходя из общих представлений о соотношении радионуклидов в измеряемом препарате $p = A(^{89}\text{Sr})/A(^{90}\text{Sr})$ и относительном коэффициенте поглощения излучения в используемом фильтре. $l' = f_1/f_2 = 2 \wedge (d_1/d_{1/2,1} - d_{1/2,2})$, и если $l' = 1/1$, тогда имеем:

$$\delta_A(^{89}\text{Sr}) \approx \delta_n \sqrt{[(1+p)^2 + (1+p^2)/p(1-1)]},$$

$$\delta_A(^{90}\text{Sr}) \approx \delta_n \sqrt{[1+p]^2 + l^2(1+p^2)/(1-1)} \quad (4)$$

что для толщины фильтра $d_f = 70 \text{ мг/см}^2$ [1] и табличных значений $d_{1/2,1}$ и $d_{1/2,2}$ дает $l' \approx 0,2$.

Нетрудно видеть, что, например, при одинаковой активности распадаемых изотопов стронция в пробе ($p = 1$) из (5) имеем $\delta_A(^{89}\text{Sr}) \approx 1,58\delta_n$; $\delta_A(^{90}\text{Sr}) \approx \approx 2,9\delta_n$. В реальном же эксперименте эта величина может варьировать в широких пределах в зависимости от соотношения активностей изотопов стронция, которое в поврежденном блоке Чернобыльской АЭС, например, составляло в первый момент $p = 10$ [2] и, следовательно, при распаде ^{89}Sr ($T_{1/2} = 52$ дня) непрерывно изменялось. При этом теоретически возможная погрешность определения активности именно ^{90}Sr на фоне ^{89}Sr этим методом могла, согласно (5), составлять от 17 до 9 δ_n в первые недели и месяцы после выброса, и хотя в настоящее время содержанием ^{89}Sr в чернобыльских выпадениях можно пренебречь, такая ситуация при свежих выбросах является обычной.

Кроме того при измерении активности только что выделенного стронция (без равновесного ^{90}Y) все-таки нельзя строго считать, что $K(^{89}\text{Sr}) = (^{90}\text{Sr})$. Даже при толщине окошка счетчика $d_{\text{ок}} = 8$ мкм (≈ 2 мг/см²) различие в поглощении излучения от ^{89}Sr и ^{90}Sr составляет около 6%. Плюс к этому нельзя исключать влияние самопоглощения более мягкого излучения от ^{90}Sr самим образцом (например, при толщине образца ≈ 5 мг/см² разница в потерях от этого эффекта составляет $\approx 8\%$, а при толщине 10 мг/см² — $\approx 15\%$ и т.д.), а в результате даже с учетом обратного рассеяния β -частиц от подложки различие в коэффициентах эффективности регистра-

ции K_i может в принципе достигать 10—20%.

Какой толщины были образцы, об этом в статье [1] также ничего не сказано. С другой стороны, сравнивать эффективности регистрации излучения суммарного, усредненного по энергиям, спектра равновесного $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$ с таковым от ^{89}Sr можно только в самом грубом приближении и при тех величинах толщин фильтров, когда еще наблюдаются линейные закономерности поглощения в полулогарифмическом масштабе. В противном случае энергии двух β -спектров $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$ свойством аддитивности не обладают и усредненный коэффициент эффективности регистрации не может характеризовать достаточно адекватно процесс поглощения излучения.

Измерения парциальной активности компонентов равновесной смеси $^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$ удобно использовать для калибровки радиометра, проверки воспроизводимости результатов при различной толщине фильтра для получения максимально возможной величины n_i при минимальной погрешности результата δ_A , согласно

$$p = K_n f_n (n_{f_c} - n_0) / K_c f_c (n_0 - n_{f_n}) = 1$$

и

$$n_g = n_0 (K_n f_n + p K_c f_c) / f_n (K_n + p K_c). \quad (6)$$

Последняя операция необязательна, если речь не идет об измерении сверхмалых активностей или регистрации очень мягких β -спектров.

Таким образом, всегда следует иметь в виду возможность резко-

го увеличения погрешности окончательного результата при использовании разностного метода в случаях недостаточно большого различия максимальных энергий спектров излучения нуклидов ($1 \geq 1$), а также при неблагоприятном соотношении содержания компонентов в смеси p (5).

Выбор оптимальных условий измерений активности методом частичного поглощения зависит от величины активности компонентов в смеси A_1 , соотношения активностей $p = A_1/A_2$, относительного коэффициента поглощения $1 = f_1/f_2$, а также определяется величиной собственного фона радиометра n_ϕ и заданной точностью результатов δ_A . Очевидно, что после введения фильтра, согласно (6), имеем $n_f/n_0 = k < 1$. При этом для получения одинаковой статистической ошибки отдельного измерения n_0 и n_f , как следует из (2), потребуется увеличение времени измерений t_f .

Пусть $m = n_a/n_0$, тогда при заданной точности δ_0 получаем выражение для расчета времени измерения скорости счета импульсов от препарата без фильтра

$$t_0 = (1 + \sqrt{m})/n_0 \delta_0^2 (1 - m)^2; \quad t_\phi = t_0 \sqrt{m}. \quad (7)$$

Для обеспечения той же точности измерений $\delta_f \approx \delta_0$ скорости счета препарата с фильтром, отсекающим мягкую составляющую, имеем

$$t_f = (k + \sqrt{km})/n_0 \delta_0^2 (k - m)^2; \quad t_\phi' = t_f \sqrt{m/k}, \quad (8)$$

откуда видно, что суммарное время измерений только скоростей счета препаратов без измерений

фона $T = t_0 + t_f$ может в значительной степени возрасти, особенно при условии $K \geq m$. Относительное возрастание времени измерений $r' = t_0'/t_0$ по сравнению с t_0 равно

$$r' = (k + \sqrt{km})/(k - m)^2 (1 + \sqrt{m}), \quad (9)$$

а общее безразмерное время измерений будет $r = 1 + r'a$; $a = \delta_a/\delta_0$.

Таким образом, выбор оптимальной толщины фильтра d_f согласует приемлемую точность результата с не слишком большим временем измерений, когда еще не проявляются эффекты, связанные с нестабильностью работы самой измерительной и регистрирующей аппаратуры.

На рис. 1 и 2 представлены некоторые данные о калибровке радиометра эталонной смесью радионуклидов и расчетный материал, позволяющий выбрать оптимальную толщину фильтра в конкретных условиях.

При массовых измерениях активности ^{90}Sr и ^{89}Sr в образцах, полученных из природных объектов (случай типично малых активностей), реальная погрешность результатов для каждого из компонентов смеси может в общем случае быть гораздо больше, чем статистическая ошибка скорости счета импульсов δ_n и δ_{nr} , согласно формуле (4). Для достижения приемлемой точности $\approx 25\%$ или около того при неблагоприятном соотношении концентрации компонентов смеси в препаратах может потребоваться существенно больше времени измерений, согласно формуле (2), чем указано в работе [1] для аналогичных условий эксперимента.

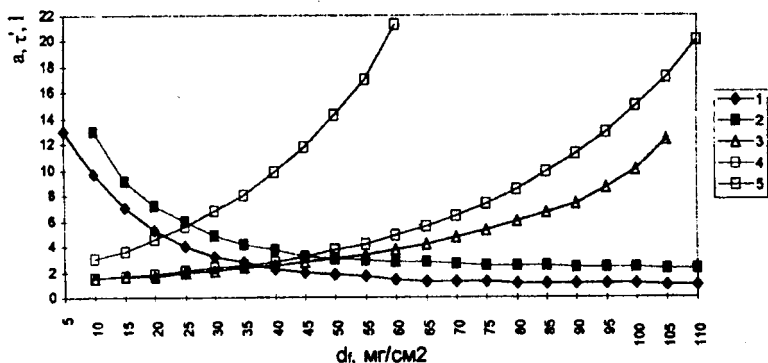


Рис. 1. Результаты калибровочных измерений активности равновесной смеси радионуклидов $^{90}\text{Sr}(\delta_1)$ с $^{90}\text{Y}(\delta_2)$ при $p = 1$ с использованием газопроточного счетчика с 2π -геометрией без окошка ($K = 1$).

1. $\delta_1 = f(d_f)$; 2. $\delta_2 = f(d_f)$; 3. $\tau = f(d_f)$ при $m = 0,1$;

4. $\tau = f(d_f)$ при $m = 0,3$; 5. $l = f(d_f)$, $a = \delta_{A_1}/\delta_0$.

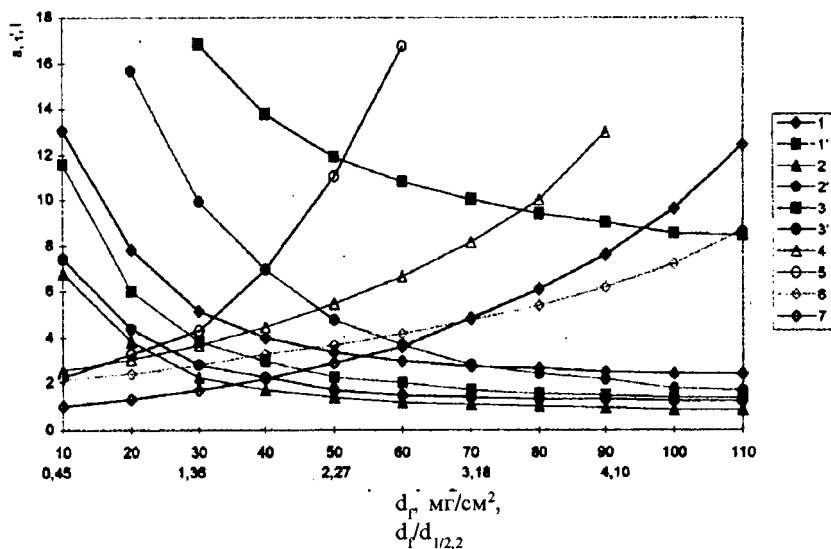


Рис. 2. К выбору оптимальной толщины фильтра d_f для измерения активности препаратов, содержащих изотопы ^{89}Sr и ^{90}Sr в различных соотношениях, $p = A_{\text{Sr}^{89}}/A_{\text{Sr}^{90}}$, $m = 0,1$.

1—3. $\delta_i = f(d_f)$ соответственно при $p = 1; 0,2; 5$;

^{89}Sr — 1, 2, 3; ^{90}Sr — 1', 2', 3'; 4—6. $\tau = f(d_f)$ при $p = 1; 0,2; 5$; 7. $l = f(d_f)$;

Оптимальная толщина фильтра порядка $d_f \approx 50$ мг/см²; $a = \delta_{A_1}/\delta_0$.

Подобного рода методика измерений парциальных активностей компонентов смеси радионуклидов ^{137}Cs и равновесной системы ^{90}Sr с ^{90}Y описана нами в работе [5] и квалифицируется как весьма приближенная, скорее пригодная для оценки величин активности компонентов в препарате, чем для более или менее точных измерений по указанным выше причинам, особенно в случае малых активностей.

ЛИТЕРАТУРА

1. Антоненко Г.И., Савина В.И. Приборы и техника эксперимен-

та, 1995, № 3, с. 154. — 2. Антоненко Г.И., Савина В.И. Атомная энергия, 1988, т. 64, № 1, с. 31. — 3. Гольданский В.И., Куценко А.В., Подгорецкий М.И. Статистика отчетов при регистрации ядерных частиц. М.: Физматгиз, 1959. — 4. Дементьев В.А. Измерение малых активностей радиоактивных препаратов. М.: Атомиздат, 1967. — 5. Каменев А.С. Радиометрия и дозиметрия ионизирующих излучений. Метод. руко к практикуму по с.-х. радиоэкологии. М.: МСХА, 1994.

Статья поступила 29 мая 1997 г.

SUMMARY

The accuracy of radioactivity measurement of double-component mixture by method of sequential detection of total β -radiation and β -radiation after filter (without soft β), with next calculation of radioactivity of each component, is analysed. It is accounted the accumulation of summary error of final result in statistically changing quantities presence. The accumulation of summary error is considered with different proportion of radioactive components in sample. It is accounted difference of effective detection coefficients of each β -radiation component. Some equation for calculation real measurement error and assessment of the error with different measurement conditions in common case are presented.