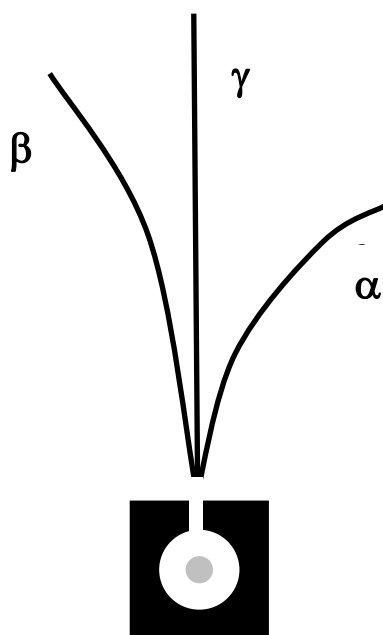




МОСКОВСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ
имени М.В. Ломоносова
ХИМИЧЕСКИЙ ФАКУЛЬТЕТ
КАФЕДРА РАДИОХИМИИ

П Р А К Т И К У М

Основы радиохимии и радиоэкологии



МОСКВА 2012

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

Абрамов Александр Афанасьевич,
Алиев Рамиз Автандилович,
Афанасов Михаил Иванович,
Бадун Геннадий Александрович,
Бердонос Сергей Серафимович,
Калмыков Степан Николаевич,
Куликов Леонид Алексеевич,
Северин Александр Валерьевич,
Чернышева Мария Григорьевна.

Под редакцией д.х.н., доцента Афанасова М.И.

Утверждено учебно-методической комиссией
Химического факультета МГУ имени М.В.Ломоносова
в качестве учебного пособия

ПРАКТИКУМ «ОСНОВЫ РАДИОХИМИИ И РАДИОЭКОЛОГИИ».
Под редакцией М.И. Афанасова – 2-е издание, переработанное и допол-
ненное - М.: Химический факультет МГУ им. М.В. Ломоносова, 2012

© Химический факультет МГУ имени М.В. Ломоносова, 2012

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».

Настоящее учебное пособие является дополненным и переработанным изданием практикума «Основы радиохимии и радиоэкологии», выпущенным в 2008 г. В данном пособии приведены 12 типов 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 расчетные задачи по некоторым разделам курса для самостоятельного решения. Приведены необходимые для расчетов справочные таблицы.

Теоретический материал курса (радиоактивные превращения, законы распада и накопления радионуклидов, взаимодействие излучения с веществом и его регистрация, особенности поведения и методы разделения радионуклидов, применение радионуклидов в научных исследованиях) приведен в учебнике «Радиоактивные индикаторы в химии. Основы метода» под редакцией Лукьянова В.Б. (М.; Высшая школа, 1985). Более подробно разделы курса изложены в новом учебном пособии профессора Бекмана И.Н. «Радиохимия, том I. Радиоактивность и радиация» (М.; ОнтоПринт, 2011). Кроме того, современное состояние исследований радиоактивности окружающей среды подробно рассмотрено в актуальном труде сотрудников кафедры Сапожникова Ю.А., Алиева Р.А. и Калмыкова С.Н. «Радиоактивность окружающей среды. Теория и практика» (М.; БИНОМ. Лаборатория знаний, 2006).

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 заполненные 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 через газовую среду и создается

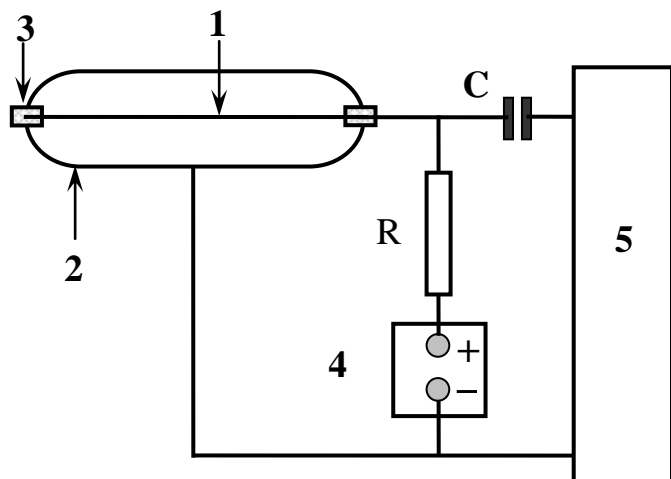


Рис. 1.1. Схема включения газового счетчика:
1- анод; 2 – катод; 3 – изолятор; 4- источник высокого напряжения; 5- блок регистрации;
R – нагрузочное сопротивление; C - конденсатор

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 это-

го 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 10^9 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 τ).

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 (τ) детектора или установки в целом – это минимальный интервал времени между двумя последовательными импульсами (частицами), которые регистрируются отдельно. 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:

$$I_m \cdot \tau \cdot I_c = I_m - I_c \quad (1.1)$$

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

$$\tau = \frac{I_m - I_c}{I_m \cdot I_c} \quad (1.2)$$

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 $1 \div 3\%$, в результат измерения вводят поправку на разрешающее время (уравнение 1.3). Для счетчиков Гейгера-Мюллера, например, этому условию соответствует

$I_c = 50 \div 150$ 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).

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

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

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

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

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

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

$$\sigma = \sqrt{\sigma^2} \quad (1.6)$$

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 $\phi(x) dx$, где функция $\phi(x)$ – плотность вероятности нормального распределения

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

Кривую нормального распределения характеризуют генеральные параметры μ и σ^2 .

На практике проводится ограниченное число экспериментов (измерений). Совокупность n 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 n результатов рассчитывают *выборочное среднее* (среднее арифметическое)

$$\bar{x} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n x_i \quad (1.8)$$

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

$$s^2 = \frac{1}{n-1} \sum_{i=1}^n (\bar{x} - x_i)^2 \quad \text{и} \quad s = \sqrt{s^2} \quad (1.9)$$

Величину s называют также *выборочным стандартным отклонением*.

Для серии из n измерений скорости счета I стандартное отклонение, согласно (1.9), равно:

$$s_I = \sqrt{\frac{1}{n-1} \sum_{i=1}^n (I_i - \bar{I})^2} \quad (1.10)$$

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 n 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 n , 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 \bar{N} , определяется выражением:

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

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

Таким образом, дисперсия пуассоновского распределения числа импульсов равна

$$\sigma_{n(N)}^2 = \bar{N} \quad (1.12)$$

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 :

$$\sigma_{n(N)} = \sqrt{\bar{N}} \cong \sqrt{N_i} \quad \text{и} \quad \sigma_{n(I)} = \frac{\sqrt{\bar{N}}}{t} = \sqrt{\frac{\bar{I}}{t}} \cong \sqrt{\frac{I_i}{t}} \quad (1.13)$$

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

$$\mu \cong \bar{x} \quad \text{и} \quad \sigma^2 \cong s^2 \quad (1.14)$$

В пределе, при $n \rightarrow \infty$, среднее \bar{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

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

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

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

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 $s_{\bar{x}}^2$, приведены в табл. П.2. Используя значения $t_{\gamma,f}$, можно определить доверительный интервал для генерального среднего μ при вероятности γ :

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

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:

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

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

$$\sigma_{\bar{x}}^2 = \sigma^2 / n \quad (1.20)$$

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

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

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

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

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 .

Таблица 1.2.1

$u_\gamma = t_\infty$	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 :

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

Доверительная погрешность в данном случае определяется как:

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

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

$$\bar{x} \pm \Delta_{\gamma,t} \quad \text{или} \quad \bar{x} \pm \Delta_{\gamma,u} \quad (1.25)$$

Относительная доверительная погрешность (δ_γ) среднего арифметического равна:

$$\delta_\gamma = \frac{\Delta_{\gamma,u}}{\bar{x}} \quad (1.26)$$

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:

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

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 $\chi_{\text{эксп.}}^2$ не превышает табличного значения $\chi_{0,05}^2$ 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

(\bar{N}) из n измерений числа импульсов (N_i), обусловленную статистическим характером распада и(или) колебаний фона, рассчитывают на основании (1.24):

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

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

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

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

Если $\chi^2_{\text{эксп.}} > \chi^2_{0,05}$, 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 $Y = \phi(x_1, x_2, x_3, \dots, x_k)$ представляет собой функцию « k » переменных и известны выборочные дисперсии результатов непосредственных измерений $s_{x_1}^2, s_{x_2}^2, s_{x_3}^2, \dots, s_{x_k}^2$, то дисперсия Y равна:

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

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:

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

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:

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

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

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

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:

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

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

$$\frac{t_c}{t_\phi} = \sqrt{\frac{I_c}{I_\phi}} \quad (1.35)$$

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 $\delta_{\gamma(I_{np})}$.

$$t_{c,min} = u_\gamma^2 \frac{I_c + \sqrt{I_c I_\phi}}{\delta_{\gamma(I_{np})}^2 \cdot (I_c - I_\phi)^2} \quad \text{и} \quad t_{\phi,min} = u_\gamma^2 \frac{I_\phi + \sqrt{I_c I_\phi}}{\delta_{\gamma(I_{np})}^2 \cdot (I_c - I_\phi)^2} \quad (1.36)$$

Если предполагается провести n параллельных измерений одного препарата или фона, то время каждого из этих измерений, соответствующее заданному значению $\delta_{\gamma(I_{np})}$, 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 $\delta_{\gamma(I_{np})}$ 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 ^{90}Sr (^{90}Y) 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 ($\Delta_{0,95} = \pm 1,96\sigma_n \cong 2(I_{\phi,i}/t)^{1/2}$).

Среднее арифметическое значение скорости счета фона \bar{I}_ϕ сравнивают с паспортными данными. Если значение \bar{I}_ϕ выше 10 имп/мин, а рабочее напряжение установлено правильно и внутренние поверхности домика не содержат радиоактивных загрязнений, счетчик следует заменить.

Таблица 1.3.1

№	N_ϕ , имп	I_ϕ , имп/мин	$\Delta_{0,95}$	\bar{I}_ϕ , 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

№	Результаты измерений (N_i , имп)	Результаты расчетов
1		$\bar{N}; \sigma_{n(N)}^2; s_N^2; \chi_{экс}^2$
2		
...		
10		

* В этом случае $I_c \gg I_\phi$, а поправка на разрешающее время пренебрежимо мала.

Рассчитанное значение $\chi^2_{\text{эксп}}$ 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 $\chi^2_{\text{эксп}} \leq 16,9$. В противном случае расхождение между наблюдаемым распределением 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

№	A , Бк	N , имп	I , имп/с	$\bar{I}_{c,i}$, имп/с	$\bar{I}_{c,i} \pm \Delta_{\gamma,t}$
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 ($\tau \cdot I_{c,max} \leq 0,02$).

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 τ (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

$$I = \varphi A = [\eta (p \varepsilon k S q)] A \quad (2.1),$$

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 $(p \varepsilon k S q)$ вычисляют для каждой i -той компоненты излучения и результаты суммируют. В этом случае (2.1) приобретает вид:

$$I = A\eta \sum_i p_i \varepsilon_i k_i S_i q_i \quad (2.2)$$

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 ($\varepsilon = I_\varepsilon / I_d$). Следует отметить, что в общем случае из-за наличия разрешающего времени число зарегистрированных импульсов $I_c \leq I_\varepsilon$.

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, $\varepsilon=1$. 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 γ -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) счетчика толщиной d_2 , к

числу частиц I_{qs} , испускаемых в направлении детектора с поверхности препарата ($k = I_d / I_{qs}$).

Проникающая способность β -излучения характеризуется максимальным пробегом R_{max} – минимальной толщиной поглотителя, который задерживает все β -частицы с начальной энергией $E_{\beta,max}$ (табл. П.4). Следовательно, регистрация β -частиц счетчиками Гейгера-Мюллера возможна при условии $d_2 < R_{max}$. В частности, для измерения низкоэнергетического излучения ($E_{\beta,max} < 0,2$ МэВ) обычно используют детекторы с окном толщиной $3 \div 5$ мг/см².

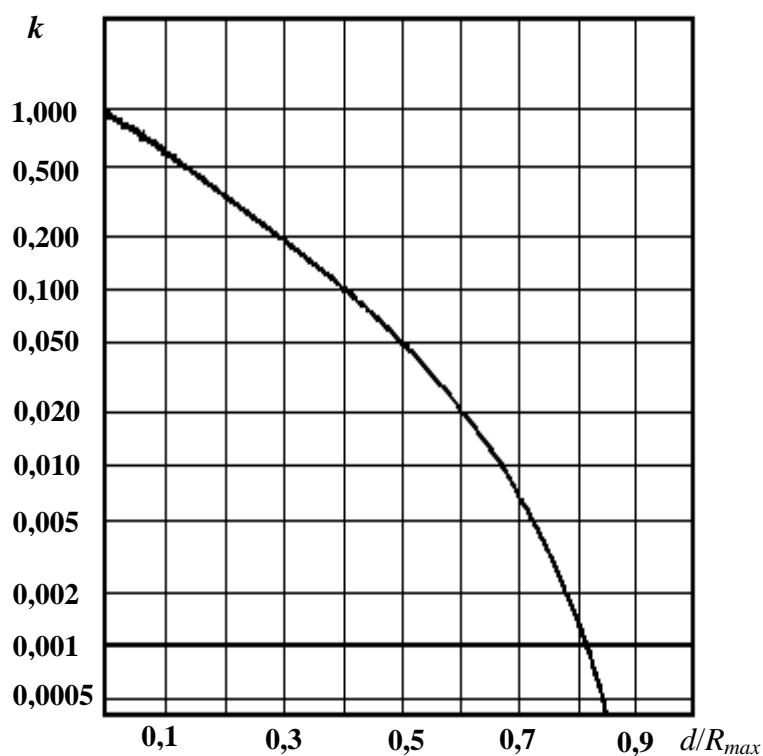


Рис. 2.1. Зависимость коэффициента ослабления k для β -частиц от отношения d/R_{max} .

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 $\sim 15\%$, коэффициент k можно определить по формуле:

$$k = \exp(-\mu d) \quad (2.3),$$

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 $E_\gamma > 0,1$ 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 помещают внутрь рабочего объема (рабочего вещества) детектора; в этом случае $k=1$.

Коэффициент самоослабления 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 самоослабление 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:

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

где толщина d_{np} выражена в линейных (см) или массовых единицах ($\text{г}/\text{см}^2$); коэффициент ослабления μ - в см^{-1} или $\text{см}^2/\text{г}$, соответственно.

При регистрации β -излучения стараются использовать очень тонкие препараты, для которых произведение $\mu d_{np} \leq 0,02$. В этом случае, согласно (2.4), коэффициент $1 \geq S \geq 0,99$ и поправка на самоослабление не вводится.

Поправка на самоослабление не вводится также при относительных измерениях «толстых» ($d_{np} \geq 0,75 \cdot R_{max}$) источников β -излучения (метод насыщенных слоев). В этом случае регистрируемая скорость счета I пропорциональна удельной активности A_{y0} образца, имеющего площадь s :

$$I = \frac{A_{y0} \cdot s}{\mu} (\varepsilon \cdot k \cdot q \cdot p \cdot \eta) \quad (2.5),$$

где ε , k , q , p и η - обсуждаемые в настоящем разделе поправочные коэффициенты; A_{y0} может быть выражена либо в $\text{имп}/\text{с} \cdot \text{г}$ (μ - в $\text{см}^2/\text{г}$), либо в $\text{имп}/\text{с} \cdot \text{см}^3$ (μ - в см^{-1}); размерность s - см^2 .

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 отражаться в направлении детектора.

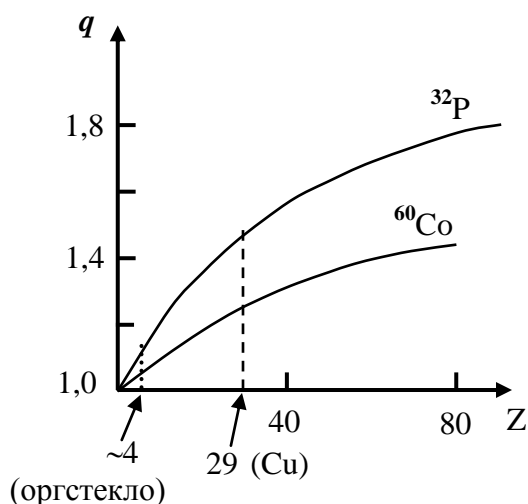


Рис. 2.2. Зависимость коэффициента q от материала подложки для β -излучения ^{60}Co и ^{32}P

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

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

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 η 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 (4π -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 ϕ .

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 ($I_{эм}$), 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 того же 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 ($\mu d_{np} \leq 0,02$), 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»:

$$A_x = \frac{I_x}{I_{эм}} A_{эм} \quad (2.6)$$

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 $^{90}\text{Sr}(^{90}\text{Y})$

В настоящей работе для определения абсолютной активности контрольного препарата $^{90}\text{Sr}(^{90}\text{Y})$, в котором изотопы находятся в состоянии векового равновесия, используют эталонный препарат ^{204}Tl . 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, соответствующем условию «бесконечно тонкий образец» ($S=1$). Площадь активного пятна в центре дисков равна 1 см². Для обоих источников эффективность регистрации β -излучения $\varepsilon=1$. Коэффициенты обратного рассеяния излучения ^{90}Sr , ^{204}Tl и ^{90}Y , в пределах погрешности измерений, можно считать одинаковыми ($1,2 \leq q \leq 1,3$).

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

$$A_x = \frac{I_x}{I_{эм}} \frac{\sum_j p_j \varepsilon_j k_j S_j q_j}{\sum_i p_i \varepsilon_i k_i S_i q_i} A_{эм} \quad \text{и} \quad A_x = A_{Sr(Y)} = \frac{I_{Sr(Y)}}{I_{Тл}} \cdot \frac{0,98 \cdot k_{Тл}}{(k_{Sr} + k_Y)} A_{Тл} \quad (2.7),$$

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 $I_{эм}$ - 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 ($\delta_{k(Тл)} = \delta_{k(Sr)} = \delta_{k(Y)} = 0,15$); 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 $^{90}\text{Sr}(^{90}\text{Y})$.

Оборудование и материалы

Установка с цилиндрическим счетчиком Гейгера-Мюллера.

Контрольный препарат $^{90}\text{Sr}(^{90}\text{Y})$.

Эталонный (стандартный) препарат ^{204}Tl 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 $I_{c,эм}$ и фона I_ϕ . Используя соотношения (1.32; 1.33), оценивают минимальную относительную погрешность ($\delta_{\gamma(Ic)}$) определения скорости счета $I_{c,x}$ и $I_{c,эм}$ 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 $\bar{I}_{Тл} = \bar{I}_{m,эм} - \bar{I}_\phi = \bar{I}_{c,эм} - \bar{I}_\phi$.
3. Рассчитывают погрешности ($\Delta_{\gamma,t}$) определения $\bar{I}_{Sr(Y)}$ и $\bar{I}_{Тл}$ 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 ^{90}Sr , ^{90}Y и ^{204}Tl (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 $\delta_{k(Тл)} = \delta_{k(Sr)} = \delta_{k(Y)} = 0,15$. Погрешность определения $A_{Тл}$ указана в паспорте эталонного препарата.

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

* Если предварительная оценка показывает, что $\delta_{\gamma(Ic)}$ 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: $\Gamma_0 \cdot \tau_{ex} = \hbar/2\pi$, где \hbar – 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 ^{137}Cs ($E_\gamma = 662$ кэВ) отношения E_R/E_γ и Γ_T/E_γ равны, соответственно, $2,6 \cdot 10^{-6}$ и $6,3 \cdot 10^{-7}$. Поэтому спектр испускаемых γ -квантов считается, применительно к гамма-спектроскопии, дискретным.

Энергию γ -квантов, преобразованную в электрические сигналы детектора, определяют по положению линий аппаратного 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, K - или L -оболочки атома облучаемого вещества. Кинетическая энергия выбитого электрона (фотоэлектрона) E_ϕ равна разности между энергией фотона и энергией связи в атоме, например, K -электрона: $E_\phi = E_\gamma - E_K$.

Вакансия, образовавшаяся на K -оболочке, заполняется электроном с одного из находящихся выше уровней, например, L_I . Выделяющаяся при этом энергия ($E_K - E_{L_I}$) может быть либо рассеяна в виде рентгеновского кванта ($E_X = E_K - E_{L_I}$), 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, см^2). Сечение фотопоглощения (τ) резко возрастает при уменьшении E_γ и увеличении атомного номера Z вещества поглотителя: для квантов относительно небольшой энергии ($E_\gamma < 511 \text{ кэВ}$) 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 M -оболочках.

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.

Комптовское 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 ($E_{\text{компт.}} = E_\gamma - E_\gamma'$), выбитых моноэнергетическими квантами (E_γ , кэВ), изменяется в широких пределах: $0 < E_{\text{компт.}} \leq E_\gamma \cdot [1 + (511/2E_\gamma)]^{-1}$. 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 γ -излучения.

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

$$N_l = N_0 \exp(-\mu' l) \quad (3.1),$$

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 γ -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'):

$$\mu' = (\tau + \sigma + \chi) \cdot 10^{-24} \cdot n_a = \tau' + \sigma' + \chi' \quad (3.2),$$

где τ , σ , χ – сечения основных процессов потерь энергии (в см^2), n_a – число атомов в 1 см^3 облучаемого материала.

Если толщина поглотителя, имеющего плотность ρ ($\text{г}/\text{см}^3$), выражена в $\text{г}/\text{см}^2$, то для оценки ослабления потока используют массовый коэффициент $\mu = \mu' / \rho$ ($\text{см}^2/\text{г}$).

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 ($l_{1/2} = \ln 2 / \mu'$). Следует отметить, что значение $l_{1/2}$ для потока квантов с энергией E_γ в сотни раз больше среднего ослабления потока электронов, имеющих кинетическую энергию $E_{кин.} = E_\gamma$.

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 ($E_{кин}$) и атомного номера поглотителя Z . В кристаллах сцинтилляционных ($Z_{эфф}=32$ для NaI) и полупроводниковых ($Z=32$ для Ge) детекторов эти потери составляют лишь 2-3% для высокоэнергетических электронов ($E_{кин} = 2000 \div 3000$ кэВ) и пренебрежимо малы в случае $E_{кин} < 1000$ 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 $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$.

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 $10 \div 100$ 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 диод. Поток электронов, проходя систему диодов, 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) $\sim 2 \cdot 10^{-7}$ с), 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 τ (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, K -электрона. Возбужденный атом переходит в основное состояние, испуская кванты характеристического рентгеновского излучения E_X или оже-электроны. Процесс перестройки электронной оболочки завершается 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 низкоэнергетических γ -квантов) – проникающей способностью характеристического излучения. Например, значения R_{max} для высокоэнергетических электронов ($500 \text{ кэВ} < E_{\phi} < 3000 \text{ кэВ}$) в кристаллах NaI и Ge составляют от $\sim 0,8$ до ~ 7 мм, а для электронов $E_{\phi}=100 \text{ кэВ}$ – $0,06$ мм. Пробег оже-электронов во много раз меньше. В то же время для поглощения 99% потока рентгеновских квантов ($E_X \leq 28 \text{ кэВ}$) необходим слой вещества $\sim 0,5$ 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 $E_X \approx 28 \text{ кэВ}$ и в аппаратурном спектре детектора с тонким кристаллом NaI(Tl) может наблюдаться «пик вылета», отвечающий энергии $E_{ПВ} \approx E_{\gamma} - 28 \text{ кэВ}$.

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 ($E_{компт.} = E_{\gamma} - E_{\gamma}'$). Такие события формируют непрерывную часть спектра (комптоновский континуум), лежащую левее пика полного поглощения энергии. Граница этого распределения соответствует максимальной энергии комптон-электронов: $E_{\gamma} \cdot [1 + (511/2E_{\gamma})]^{-1}$ (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 ($E_{\gamma} - 511 \text{ кэВ}$ или $E_{\gamma} - 1022 \text{ кэВ}$).

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, K -оболочки, который покидает атом (процесс внутренней конверсии). При последующей перестройке электронной системы испускаются рентгеновские кванты и электроны Оже. Подобный «внутренний фотоэф-

факт» 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 амплитудно-цифрового преобразователя (АЦП), связанного с персональным компьютером. Исследуемый диапазон амплитуд разбивается на n (например, 1024 или 4096) равных участков (каналов), каждому

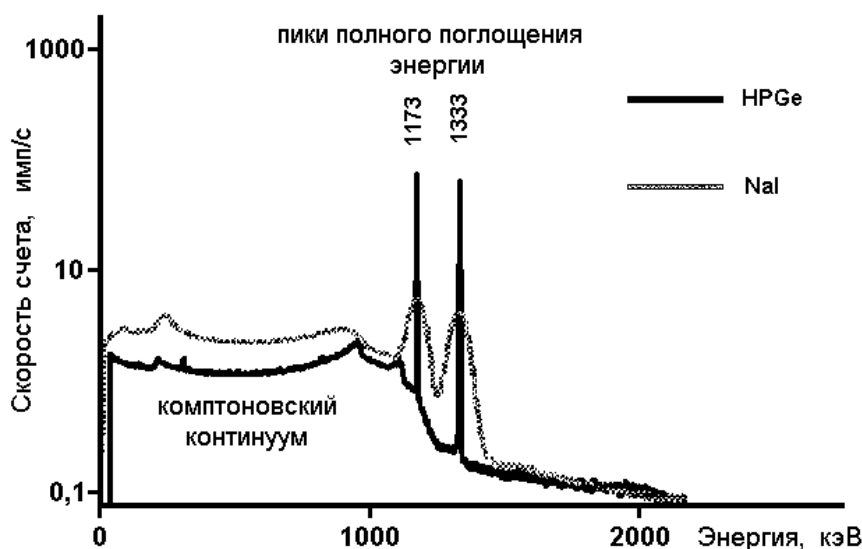


Рис. 3.1. Спектры ^{60}Co , полученные с помощью полупроводникового (HPGe) и сцинтилляционного (NaI) детекторов

из которых присваивается порядковый номер. Амплитуда сигналов, поступающих на вход АЦП, измеряется, и в каждый канал попадают соответствующие ему импульсы с амплитудой $v_1 \pm \Delta v_1, v_2 \pm \Delta v_2, \dots, v_n \pm \Delta v_n$, 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, накопленных в каждом канале за время измерения t , подсчитывается и в результате получается аппаратный 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 :

$$E_\gamma = a + b \cdot n \quad (3.3).$$

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 аппаратного 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) относительное среднеквадратичное отклонение $\delta = 1/(n_e)^{1/2}$ и лучше амплитудное разре-

шение. Статистические колебания амплитуд выходного импульса сцинтиляционного детектора обусловлены флуктуациями весьма небольшого числа электронов, выбитых с фотокатода и приходящих на первый диод ФЭУ, а полупроводникового – большого числа пар электрон-вакансия. Например, при поглощении в кристалле NaI энергии $E_\gamma=600$ кэВ на первый диод 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 ($W/E_\gamma=0,003\div 0,009$ в диапазоне $1000\div 100$ кэВ) по сравнению со сцинтиляционными ($0,06\div 0,1$).

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,

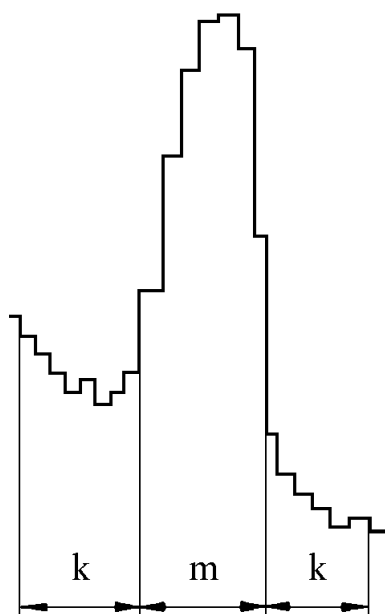


Рис. 3.2. Определение площади пика ППЭ [4]; пояснения в тексте

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 истинной площади пика ППЭ, рекомендованная, например,

в работе [5] (рис. 3.2). Пусть I_p - скорость счета в одном из m 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:

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

Длительность набора спектров определяется требуемой величиной дисперсии измеряемой площади пика ППЭ ($\sigma^2_{I_f} = I_f + I_b[(m/2k)+1]$). 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:

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

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

$$\varepsilon_{f,i} = (I_{f,i} / p_i \cdot A) = (\varphi_i \cdot \omega_i / p_i) = \eta \cdot [\varepsilon_i \cdot k_i \cdot S_i \cdot q_i] \cdot \omega_i \quad (3.6),$$

где η – геометрический коэффициент^(**), ε_i – эффективность детектора, k_i – коэффициент ослабления, S_i – коэффициент самоослабления, q_i – коэффициент обратного рассеяния^(***); остальные обозначения приведены в (3.5).

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 $A_{эм}$, измеряют в строго тождественных условиях, то искомая активность, согласно (2.6) и (3.5), будет равна:

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

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 ^{137}Cs ($E_\gamma=662$ кэВ) в NaI коэффициент $\mu' = 0,277$ см⁻¹ и с атомами кристалла толщиной $l=3$ см взаимодействует $\sim 56\%$ 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 γ -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 $\epsilon_{f,x}$ и, следовательно, искомую активность

$$A_x = I_{f,x} \cdot [p_x \cdot \epsilon_{f,x}]^{-1} \quad (3.8)$$

Измерения исследуемых и эталонных образцов проводят в одинаковых условиях, соблюдая постоянство геометрического коэффициента η и используя близкие по форме, составу и плотности препараты.

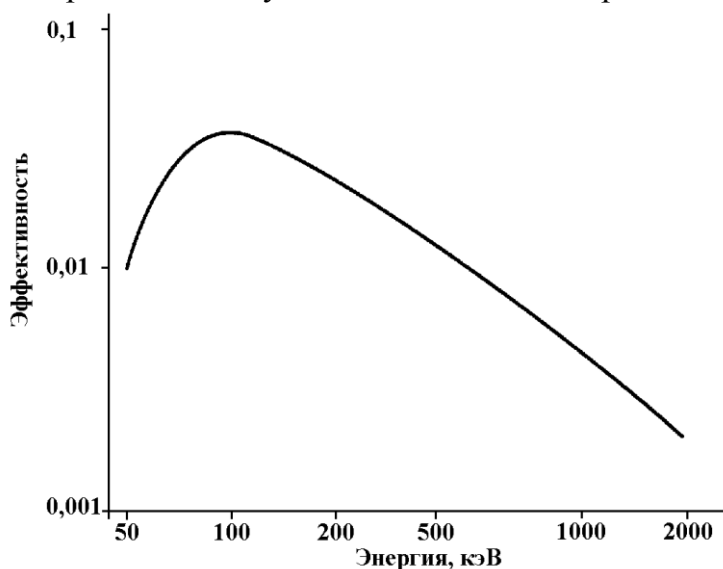


Рис. 3.3. Типичная зависимость эффективности регистрации γ -квантов (по пику ППЭ) от их энергии.

Например, калибровку по эффективности для точечных источников можно провести по спектрам образцовых стандартных гамма-спектрометрических 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 активности материнских.

Учет фона.

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 ^{40}K , 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:

$$A = \frac{I_f - I_{ff}}{p \cdot \epsilon_f} \quad (3.9),$$

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 .

Спектр 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 ($I_{f,i} = A \cdot p_i \cdot \epsilon_{f,i}$) 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 аппаратного γ -спектра (обычно линий, соответствующих $p_i \geq 5 \div 10\%$). 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 $^{232}\text{ThO}_2$, 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 $^{232}\text{ThO}_2$. Выделяют все пики ППЭ в спектре препарата и, используя данные табл. 3.1, идентифицируют их (см. раздел 3.1.5).

Таблица 3.1

Наиболее интенсивные рентгеновские и γ -линии радионуклидов ряда ^{232}Th

E_i , кэВ	p_i , %	нуклид	E_i , кэВ	p_i , %	нуклид	E_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

* – 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 $\epsilon_{f,i}=(I_{f,i}/p_i \cdot A)$, где A – известная абсолютная активность препарата $^{232}\text{ThO}_2$ (Бк), p_i – выход квантов на распад (табл. 3.1)

Таблица 3.2

Результаты обработки спектра $^{232}\text{ThO}_2$

№	канал, n	E_i , кэВ	нуклид	p_i , %	$I_{f,i}$, имп/с	$\epsilon_{f,i}$
1						
2						
...						

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:

$$\ln \varepsilon_f = a + b \ln E + c \ln E^2 + d \ln E^3 + \dots \quad (3.10)$$

3. Идентификация линий спектра препарата диоксида урана

Получают спектр препарата диоксида обедненного урана (продолжительность измерения 10÷15 минут). Выделяют максимумы, определяют площадь (за вычетом «педестала») 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

Наиболее интенсивные рентгеновские и γ -линии нуклидов ряда ^{238}U и ^{235}U

E_i , кэВ	p_i , %	нуклид	E_i , кэВ	p_i , %	нуклид	E_i , кэВ	p_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	$^{234\text{m}}\text{Pa}$	105	2,69	^{235}U	185,7	57,2	^{235}U

Таблица 3.4

Результаты обработки спектра диоксида обедненного урана

№	канал, n	E_i , кэВ	нуклид	$I_{f,i}$, 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 $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$

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

№	E_i , кэВ	Радионуклид	p_i , %	$\varepsilon_{f,i}$	$(I_{f,i} - I_{ff,i})$, имп/с	A_i , Бк
1						
2						
...						

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

РАБОТА 4. ДОЗИМЕТРИЯ ИОНИЗИРУЮЩЕГО ИЗЛУЧЕНИЯ

4.1. Радиационная безопасность и основные понятия дозиметрии

Характер взаимодействия ионизирующего излучения с веществом зависит от его 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 легких материалах (воздух, биологическая ткань и т.п.) - пренебрежимо малы (например, в воде - менее 0,5 %).

Механизмы передачи энергии рентгеновского или γ -излучения веществу достаточно подробно рассмотрены выше (см. раздел 3.1). Число атомов, ионизированных непосредственно в результате трех первичных процессов, относительно невелико. Ионизирующее действие фотонного излучения обусловлено, главным образом, неупругими взаимодействиями фото-, комптоновских и электронов (позитронов) пар с атомами облучаемого материала. Поэтому оно называется косвенно ионизирующим.

Биологическое действие излучения определяется передачей энергии частиц (фотонов) молекулам клеток ткани и крови, разрушением части ионизированных или возбужденных молекул и появлением химически активных радикалов. Процессы с участием последних приводят к функциональным изменениям в клетках и определяют, таким образом, неблагоприятные биологические последствия облучения.

Любой человек постоянно подвергается воздействию космического излучения, излучения естественных радиоактивных изотопов, находящихся в тканях организма и в окружающей среде. Поглощенная при этом энергия (доза) мала и составляет фоновый уровень, к которому организм адаптировался за время эволюции. Поэтому любая работа с источниками ионизирующих излучений, в том числе с радионуклидами, должна быть организована так, чтобы снизить облучение до возможно низкого уровня, желательного близкого к фоновому. В общем случае допустимый (безопасный) уровень воздействия на человека ионизирующего излучения, искусственного или природного происхождения, жестко устанавливается «Нормами радиационной безопасности». В настоящее время действует документ, утвержденный в 2009 г. - НРБ-99/2009 [6].

Основным понятием радиационной безопасности является "доза излучения" (доза). **Поглощенная доза (D_n)** – отношение энергии dE ионизирующего излучения, переданной веществу в элементарном объеме, к массе dm вещества в этом объеме.

$$D_n = \frac{dE}{dm} \quad (4.1)$$

Поглощенная доза измеряется в джоулях, деленных на 1 кг; единица системы СИ - **грей (Гр)**. внесистемная единица - **рад** (от англ. *radiation absorbed dose*). Соотношение между единицами: 1 рад = 100 эрг/г = 0,01 Дж/кг = 0,01 Гр.

Понятие «поглощенная доза» применимо к любым видам излучения и к любым облучаемым материалам. Для оценки воздействия на среду косвенно ионизирующих излучений используется также понятие **керма** (от англ. *kinetic energy released in material*). Керма (K) – отношение суммы первоначальных кинетических энергий dE_k всех заряженных ионизирующих частиц, образующихся под действием косвенно ионизирующего излучения в элементарном объеме, к массе вещества dm в этом объеме.

$$K = \frac{dE_k}{dm} \quad (4.2)$$

Единица кермы – грей - совпадает с единицей поглощенной дозы.

В случае фотонного излучения керма определяется кинетической энергией вторичных электронов и позитронов, в том числе той ее частью g , которая преобразуется в тормозное излучение. В общем случае значение кермы в условиях электронного равновесия^(*) совпадает с поглощенной дозой с погрешностью, определяемой значением g . Для фотонного излучения с энергией $E \leq 3$ МэВ (т.е. для γ -излучения практически всех радионуклидов) и сред с небольшой электронной плотностью доля энергии g весьма незначительна (~1% для воздуха, ~2% для биологической ткани). В качестве вещества, в котором определяется керма фотонного излучения, часто используется воздух. Значения поглощенной дозы и кермы в воздухе практически совпадают.

Для оценки действия рентгеновского и γ -излучения одним из первых было введено понятие **экспозиционной дозы** (D_x) – энергии излучения, преобразованной в кинетическую энергию заряженных частиц в единице массы сухого воздуха. Единица экспозиционной дозы в системе СИ – кулон на килограмм (Кл/кг). На практике использовали внесистемную единицу D_x – рентген^(**). Рентген (Р)- доза излучения, при которой в 0,001293 г воздуха (масса 1 см³ воздуха при 0°C и давлении 101,3 кПа) образуются ионы, несущие $3,336 \cdot 10^{10}$ Кл заряда каждого знака. $1 \text{ Р} = 2,58 \cdot 10^{-4}$ Кл/кг.

Заряд электрона равен $1,602 \cdot 10^{-19}$ Кл. Следовательно, при дозе в 1Р в 1 см³ воздуха образуется $2,08 \cdot 10^9$ пар ионов. Принимая среднюю энергию образования пары ионов в воздухе равной 33,85 эВ ($1 \text{ эВ} = 1,602 \cdot 10^{-19}$ Дж = $1,602 \cdot 10^{-12}$ эрг), можно определить энергетические эквиваленты рентгена (для воздуха): $1 \text{ Р} = 0,113 \text{ эрг/см}^3 = 8,73 \cdot 10^{-6}$ Дж/г = $87,3 \text{ эрг/г} = 0,873 \text{ рад} = 0,00873 \text{ Гр}$. Для биологической ткани выполняется соотношение: $1 \text{ Р} \approx 0,95 \text{ рад} = 0,0095 \text{ Гр}$.

Последствия воздействия разных видов излучения на человека могут различаться даже при одной и той же поглощенной дозе. Например, α -излучение гораздо опаснее β - или фотонного излучения. Для сопоставления биологического действия излучений различного состава введено понятие **эквивалентная доза** (H_R)

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

(**) Экспозиционная доза, учитывающее ионизирующее действие фотонного излучения в воздухе, служит условной мерой эффекта облучения других веществ (биологической ткани): связь между D_n и D_x можно установить лишь приближенно. Поэтому эта физическая величина в официальных документах, регламентирующих правила работы с источниками радиации, с 1990 г. не упоминается. Вместе с тем, ионизацию воздуха легко измерить и по результатам таких измерений можно судить об энергии, поглощенной биологической тканью. Выпускаемые ранее приборы, откалиброванные в единицах мощности экспозиционной дозы, до сих пор используются для дозиметрического контроля.

$$H_R = D_{II,R} \cdot W_R \quad (4.3),$$

где взвешивающий коэффициент W_R (ранее использовавшееся название «коэффициент качества излучения») зависит от плотности ионизации среды излучением “ R ” и отражает степень его «биологической вредности».

В системе СИ единицей H_R является **зиверт** (Зв); $1 \text{ Зв} = (1 \text{ Гр}) \cdot W_R$. Для фотонов, электронов и β -частиц $W_R = 1 \text{ Зв/Гр}$; для нейтронов (в зависимости от энергии) W_R от 5 до 20 Зв/Гр; для α -частиц $W_R = 20 \text{ Зв/Гр}$. Внесистемной единицей является бэр (биологический эквивалент рада), $1 \text{ Зв} = 100 \text{ бэр}$.

При воздействии излучения сложного состава значение эквивалентной дозы равно сумме H_R для всех видов излучений.

$$H = \sum_R H_R = \sum_R D_{II,R} \cdot W_R \quad (4.4)$$

Поток излучения со временем может изменяться. Поэтому действие излучения на вещество оценивается также величиной **мощности дозы** (P) – доза излучения за единицу времени (с, мин, ч и т.п.).

Пределы доз; допустимый уровень загрязнения поверхностей

В НРБ-99/2009 [6] выделяются три категории облучаемых лиц. Персонал группы А работает с источниками излучения непосредственно. Персонал группы Б в рабочее время может находиться в сфере воздействия источников излучения. Остальные люди относятся к категории «население».

Для персонала группы А установлены следующие **пределы доз (ПД)**: 20 мЗв в год, но не более 100 мЗв за любые последовательные 5 лет; при 1700 рабочих часах в году допустимо 12 мкЗв в час; при шестичасовом рабочем дне – 72 мкЗв в день. Для кистей рук предел дозы увеличен до 300 мкЗв.

Для персонала группы Б, в том числе для учащихся старше 16 лет, ПД меньше в 4 раза. Для населения пределы доз меньше в 10 раз. Для сравнения, естественное (фоновое) облучение человека составляет в среднем 2,4 мЗв в год.

При работе с радиоактивными веществами в открытом виде нельзя исключать возможность загрязнения незащищенных 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 дозу в слое полного поглощения. Бета-излучение имеет непрерывный спектр и при расчете используют значение средней энергии \bar{E} (обычно принимают $\bar{E} = 0,4 E_{\beta,max}$; более точные значения \bar{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 см^2) падает поток β -частиц, имеющих максимальную энергию $E_{\beta,max}$ (в МэВ) и максимальный пробег R_{max} (в г/см^2), 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 $P_{П,\beta}$ равна:

$$P_{n,\beta} = \frac{F_{\beta} \cdot \bar{E} \cdot s}{s \cdot R_{max}} = \frac{F_{\beta} \cdot 0,4E_{\beta,max}}{R_{max}} \left(\frac{МэВ}{г \cdot с} \right) \text{ или } P_{n,\beta} = 1,602 \cdot 10^{-10} \cdot \frac{F_{\beta} \cdot 0,4E_{\beta,max}}{R_{max}} \left(\frac{Гр}{с} \right) \quad (4.5)$$

Плотность потока F_{β} , создающего дозу мощностью в 1 Гр/с, согласно (4.5), равна:

$$F_{\beta} = 6,25 \cdot 10^9 \frac{R_{max}}{0,4E_{\beta,max}} \quad (4.6)$$

Выражение (4.6) 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). $P_{n,\beta} = I / S_{\delta} \cdot \phi \cdot F_{\beta}$, где ϕ -коэффициент регистрации, S_{δ} - 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:

$$D_{n,\beta} = 1,602 \cdot 10^{-10} \cdot \frac{At}{4\pi r^2} \sum_i \frac{p_i (0,4E_{\beta,max,i}) e^{-\mu_i \rho r}}{R_{max,i}} \quad (Гр) \quad (4.7),$$

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 $D_{n,\beta}$ в других материалах, в частности, в воздухе и в биологической ткани.

Доза от внешнего источника γ -излучения

При прохождении фотонного, например, γ -излучения, через вещество одна часть его энергия расходуется на ионизацию атомов среды, другая преобразуется в энергию вторичных (преимущественно комптоновских) фотонов и не участвует в создании дозы. Поэтому полный коэффициент ослабления γ -излучения μ можно представить как сумму коэффициента истинного поглощения (или электронного преобразования) μ_e и коэффициента μ_k , 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 воздуха 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: $\Delta E_{\gamma} = E_{\gamma} F_{\gamma} s t \cdot [1 - \exp(-\mu_e \Delta l \rho)]$.

При $\mu_e \Delta l \rho < 0,1$ справедливо $\Delta E_{\gamma} = E_{\gamma} F_{\gamma} s t \cdot \mu_e \Delta l \rho$ (4.8)

Как отмечалось, значения кермы (K) и поглощенной дозы ($D_{n,\gamma}$) в воздухе для γ -излучения радионуклидов практически (с погрешностью в 1%) совпадают. Исходя из (4.8) получим:

$$K = D_{n,\gamma} = \frac{\Delta E_{\gamma}}{\Delta m} = E_{\gamma} F_{\gamma} \mu_e t \quad (МэВ/г) \quad \text{или} \quad K = D_{n,\gamma} = 1,602 \cdot 10^{-10} E_{\gamma} F_{\gamma} \mu_e t \quad (Гр) \quad (4.9),$$

где μ_e - массовый коэффициент истинного поглощения (см²/г), (табл. П.6)

Экспозиционная доза в воздухе, учитывая энергетический эквивалент рентгена ($1\text{Р} = 0,00873 \text{ Гр}$), равна: $D_9 = 1,835 \cdot 10^{-8} \cdot E_\gamma F_\gamma \mu_e t$ (Р). Значение поглощенной дозы в биологической ткани (в радах) будет близким к этому значению (примерно $0,95 D_9$).

Выражение (4.9) позволяет оценить мощность дозы $P_{n,\gamma}$ (или мощность кермы в воздухе) по скорости счета I (имп/с), если для используемого детектора площадью S_δ (см^2) известна эффективность ε регистрации фотонов данной энергии E_γ .

$$P_{n,\gamma} = \frac{I}{S_\delta \cdot \varepsilon} \cdot \frac{1}{F_\gamma} = \frac{I}{S_\delta \cdot \varepsilon} \cdot \frac{E_\gamma \mu_e}{6,25 \cdot 10^9} \text{ (Гр/с)} \quad (4.10),$$

где F_γ - плотность потока фотонов, создающего в воздухе дозу (керму) мощностью 1 Гр/с.

Керма в воздухе K (как и **поглощенная доза $D_{n,\gamma}$**), создаваемая точечным источником моноэнергетического излучения на расстоянии r (в м) за время t (в с), равна:

$$K = D_{n,\gamma} = 1,602 \cdot 10^{-13} \cdot \frac{A \cdot p E_\gamma \mu_e}{4\pi r^2} \cdot t = \frac{A \cdot \Gamma_\epsilon \cdot t}{r^2} \text{ (аГр)} \quad (4.11),$$

где $1,602 \cdot 10^{-13}$ – коэффициент пересчета МэВ в Дж (Дж/МэВ), A - активность (Бк), E_γ - энергия фотонов (МэВ), p - выход фотонов с энергией E_γ на распад, μ_e - коэффициент истинного поглощения ($\text{м}^2/\text{кг}$), Γ_ϵ - керма-постоянная радионуклида в [$\text{аГр} \cdot \text{м}^2/(\text{с} \cdot \text{Бк})$].

Параметр Γ_ϵ (табл. П.7) характеризует мощность воздушной кермы γ -излучения точечного источника активностью $A = 1\text{Бк}$ на расстоянии до точки детектирования $r = 1\text{м}$. Его обычно используемая размерность - [$\text{аГр} \cdot \text{м}^2/(\text{с} \cdot \text{Бк})$], где аГр (аттогрей) равен 10^{-18} Гр .

Полная керма-постоянная (Γ_ϵ) для радионуклида, испускающего фотоны различных энергий $E_{\gamma,i}$ (МэВ) с выходом на распад p_i и коэффициентом истинного поглощения $\mu_{e,i}$ ($\text{м}^2/\text{кг}$), равна сумме парциальных ($\Gamma_{\epsilon,i}$)

$$\Gamma_\epsilon = \sum_i \frac{p_i E_{\gamma,i} \mu_{e,i} \cdot 1,602 \cdot 10^{-13} \cdot 10^{18}}{4\pi} = \sum_i p_i \Gamma_{\epsilon,i}^* = \sum_i \Gamma_{\epsilon,i} \left(\frac{\text{аГр} \cdot \text{м}^2}{\text{Бк} \cdot \text{с}} \right) \quad (4.12),$$

где $\Gamma_{\epsilon,i}^*$ - нормализованная (т.е. рассчитанная для $p_i = 1$) парциальная керма-постоянная.

Используя (4.12) и данные, приведенные в табл. П.1, П.6 (или П.8), можно рассчитать, обращая при этом внимание на размерность вводимых величин, значение Γ_ϵ для любых источников с известным фотонным спектром, в т.ч. непрерывным. Для радионуклидов эти значения известны, часть из них приведена в табл. П.7. Определив Γ_ϵ , вычисляют, согласно (4.11), значения K (или $D_{n,\gamma}$) в точке детектирования.

Значения эквивалентной дозы в биологической ткани и поглощенной дозы в воздухе для фотонов с энергией $0,04 \div 15 \text{ МэВ}$ связаны соотношением $H = 1,09 \cdot D_{n,\gamma} \cdot W$. Поэтому практически для всех γ -излучающих нуклидов можно записать:

$$H = 1,09 \cdot D_{n,\gamma} \cdot W = 1,09 \cdot K \cdot W = 1,09 \frac{A \cdot \Gamma_\epsilon \cdot t}{r^2} \cdot W \quad (4.13),$$

где размерность H - аЗв, $D_{n,\gamma}$ и K - аГр, $W=1\text{аЗв/аГр}$; остальные указаны в (4.11).

При расчете **мощности экспозиционной дозы P** , точечного источника используется значение гамма-постоянной радионуклида (Γ_9). Она равна мощности дозы в Р/ч, создаваемой γ -излучением данного радионуклидного источника активностью в 1 мКи на расстоянии 1 см от источника. Ее размерность $\text{Р} \cdot \text{см}^2/\text{ч} \cdot \text{мКи}$. Значения Γ_9 для некоторых нуклидов приведены в табл. П.7. При необходимости гамма-постоянную источника со сложным γ -спектром можно определить, воспользовавшись данными табл. П.6 и П.8.

$$\Gamma_{\gamma} = 194,5 \sum_i p_i E_{\gamma,i} \mu_{e,i} = \sum_i p_i \Gamma_{\gamma,i}^* = \sum_i \Gamma_{\gamma,i} \left(\frac{P \cdot \text{см}^2}{\text{ч} \cdot \text{мКи}} \right) \quad (4.14),$$

где для фотона с энергией $E_{\gamma,i}$ (МэВ) и выходом на распад p_i значения $\mu_{e,i}$ заданы в $\text{см}^2/\text{г}$; $\Gamma_{\gamma,i}^*$ - нормализованная (т.е. рассчитанная для $p_i=1$) парциальная гамма-постоянная.

Доза, создаваемая источником активностью A на расстоянии r за время t :

$$D_{\gamma} = P_{\gamma} \cdot t = \frac{A \cdot \Gamma_{\gamma}}{r^2} \cdot t \quad (P) \quad \text{и} \quad H \cong 0,95 D_{\gamma} \cdot W \quad (\text{бэр}) \quad (4.15)$$

Следует отметить, что экспозиционную дозу в воздухе, измеренную с помощью дозиметра в рентгенах, считают, как правило, равной эквивалентной дозе (H , бэр).

Защита от излучения

Проникающая способность **α -излучения** весьма незначительна: пробег α -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, α -активные нуклиды, попавшие внутрь организма, представляют серьезную опасность, т.к. удельная ионизация биологической ткани α -частицами очень высока (на 1 мкм пробега несколько тысяч молекул). Взвешивающий коэффициент $W_{\alpha} = 20$ (см. уравнение(4.3)). Поэтому работа с α -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 дневную предельно допустимую дозу $H_{nd} = D_{nd} \cdot W_R = 72 \text{ мкЗв} = 7,2 \text{ мбэр}$ ($W_R = 1 \text{ мкЗв/мкГр} = 1 \text{ мбэр/мрад}$). Используя (4.7) и (4.13, 4.15), определяют минимально допустимое расстояние от источника r или, при заданных параметрах A и r , время t_{nd} , в течение которого можно находиться вблизи источника ионизирующего излучения. Например, для γ -источника

$$t_{nd} = \frac{H_{nd}}{W} \frac{r^2}{1,09 \cdot A \cdot \Gamma_{\gamma}} \quad (\text{с}) \quad \text{или} \quad t_{nd} = \frac{H_{nd}}{W} \frac{r^2}{0,95 \cdot A \cdot \Gamma_{\gamma}} \quad (\text{ч}) \quad (4.16)$$

Получаемые при работе с радионуклидами дозы, как это следует из (4.7) и (4.13), 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 $d \geq R_{max}$ (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:

$$D_{\text{узк}} = D_0 \exp(-\mu d) \quad (4.17),$$

где $D_{\text{узк}}$ - 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 (4.17) 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 γ -источника (узкий пучок) входит также γ -излучение, рассеянное материалом защиты и увеличивающее мощность дозы. В случае моноэнергетического излучения доза (в аГр) на внутренней поверхности экрана равна

$$D_{\text{шир}} = D_{\text{узк}} + D_{\text{расс}} = D_0 e^{-\mu d} + D_{\text{расс}} = D_0 e^{-\mu d} \cdot B_D = \frac{A \Gamma_{\epsilon} t}{r^2} e^{-\mu d} \cdot B_D \quad (4.18),$$

где A – активность источника (Бк), Γ_{ϵ} - керма-постоянная (табл. П.7), 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 (4.17).

Для источника, спектр которого состоит из нескольких линий:

$$D_{\text{шир}} = \frac{A \cdot t}{r^2} \sum_i p_i \Gamma_{\epsilon,i}^* e^{-\mu_i d} \cdot B_{D,i} = \sum_i D_{0,i} e^{-\mu_i d} \cdot B_{D,i} \quad (4.19),$$

где для компоненты спектра с энергией $E_{\gamma,i}$: p_i -выход на распад, $\Gamma_{\epsilon,i}^*$ – нормализованная частичная керма-постоянная (табл. П.8), μ_i - коэффициент ослабления (табл. П.5), $D_{0,i}$ – доза, создаваемая при $d=0$, $B_{D,i}$ – фактор накопления (табл. П.9).

Изменив размерности A , Γ_{ϵ} , t и r , можно получить аналогичные (4.18, 4.19) выражения для экспозиционной дозы.

Уравнения (4.18, 4.19) 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.

Проектирование защиты проводят с коэффициентом запаса по мощности эквивалентной дозы, равным 2. Это создает резерв, компенсирующий возможные погрешности в исходных данных, возможность облучения от неучтенных источников и т.п. Таким образом, мощность дозы на поверхности защиты не должна превышать значения 6 мкЗв/ч (36 мкЗв за день). На практике для расчета защиты обычно используют таблицу Н.Г. Гусева (табл. П. 11), составленную численным моделированием для широкого пучка фотонного излучения с учетом дозового фактора накопления. Для источника моноэнергетического излучения E_{γ} , используя (4.13) или (4.15), вычисляют дозу (D_0 и H_0) в отсутствие защиты и определяют кратность ее ослабления до предельно

допустимого уровня: $k = 2(H_0/H_{n0})$, где $H_{n0} = 72$ мкЗв/день = 12 мкЗв/ч. В табл. П.11 находят толщину защиты, соответствующую значениям k и E_γ .

В тех случаях, когда источник имеет сложный спектр излучения, защиту рассчитывают методом «конкурирующих линий». Прежде всего, оценив значения $p_i \Gamma_{e,i}^*$ (см. 4.11, 4.12), 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.

$$k_i = 2 \frac{H_{0,i}}{H_{n0}} = 2 \frac{H_0}{H_{n0}} \frac{\Gamma_{e,i}}{\Gamma_e} = k \frac{\Gamma_{e,i}}{\Gamma_e} \quad (4.20),$$

где $H_{0,i}$ – доза, создаваемая фотонами $E_{\gamma,i}$ при $d = 0$; $\Gamma_{e,i}$ и Γ_e – парциальная 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_2) и конкурирующую линию (следующая за наибольшей толщина защиты d_k). Кратности ослабления этих линий (k_2 и k_k) удваивают, по таблице находят новые значения d_2' и d_k' (для $2k_2$ и $2k_k$, соответственно). По разности ($d_2' - d_2 = \Delta_{2,2}$) и ($d_k' - d_k = \Delta_{2,k}$) определяют слои полуослабления для главной и конкурирующей линий и выбирают наибольшее из двух значений $\Delta_{1/2}$. Окончательно толщину защиты d находят из соотношений:

$$\begin{aligned} d &= d_2 + \Delta_{1/2}, & \text{если} & \quad (d_2 - d_k) = 0 \\ d &= d_k + \Delta_{1/2}, & \text{если} & \quad 0 < (d_2 - d_k) < \Delta_{1/2} \\ d &= d_2, & \text{если} & \quad (d_2 - d_k) > \Delta_{1/2} \end{aligned}$$

4.2. Измерение мощности дозы гамма-излучения и расчет защиты

Цель работы

- измерение мощности дозы, создаваемой источником γ -излучения на различных расстояниях;
- расчет допустимого времени работы с источником без защитного экрана;
- определение активности источника;
- расчет толщины защитного экрана.

Оборудование и препараты

Контейнер с источником γ -излучения (^{137}Cs); дозиметр ДРГ-05; рулетка;

Выполнение работы

1. Знакомятся с инструкцией по работе с дозиметром ДРГ-05 и готовят его к измерениям.

2. Измеряют мощность экспозиционной дозы P_9 (мкР/с) источника ^{137}Cs , установленного на рабочем столе сотрудниками практикума, на расстоянии r от 5 до 1 м (с шагом 50 см). Натянутая лента рулетки является направляющей, вдоль которой перемещают датчик дозиметра. В каждой точке проводят три последовательных измерения (с интервалом в 5÷10 с), в табл. 4.2.1 вносят среднее арифметическое значение P_9 . Отмечают **общее** время ($t_{обл}$ – время облучения) выполнения этой части работы.

Учитывая энергетический эквивалент рентгена, пересчитывают значения P_9 (мкР/с) в значения мощности воздушной кермы P_K (аГр/с).

3. Строят график зависимости P_K от $1/r^2$ и, в соответствии с уравнением (4.11), рассчитывают активность источника A в Бк.

Таблица 4.2.1

n/n	r , м	$P_э$, мкР/с	P_K , аГр/с	$1/r^2$, м ⁻²	$t_{нд}$, с
1	5,0				
2	4,5				
...	...				
9	1,0				

4. По результатам измерения $P_э$ (P_K) на расстоянии 1, 2 и 5 м определяют, согласно (4.13, 4.16), допустимое время работы с источником $t_{нд}$. Для студентов (персонал группы Б) допустимая дневная доза составляет 18 мкЗв.

Оценивают дозу, полученную при проведении измерений, считая, что в каждой из 9 точек учащийся находился в течение $\frac{1}{9}t_{обл}$.

5. Предполагая, что работа с источником будет проводиться ежедневно в течение 1 ч на расстоянии 1 м, определяют толщину свинцового экрана, уменьшающего облучение до предельно допустимого уровня (табл. П.11).

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 дозу внешнего облучения (см. уравнения (4.5, 4.6)).

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

$$F_{загр} = \frac{(I_{с,загр} - I_{\phi})}{S_{\delta}} K_{сч} = \frac{(I_{с,загр} - I_{\phi})}{S_{\delta}} \frac{1}{\phi} \quad (5.1),$$

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

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

$$K_{сч} = \frac{F_{эм(2\pi)}}{(I_{с,эм} - I_{\phi})} \quad (\text{при } S_{\delta} \geq S_{эм}) \quad (5.2)$$

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

Таблица 5.1

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

Объект загрязнения	Альфа-активные нуклиды*		Бета-активные нуклиды
	отдельные**	прочие	
Неповрежденная кожа, полотенца, внутренняя поверхность лицевых частей средств индивидуальной защиты и перчаток	2	2	200***
Основная спецодежда, внутренняя поверхность дополнительных средств индивидуальной защиты, спецобувь	5	20	2000
Поверхности помещений постоянного пребывания персонала и находящегося в них оборудования	5	20	2000
Поверхности помещений периодического пребывания персонала и находящегося 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 ДООА < 0,3 Бк/м³ (²³²Th, ²⁴¹Am и др.);

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

* 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 $F_{загр}$ или $\Delta F_{загр}$.

Нефиксированная загрязненность ($\Delta F_{загр}$) 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 ($S_{маз}$) поверхности помещений или оборудования. На откалиброванном радиометре измеряют скорость счета пробы-«мазка» ($I_{с,маз}$) и рассчитывают нефиксированную загрязненность:

$$\Delta F_{загр} = F_{маз} = \frac{(I_{с,маз} - I_{\phi})}{S_{маз}} K_{сч} \quad (5.3)$$

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: ^{14}C , ^{60}Co , ^{204}Tl , равновесная смесь ^{90}Sr (^{90}Y). Энергия излучения и период полураспада этих радионуклидов приведены в табл. П.1. «Эффективная» энергия β – частиц источника ^{90}Sr (^{90}Y), значение которой обычно используют при построении калибровочного графика в координатах $K_{сч} - E_{\beta,макс}$, равна 1,6 МэВ.

Три эталонных препарата являются «чистыми» β -излучателями, в то время как распад ядра ^{60}Co сопровождается испусканием двух жестких γ -квантов. В этом случае при калибровке радиометра проводят два измерения: сначала - общей скорости счета эталонного препарата ($I_{с,эм1} = I_{\beta} + I_{\gamma} + I_{\phi}$), затем - скорости счета, обусловленной γ -излучением ($I_{с,эм2} = I_{\gamma} + I_{\phi}$). 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 $I_{с,эм1}$ и $I_{с,эм2}$ соответствует скорости счета β -излучения кобальта-60.

Для каждого эталона проводят по 3 измерения скорости счета $I_{с,эм}$ (для ^{60}Co по 3 измерения $I_{с,эм1}$ и $I_{с,эм2}$) продолжительностью по 1 мин, находят среднее значение ($\bar{I}_{с,эм} - \bar{I}_{\phi}$) и, согласно (1.19; 1.26; 1.33), - погрешность среднего для 95%-ной доверительной вероятности. По формуле (5.2) определяют коэффициент счета $K_{сч,i}$ для каждого эталона. Относительную погрешность определения $K_{сч,i}$ оценивают, используя закон накопления (1.30), рассчитанную погрешность средней скорости счета и погрешность определения $F_{эм,(2\pi)}$, указанную в паспорте:

$$\delta_{K_{сч,i}}^2 = \delta_{(\bar{I}_{с,эм} - \bar{I}_{\phi})}^2 + \delta_{F_{эм,(2\pi)}}^2 \quad \text{и} \quad \Delta_{K_{сч,i}} = (\delta_{K_{сч,i}}) \cdot K_{сч,i} \quad (5.4)$$

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

Таблица 5.2

№	Нуклид, период полураспада	$F_{эм(2\pi)}$, част/мин		$E_{\beta,max}$, МэВ	$(\bar{I}_{с,эм} - \bar{I}_{\phi})$, имп/мин	$K_{сч,i}$, част/имп	$K_{сч,i} \pm \Delta_{K_{сч,i}}$
		по паспорту	на дату измерения				

4. Определяют нефиксированную загрязненность рабочей поверхности. Для этого, по согласованию с преподавателем, выбирают 2 участка (по $100 \div 200 \text{ см}^2$ каждый) загрязненной поверхности и определяют их площадь. Узнают, с каким радионуклидом проводились работы на данном рабочем месте, и, используя построенный график $K_{сч,i} - E_{\beta,max}$, 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 ($\Delta F_{загр}$; уравнение 5.3). Сопоставляют полученные результаты с данными табл. 5.1 и определяют отношение величины $\Delta F_{загр}$ к допустимому уровню загрязненности $F_{дз}$.

Таблица 5.3

№ рабочего места на плане	$(I_{с,маз} - I_{\phi})$, имп/мин	$K_{сч}$, част/имп	$\Delta F_{загр}$, част/см ² ·мин	$\Delta F_{загр} / F_{дз}^*$

*- допустимая загрязненность

РАБОТА 6. ИЗОТОПНЫЕ ГЕНЕРАТОРЫ

6.1. ГЕНЕРАТОР ИНДИЯ-113m

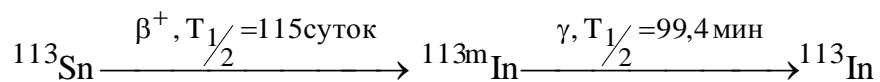
В последнее время значительно возрос интерес к короткоживущим радионуклидам, используемым в ядерной медицине в диагностических и терапевтических целях. Это объясняется тем, что такие радионуклиды могут эффективно использоваться в препаратах с высокой удельной активностью при малых дозовых нагрузках на 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 изотопы 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 позволяют получать качественный элюат непосредственно в медицинских клиниках вдали от ядерного реактора и циклотронных установок, так как выделение короткоживущих нуклидов является задачей несложной и безопасной для персонала, а генераторы легко транспортабельны.

Медицинский генератор ^{113m}In предназначен для получения растворов хлоридных комплексов состава $[\text{}^{113m}\text{In}(\text{H}_2\text{O})_{6-n}\text{Cl}_n]^{(3-n)+}$ ($n = 0, 1, 2, 3$) 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 ядерно-физическими свойствами (период полураспада $T_{1/2}(\text{In})=99,4$ мин., $E_\gamma=392$ кэВ). Кроме того, материнский изотоп имеет период полураспада $T_{1/2}(\text{Sn}) = 115$ суток, благодаря чему генератор можно использовать в течение длительного времени.

Действие генератора основано на цепочке радиоактивных превращений:



Материнский изотоп ^{113}Sn претерпевает β -превращения (позитронный распад и K -захват), в результате которых получается дочерний метастабильный ^{113m}In , превращающийся при изомерном переходе в стабильный изотоп ^{113}In . Изомерный переход сопровождается испусканием γ -квантов ($E_\gamma=392$ кэВ), электронов конверсии с энергией $E \approx 365$ кэВ и рентгеновского излучения ($E_X \approx 24$ кэВ).

Накопление индия-113m в предварительно очищенном материнском изотопе описывается уравнением:

$$A_{\text{In},t} = A_{\text{Sn},0} (e^{-\lambda_{\text{Sn}} \cdot t} - e^{-\lambda_{\text{In}} \cdot t}) = A_{\text{Sn},0} (e^{-2,51 \cdot 10^{-4} \cdot t} - e^{-0,4184 \cdot t}) \quad (6.1),$$

где $A_{\text{Sn},0}$ – активность ^{113}Sn в момент $t=0$; $A_{\text{In},t}$ – активность ^{113m}In ; λ – постоянная распада ($\lambda = (\ln 2)/T_{1/2}$); t – время (ч)

Поскольку период полураспада материнского изотопа в 1666 раз больше периода полураспада дочернего ($T_{1/2}(\text{Sn}) \gg T_{1/2}(\text{In})$), а время наблюдения t (время выполнения задачи) много меньше периода полураспада ^{113}Sn ($t \ll T_{1/2}(\text{Sn})$), то уравнение (6.1) преобразуется в:

$$A_{\text{In},t} = A_{\text{Sn},0} (1 - e^{-0,4184 \cdot t}) \quad (6.2)$$

В работе используется экстракционный изотопный генератор, представляющий собой раствор радионуклидов в бензоле. К моменту начала выполнения работы радионуклиды уже находятся в состоянии векового равновесия и, следовательно, их абсолютные активности в растворе равны друг другу.

Каждый радионуклид характеризуется своим 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 $\Gamma_{в,i}$ для фотонного излучения ^{113m}In и излучения равновесной смеси изотопов ^{113}Sn (^{113m}In). Появление в экспериментальном γ -спектре линий с энергиями, отличными от приведенных в табл. 6.1, свидетельствует о наличии в препарате примесей других радионуклидов.

Таблица 6.1

Параметры фотонного излучения

^{113m}In			$^{113}\text{Sn}(^{113m}\text{In})$		
E_i , кэВ	p_i , %	$\Gamma_{в,i} \frac{\text{аГр}\cdot\text{м}^2}{\text{с}\cdot\text{Бк}}$	E_i , кэВ	p_i , %	$\Gamma_{в,i} \frac{\text{аГр}\cdot\text{м}^2}{\text{с}\cdot\text{Бк}}$
391,69	64,20	9,4	391,69	64,20	9,4
24,66 (КХ)	24,10	2,2	255,04	1,5	0,14
23,63 (КХ)	0,05	$5\cdot 10^{-3}$	24,66 (КХ)	96,1	8,8
			23,63 (КХ)	0,05	$5\cdot 10^{-3}$
Σ	88,35	11,7	Σ	161,85	18,3

Цель работы

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

Оборудование и материалы

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

Гамма-спектрометр с полупроводниковым или сцинтилляционным детектором.

Микропипетки на 0,02; 0,05 и 0,5 мл. Пробирки для измерения активности растворов.

Экстракционные пробирки. Водный раствор НИ 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 $^{113}\text{Sn}-^{113m}\text{In}$ в изотопном генераторе.

1.1. Проводят калибровку гамма-спектрометра по энергии в диапазоне 200÷500 кэВ (см. работу 3, стр. 27).

1.2. 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

$E_\gamma=392$ кэВ (I_γ) и вычисляют активность ^{113m}In (а, следовательно, и ^{113}Sn) в аликвотной части раствора:

$$A_{In} = \frac{I_f}{0,64 \cdot \varepsilon_f} = A_{Sn} \quad (6.3)$$

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

2. Выделение индия-113m из изотопного генератора.

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

Для выделения индия к раствору генератора приливают равный объем 6 моль/л раствора HI, тщательно закрывают экстракционную пробирку пробкой, интенсивно встряхивают пробирку над кюветой (!) в течение 3÷5 минут. Фиксируют текущее время начала встряхивания. 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 фотопика определяют активности ^{113m}In в водной и органических фазах на момент каждого измерения (см. п.1.2). По результатам измерения водной фазы строят (в координатах $\ln A_{In,t}$ от t) график, иллюстрирующий распад выделенного дочернего изотопа:

$$A_{In,t} = A_{In,o} \cdot \exp(-\lambda \cdot t) \quad \text{и} \quad \ln A_{In,t} = \ln A_{In,o} - \lambda \cdot t \quad (6.4),$$

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 в материнском изотопе (см. рис. 24 в учебнике [1]):

$$A_{In,t} = A_{In,\infty} [1 - \exp(-\lambda \cdot t)] \quad (6.5),$$

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

Рассчитывают, согласно (6.2), активность ^{113m}In во всем объеме водной фазы на момент начала разделения и, сопоставляя ее с исходной активностью ^{113m}In в генераторе (см. п.1.2), 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 фотопиков 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 ^{239}Np из экстракционного генератора $^{243}\text{Am}-^{239}\text{Np}$. Идентификация ^{239}Np методом γ -спектрометрии. Определение выхода целевого продукта.

Оборудование и материалы

Изотопный генератор $^{243}\text{Am}-^{239}\text{Np}$. 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 $^{243}\text{Am}-^{239}\text{Np}$, 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. 6.1.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 $E_\gamma=74,7$ кэВ (^{243}Am). Вычисляют, согласно (3.8) или (3.10), активность ^{243}Am (а, следовательно, и ^{239}Np) в 2 мл исходного раствора. При расчете используют известное (для заданных условий измерения) значение эффективности ϵ_f для фотонов $E_\gamma=74,7$ кэВ. По площади пиков полного поглощения ^{239}Np (табл. 6.2) аналогичным способом определяют активность дочернего нуклида в исходном растворе. Сопоставляют полученные результаты.

Таблица 6.2.

Наиболее интенсивные рентгеновские и γ -линии ^{239}Np и ^{243}Am

^{239}Np		^{243}Am	
E_i , кэВ	p_i , %	E_i , кэВ	p_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		

^(*) – 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 неп-

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

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

2.4. Из очищенной органической фазы реэкстрагируют ^{239}Np 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. 6.1.б). По площади пиков полного поглощения спектра определяют активность ^{239}Np (см. пункт 1). Делают заключение о полноте разделения радионуклидов (наличие или отсутствие линии 74,7 кэВ материнского нуклида ^{243}Am в водной вытяжке). По результатам измерений активности ^{239}Np в исходном растворе и в водной фазе определяют выход целевого продукта.

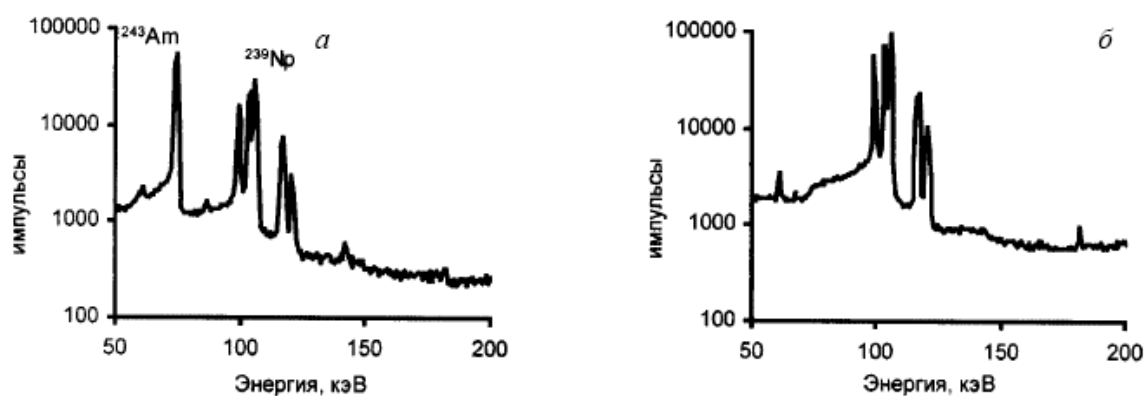


Рис. 6.1. Гамма-спектры: а – равновесная смесь ^{243}Am – ^{239}Np , б – препарат ^{239}Np

6.3. ГЕНЕРАТОР $^{90}\text{Sr} \rightarrow ^{90}\text{Y}$

Изотопный генератор $^{90}\text{Sr} \rightarrow ^{90}\text{Y}$ - один из самых известных представителей пары материнский долгоживущий - дочерний короткоживущий радионуклиды ($T_{1/2}(^{90}\text{Sr}) = 28,7$ лет, $T_{1/2}(^{90}\text{Y}) = 64,2$ ч). Основные технологии разделения этой пары базируются на хроматографических и экстракционных методах 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 HNO_3 . 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 HNO_3) 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 кислотой (13,5 моль/л), встряхивая и отделяя затем водные фазы (II и III). Водные фазы (I), (II) и (III) сливают в бутылку для радиоактивных отходов, находящуюся под тягой.

Зависимость коэффициента распределения (D_Y) иттрия при экстракции из азотнокислых растворов в виде комплекса $\text{Y}(\text{NO}_3)_3 \cdot 3\text{ТБФ}$ приведена в таблице*.

$\text{C}(\text{HNO}_3)$, моль/л	D_Y	$\text{C}(\text{HNO}_3)$, моль/л	D_Y	$\text{C}(\text{HNO}_3)$, 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, из которой в чашечку для выпаривания отбирают пробу раствора иттрия-90, объемом 0,5 мл. Чашечку маркируют и ставят под лампу для выпаривания. После испарения воды препараты ^{90}Y помещают в чашку Петри и закрывают крышкой.

4. Измерение скорости счета. Определения периода полураспада

Определение скорости счета препаратов ($I = I_c - I_\phi$) проводят на установках со счетчиком Гейгера-Мюллера в течение 7-14 дней (всего 5-6 измерений) 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 $\ln I$ от t , определяют период полураспада радионуклида, сравнивают с литературными данными для ^{90}Y 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 бутылку 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 $^{44}\text{Ti} \rightarrow ^{44}\text{Sc}$

Изотопный генератор $^{44}\text{Ti} \rightarrow ^{44}\text{Sc}$ ($T_{1/2}(^{44}\text{Ti}) = 47$ лет, $T_{1/2}(^{44}\text{Sc}) = 3,93$ 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 промывают 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 $^{44}\text{Ti}(^{44}\text{Sc})$, 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 H₂C₂O₄ (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.

Результаты измерений активности фракций элюента

№ фракции	Время отбора, мин	Радиоактивность пробы сразу после отбора, Бк			Радиоактивность пробы спустя 40 ч, Бк		
		Активность по ППЭ 511 кэВ	Активность по ППЭ 1157 кэВ	Фон	Активность по ППЭ 511 кэВ	Активность по ППЭ 1157 кэВ	Фон

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 бутылку 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. В этом случае, измеряя радиоактивность меченого соединения, можно 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 возникает необходимость разделения меченых компонентов. В настоящее время для этого используют различные варианты хроматографии в комплексе с современным радиометрическим оборудованием. Тонкослойная хроматография (ТСХ) является экспрессным и простым методом разделения веществ. Специальные сканирующие устройства, например «БетаХром», с маленькой шириной зоны регистрации детектора (1-2 мм) позволяют с высокой точностью определять радиоактивность веществ даже с близкими значениями R_f .

Регистрация радиоактивности с помощью сканера «БетаХром»

Прибор «БетаХром» представляет собой сканирующее устройство, позволяющее определять распределение радиоактивности на хроматографических пластинках, у которых сорбент нанесен на гибкую алюминиевую или полимерную подложку. Пластика пропитывается жидким сцинтилляционным составом, закрепляется на барабане диаметром 20 см, который помещают в регистрационную камеру прибора.

Работа сканера основана на регистрации квантов света, испускаемых сцинтиллятором под действием ионизирующего излучения, с помощью фотоэлектронного умножителя (ФЭУ). В верхней части камеры напротив хроматографической полоски находится узкая щель шириной 1 мм. Через эту щель световое излучение попадает на фотокатод ФЭУ. Во время работы прибора барабан вращается, и таким образом можно определить распределение радиоактивности по пластинке с разрешением около 1 мм. В приборе использована схема усиления сигнала одного ФЭУ. В отличие от реализуемой в современных жидкостных сцинтилляционных спектрометрах схемы совпадений импульсов, поступающих от двух ФЭУ, в этом случае регистрируется суммарный сигнал, который пропорционален интенсивности светового потока, падающего на ФЭУ. Схема регистрации излучения с помощью одного ФЭУ ухудшает счетные характеристики прибора, однако проще в исполнении и уменьшает его стоимость. Аналоговый сигнал на выходе прибора преобразуется в цифровой с помощью АЦП и записывается в виде файла в компьютере. С помощью программ обработки хроматографических данных рассчитывают площади соответствующих пиков. По результатам измерений соединений с известной радиоактивностью вычисляют калибровочные коэффициенты, которые используют для определения абсолютной активности веществ, разделяемых с помощью ТСХ.

Передняя панель сканера «БетаХром» изображена на рис. 7.1. В центральной части находится камера (1), в которую помещают барабан с хроматографической пластиной. Крышка камеры закрывается и фиксируется винтом (2). Прибор включается с помощью тумблера (3). **Внимание! Высокое напряжение на ФЭУ подают с помощью тумблера (4) только при закрытой крышке камеры.**

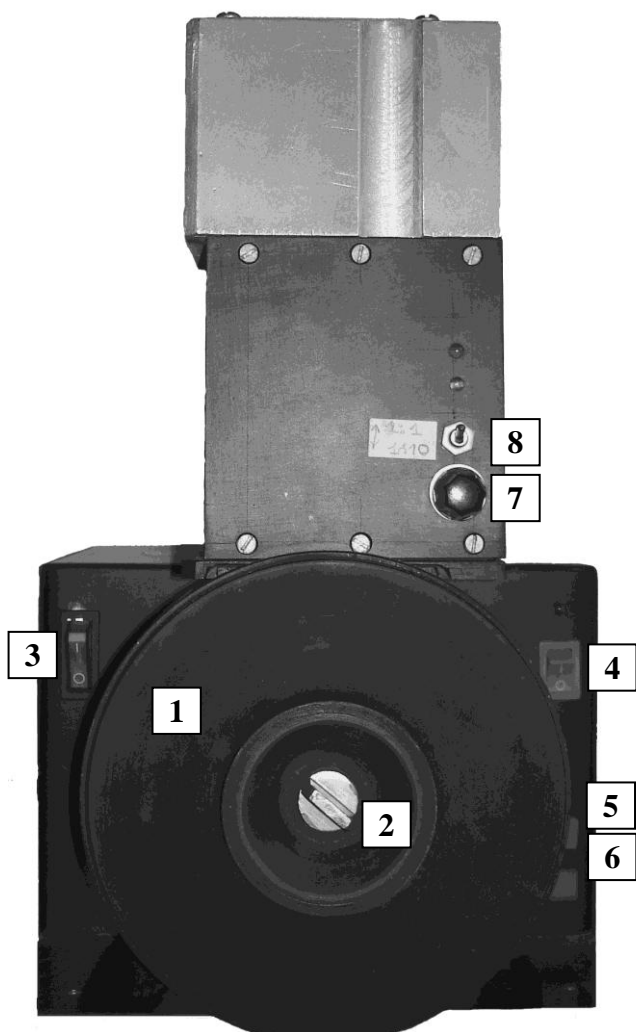


Рис. 7.1. Сканер радиоактивности «БетаХром»: 1- камера для сканирования пластинок, 2 – фиксирующий винт крышки камеры, 3 – сетевой тумблер, 4 – тумблер подачи высокого напряжения, 5 – кнопка «старт», 6 – кнопка «стоп», 7 – регулировка тока выходящего сигнала, 8 – переключатель интенсивности сигнала.

Через 1-2 минуты запускают вращение барабана (кнопка 5). Одновременно запускается программа Power Graph, которая фиксирует поступающий со сканера сигнал, выводит на экран график зависимости уровня сигнала от времени и проводит обработку данных. После появления на экране монитора панели управления программы Power Graph запускают регистрацию сигнала нажатием кнопки «Старт» компьютерной мышкой и устанавливают соответствующие диапазоны демонстрации зависимости интенсивности сигнала от времени сканирования на экране монитора. В данной работе амплитуда сигнала обычно находится в диапазоне от 1 до 5 мВ, а время сканирования составляет от 3 до 5 минут. При первом включении прибора проверяют интенсивность темнового тока ФЭУ и при необходимости с помощью регулировки (7) уменьшают её или полностью избавляются от ложных импульсов, обусловленных темновым током. Переключатель (8) позволяет уменьшить в 10 раз интенсивность сигнала, выходящего с ФЭУ. В данной работе сканирование проводят без ослабления сигнала.

После того как прибор отсканирует всю пластинку от места нанесения вещества до фронта элюента (определяется по уменьшению интенсивности сигнала до уровня фона), измерение прекращают: подводят курсор к кнопке «Стоп» на экране монитора и нажимают левую клавишу мышки. Одновременно останавливают вращение барабана кнопкой (6) на панели управления сканером. Выключают высокое напряжение тумблером (4), открывают крышку камеры, вынимают барабан и фиксируют длину про-

сканированного участка хроматограммы. Результаты сканирования сохраняют в виде двух файлов: 1) файл с расширением .pgc, который позволяет обрабатывать результаты с помощью программы Power Graph; 2) файл с расширением .txt, представляющий собой массив данных. Для уменьшения объема регистрируемых данных можно использовать 10-кратную регрессию. Количество точек фиксации данных уменьшается в 10 раз, но это, как правило, не уменьшает точность определения радиоактивности.

Правила работы с веществами, содержащими ^{14}C

Углерод-14 постоянно образуется в атмосфере Земли под действием космического излучения по реакции $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$. Поэтому в живых организмах поддерживается постоянное соотношение изотопов $^{14}\text{C}:^{12}\text{C} \cong 1:10^{12}$. В организме взрослого человека содержится примерно 4 кБк ^{14}C . 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/см^2 , и излучение углерода-14 полностью поглощает слой воздуха 25 см или стенки пробирок с радиоактивными растворами. В случае попадания ^{14}C внутрь организма его основная часть достаточно быстро выводится через легкие в форме $^{14}\text{CO}_2$. 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 (с помощью находящегося в комнате радиометра) 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

Определение радиоактивности аминокислот, меченных углеродом-14, в их смеси с использованием тонкослойной хроматографии и сканера радиоактивности.

Оборудование, материалы и реактивы

Сканер радиоактивности «БетаХром»;
пластинки Silufol; хроматографический стакан; микропипетки, капилляры.
растворы аминокислот: лизин (K), глицин (G), валин (V), лейцин (L);
смеси этих аминокислот, меченных ^{14}C ;
раствор нингидрина в ацетоне или этаноле;
бутанол, уксусная кислота (98%), дистиллированная вода;
сцинтилляционная жидкость Scintilene BD.

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 пластинки 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. 7.2. 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

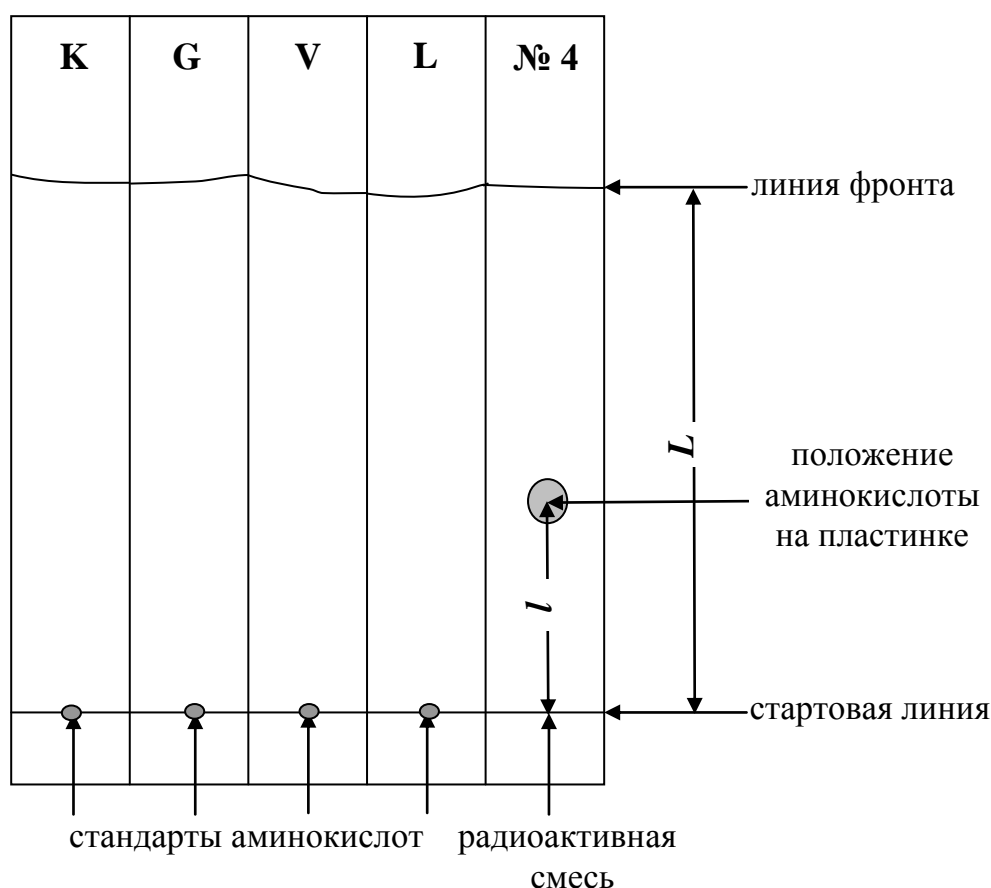


Рис. 7.2. Вид хроматографической пластинки, используемой в работе.

Пояснения в тексте.

пластинку на кювету с радиоактивными растворами. Надевают на микропипетку сменную насадку, отбирают 2 мкл раствора смеси аминокислот и аккуратно наносят

раствор на линию старта. После высыхания раствора наносят еще 2 мкл раствора. Сменную насадку снимают с пипетки и кладут в емкость для радиоактивных отходов.

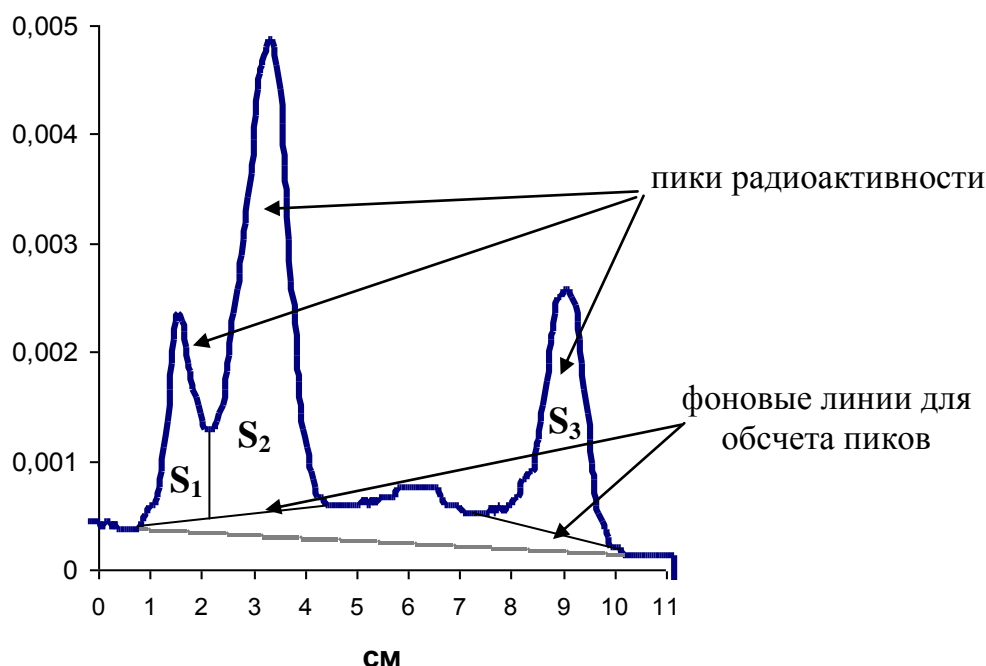


Рис. 7.3. Распределение радиоактивности по хроматографической пластинке, полученное из данных сканирования. Радиоактивность меченых соединений пропорциональна площади пиков S_1 , S_2 и S_3 .

Хроматографическую 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 из-за низкого уровня радиоактивности на ней.

Через 30-40 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 красно-фиолетовых пятен — продуктов реакции нингидрина с аминокислотами. Для ускорения проявления пятен пластинку можно нагреть под лампой или в сушильном шкафу. При этом необходимо следить за пластинкой, так как при «перегреве» нингидрин может окрасить всю пластинку. Контуры полученных пятен обводят карандашом, а слой сорбента заклеивают скотчем для того, чтобы можно было брать пластинку в руки без опасения испачкаться нингидрином.

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.

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 хроматограммой безопасной.

Под руководством преподавателя проводят сканирование хроматограммы на приборе «БетаХром». Данные сканирования записывают в виде текстового файла с 10-кратной регрессией.

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. 7.2). С помощью Microsoft Excel или любой другой программы по математической обработке данных строят графики зависимости интенсивности сигнала от положения детектора над пластинкой (рис. 7.3). Так как программа Power Graph фиксирует время сканирования, то 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, после включения высокого напряжения, 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. 7.3). Рассчитывают процентное соотношение радиоактивностей аминокислот, находящихся в исследуемой смеси:

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

где S_X – площадь пика аминокислоты X ; $\sum_i S_{X,i}$ – сумма площадей пиков всех аминокислот, идентифицированных на хроматограмме.

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 тритием и углеродом-14. Одной из причин этого является то, что указанные радионуклиды можно ввести практически в любую органическую молекулу. Кроме того, при работе с тритием и углеродом-14, испускающих при распаде низкоэнергетические β -частицы, практически не требуется защита от внешнего облучения, что упрощает проведение химической части эксперимента. Вместе с тем надежная регистрация излучения трития и углерода-14 возможна только с помощью жидкостно-сцинтилляционных спектрометров (ЖС–спектрометров). Для регистрации радиоактивного излучения раствор препарата смешивают с органической жидкостью, 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.

Принципы регистрации излучения с помощью ЖС–спектрометров достаточно подробно изложены в учебном пособии [10]. Одно из основных достоинств ЖС–метода – возможность проводить измерения α - и 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 энергии возбуждения молекулам сцинтиллятора, и цветового гашения, когда гасителями поглощаются фотоны. Оба процесса приводят к тому, что в результате уменьшения числа квантов света, попадающих на ФЭУ, и изменения регистрируемого спектра снижается эффективность ε . Между формой спектра регистрируемого излучения и эффективностью ε существует однозначная связь. Таким образом, ЖС–спектрометрия имеет важное преимущество, которое заключается в том, что из полученного спектра можно определить эффективность регистрации радионуклида. В данной работе предполагается выявить влияние различных добавок на регистрируемый спектр излучения трития и углерода-14.

Цель работы

Получение препаратов трития и углерода-14 с заданной активностью.

Определение кривых гашения по изменению скорости счета препаратов при добавке гасителей.

Оборудование и реактивы

ЖС- спектрометр RackBeta 1215 (LKB Wallac, Финляндия)

Флаконы сцинтилляционные малые, объемом 7 мл.

Микропипетки переменного объема на 200 мкл, наконечники к ним (погрешность при отборе проб объемом 20, 100 и 200 мкл составляет 1,2, 1,0 и 0,6 %, соответственно).

Жидкость сцинтилляционная ЖС-8.

Раствор меченного по ^3H вещества с известной удельной радиоактивностью.

Раствор меченного по ^{14}C вещества с известной удельной радиоактивностью.

Гасители: 2% раствор нитробензола в этаноле, 1% раствор голубого декстрана в воде

Выполнение работы

В 20 сцинтилляционных флаконов вносят по 2 мл сцинтилляционной жидкости ЖС-8. Разделяют флаконы на 4 серии по 5 флаконов. С помощью микропипетки добавляют в первую и вторую серии флаконов по 100 мкл раствора, содержащего тритий, а в третью и четвертую серию флаконов - по 100 мкл раствора, содержащего ^{14}C . Измеряют радиоактивность флаконов на приборе RackBeta. Спектрометр RackBeta дискриминирует регистрируемые импульсы по 256 каналам в диапазоне от 0 до 4 МэВ. Зависимость энергии дискриминации от номера канала в спектрометре экспоненциальная, так что весь спектр излучения трития укладывается в 110 каналах, а ^{14}C – в 165 каналах. Прибор можно запрограммировать таким образом, что весь спектр излучения можно разделить на 4 области. Обычно регистрацию в каналах 1-7 не проводят, так как в области этих энергий наиболее высокий уровень ложных импульсов хемолуминесценции и собственного шума ФЭУ. Таким образом, флаконы с тритием регистрируют по программе, распределяющей регистрируемые импульсы по каналам: 8-34, 35-60, 61-85 и 86-110. Регистрируемые импульсы излучения ^{14}C распределяют по четырем группам следующим образом: 8-45, 46-85, 85-125, 126-165. Результаты измерения записываются в виде текстового файла, пример которого приведен в табл. 8.1. Сокращение СРМ (от англ. counts per minute) означает скорость счета в соответствующем диапазоне в единицах измерения имп/мин. Общую скорость счета препарата вычисляют, суммируя четыре слагаемых:

$$I_i^{\Sigma} = \sum_{j=1}^4 I_i^{(j)} \quad (8.1)$$

Рассчитывают среднее значение скорости счета внесенных проб, \bar{I} , стандартное отклонение (1.17) и погрешность, соответствующую 95%-ной доверительной вероятности (1.19).

Учитывая равенство $\eta=k=S=q=1$, эффективность детектора к излучению ^3H и ^{14}C определяют как:

$$\varepsilon = \bar{I}/A \quad (8.2),$$

где A – радиоактивность пробы в единицах расп/мин \equiv DPM (decay per minute) рассчитывается из данных, предоставленных преподавателем.

Сопоставляют полученные значения доверительной погрешности с паспортными характеристиками микропипеток. Если погрешность определения \bar{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 рассчитывают радиоактивность каждой пробы (A_i) по зарегистрированной скорости счета и значению ε , полученному ранее по (8.2):

$$A_i = I_i^{\Sigma} / \varepsilon \quad (8.3)$$

Чтобы изменить условия регистрации, добавляют в первую и третью серию флаконов раствор нитробензола (химический гаситель), а во вторую и четвертую серию флаконов - раствор голубого декстрана (цветовой гаситель) согласно табл. 8.2.

Таблица 8.1.

Типичная распечатка данных на приборе RackBeta.

POS	TIME	CPM1	CPM2	CPM3	CPM4
001	00060	$I_1^{(1)}$	$I_1^{(2)}$	$I_1^{(3)}$	$I_1^{(4)}$
002	00060	$I_2^{(1)}$	$I_2^{(2)}$	$I_2^{(3)}$	$I_2^{(4)}$
003	00060	$I_3^{(1)}$	$I_3^{(2)}$	$I_3^{(3)}$	$I_3^{(4)}$
004	00060	$I_4^{(1)}$	$I_4^{(2)}$	$I_4^{(3)}$	$I_4^{(4)}$
005	00060	$I_5^{(1)}$	$I_5^{(2)}$	$I_5^{(3)}$	$I_5^{(4)}$

Таблица 8.2

Количество гасителя (мкл), добавляемое во флаконы со сцинтиллятором ЖС-8

№ флакона в серии	Раствор нитробензола	Раствор голубого декстрана
1	25	50
2	50	100
3	100	200
4	150	300
5	200	400

Повторно измеряют радиоактивность флаконов на приборе RackBeta с использованием тех же программ. Определяют эффективность регистрации β -частиц для каждого флакона по изменению скорости счета после добавки гасителя:

$$\varepsilon_i = I_i^{\Sigma(\text{гаситель})} / A_i \quad (8.4)$$

В качестве характеристики формы спектра трития используют отношение скорости счета в диапазоне 61-110 к скорости счета во всем диапазоне 8-110:

$$\delta_i = (I_i^{(3)} + I_i^{(4)}) / I_i^{\Sigma} \quad (8.5)$$

Для ^{14}C используют аналогичное отношение в диапазонах 85-165 и 8-165.

Строят калибровочные кривые зависимости эффективности регистрации (ε_i) от величин δ_i , полученных по формуле (8.5) для трития и углерода-14. Сопоставляют полученные кривые для разных типов гасителей и для двух радионуклидов. Для наглядного представления об изменениях регистрируемого спектра строят графики в координатах:

$$I_i^{(j)} - j.$$

С помощью полученных кривых гашения определяют абсолютную активность контрольного раствора, проведя 3 отбора проб по 100 мкл во флаконы с 2 мл сцинтиллятора ЖС-8. Рассчитывают среднее значение активности 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 ионного 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 x подчиняется уравнению Фика:

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

где D – коэффициент диффузии (самодиффузии) вещества, единица измерения в СИ – $\text{м}^2/\text{с}$.

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 ничтожно-го количества меченного радионуклидом вещества в твердой или жидкой фазе), то уравнение (9.1) принимает более простой вид:

$$\frac{dC}{dt} = D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} \quad (9.2)$$

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

$$D = D_0 \exp\left(-\frac{E}{RT}\right) \quad (9.3),$$

где D_0 – 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 l , 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:

$$\frac{C}{C_0} = \frac{8}{\pi^2} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{1}{(2n+1)^2} \exp\left[-\frac{(2n+1)^2 \pi^2 Dt}{4l^2}\right] \quad (9.4),$$

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 $C/C_0 = I/I_0$, где I – радиоактивность раствора в капилляре после диффузии (по истечению времени t), I_0 – начальная радиоактивность раствора в капилляре.

Если $Dt/l^2 > 0,2$ (или $I/I_0 < 0,5$), то можно ограничиться первым членом ряда (9.4). При $n=0$ получаем:

$$\frac{I}{I_0} = \frac{8}{\pi^2} \exp\left(-\frac{\pi^2 Dt}{4l^2}\right) \quad (9.5)$$

После несложных преобразований получаем формулу для определения D :

$$D = -\frac{l^2}{1,071 \cdot t} \lg\left(\frac{\pi^2 I}{8 I_0}\right) \quad (9.6)$$

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

В тех случаях, когда для определения значения коэффициента диффузии D_n 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_m и рассчитывают значение D_n , используя соотношение:

$$D_m \eta_m \cdot \sqrt{M_m} = D_n \eta_n \cdot \sqrt{M_n} \quad (9.7),$$

где D – коэффициент диффузии, η – вязкость раствора, M – молекулярная масса; индекс m отвечает меченому соединению, а индекс n – 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 $0,8 \pm 0,9$ мм. Микропипетки. Пинцет. Пробирки для измерения активности капилляров. Стакан на 100 мл.

Раствор NaI или KI с концентрацией 0,01 моль/л, содержащий ^{131}I ; 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

Результаты измерений активности капилляров

№ капилляра	Длина l , см	Скорость счета, имп/с				
		I_ϕ	I_o	$(\bar{I}_o - \bar{I}_\phi)^*$	I	$(\bar{I} - \bar{I}_\phi)^*$

* разность среднего значения скорости счета \bar{I}_o (или \bar{I}) и среднего значения фона \bar{I}_ϕ

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÷5 см позволяет снизить вклад краевых эффектов в получаемые значения D , а увеличение длительности диффузии t до 48-60 ч (при длине капилляров 4÷5 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, ^{57}Fe и ^{119}Sn . 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 ^{119}Sn 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 $\pm v$ приводит к изменению энергии излучения на величину:

$$\pm \delta_D = \frac{\pm v}{c} E_\gamma \quad (10.1),$$

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

Таким образом, в мессбауэровской спектроскопии энергия выражается в единицах скорости (в спектрах ^{57}Fe 1 мм/с соответствует энергии $4,80766 \cdot 10^{-8}$ эВ, в спектрах ^{119}Sn – энергии $7,96534 \cdot 10^{-8}$ эВ). Мессбауэровский спектр представляет собой зависимость числа γ -квантов, проходящих через поглотитель - исследуемое вещество и зарегистрированных детектором, от скорости v и отражает влияние электронной оболочки на энергию ядерных переходов. Минимальное число γ -квантов (импульсов) N_0 регистрируется при скорости v , 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 Γ и называют «шириной линии». Минималь-

ное (теоретическое) значение Γ определяется удвоенной естественной шириной линии поглощения (испускания) Γ_0 и, например, в случае ^{57}Fe не может быть меньше $2\Gamma_0 = 0,194$ мм/с (в случае ^{119}Sn - $0,642$ 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 $0 < t_a \leq 5$) можно воспользоваться следующей зависимостью:

$$\Gamma = \Gamma_{t \rightarrow 0} + 0,27t_a \cdot \Gamma_0 \quad (10.2),$$

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; $\Gamma_{t \rightarrow 0}$ - ширина линии, экстраполированная к нулевой толщине поглотителя.

Уравнение (10.2) позволяет найти $\Gamma_{t \rightarrow 0}$ (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 $\Gamma_{t \rightarrow 0}$ в спектрах ^{57}Fe и ^{119}Sn составляет $\sim 0,22$ и $\sim 0,8$ мм/с, соответственно. Эффективная толщина поглотителей обычно меньше значения $t_a = 2$ и относительное увеличение ширины линии в этом случае не слишком велико ($\Delta\Gamma/\Gamma_{t \rightarrow 0} \leq 0,2$). 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 ($t_a \leq 2$) определяется выражением:

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

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 $n f'$ ($\sigma_0 = \text{const}$). 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:

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

где $\langle u^2 \rangle$ - 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' соответствует 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 окружение мессбауэровских ядер в источнике и поглотителе не идентично.

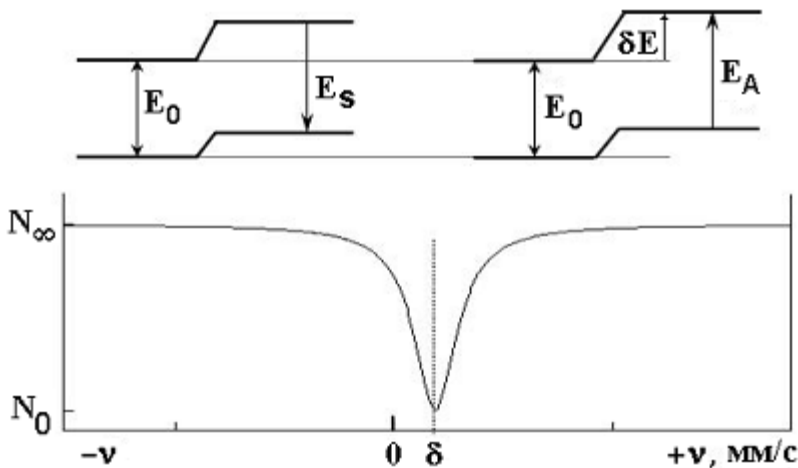


Рис. 10.1. Диаграмма энергетических уровней ядер в источнике и поглотителе и соответствующий мессбауэровский спектр. $(R_e^2 - R_g^2) > 0$; $\delta E \ll E_0$; $\delta = E_A - E_S$.

Энергия ядерного уровня в результате взаимодействия заряда ядра конечных размеров с внешним электрическим полем смещается на величину δE по сравнению с энергетическим уровнем ядра, не имеющим электронной оболочки («голового» ядра) (рис. 10.1). Таким образом, энергия ядерного перехода как в источнике (E_S), так и в поглотителе (E_A) отличаются от энергии E_0 , соответствующей «голому» ядру. Знак и величина δ

определяется соотношением:

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

где e - 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 ÷ +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 SnF_4 , SnO_2 , SnCl_4 , SnS_2 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:

$$E_Q = \frac{eQV_{zz}}{4I(2I-1)} [3m_I^2 - I(I+1)] \left(1 + \frac{\eta^2}{3}\right)^{\frac{1}{2}} \quad (10.6),$$

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

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 ^{57}Fe и ^{119}Sn) 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:

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

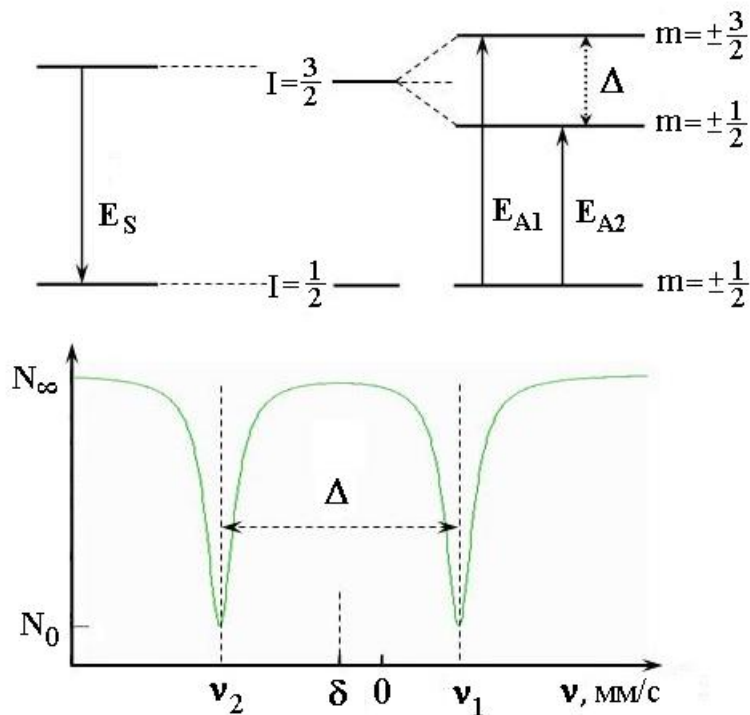


Рис.10.2. Схема ядерных переходов при квадрупольном взаимодействии в случае $QV_{zz} > 0$ и соответствующий мессбауэровский спектр. E_S и (E_{A1}, E_{A2}) - энергии переходов в ядрах источника (s) и поглотителя (A).

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 неподделенную 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 по-

разному 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 $(2I+1)$ подуровней, энергия которых определяется соотношением:

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

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 ($m_I = I, I-1, \dots -I$).

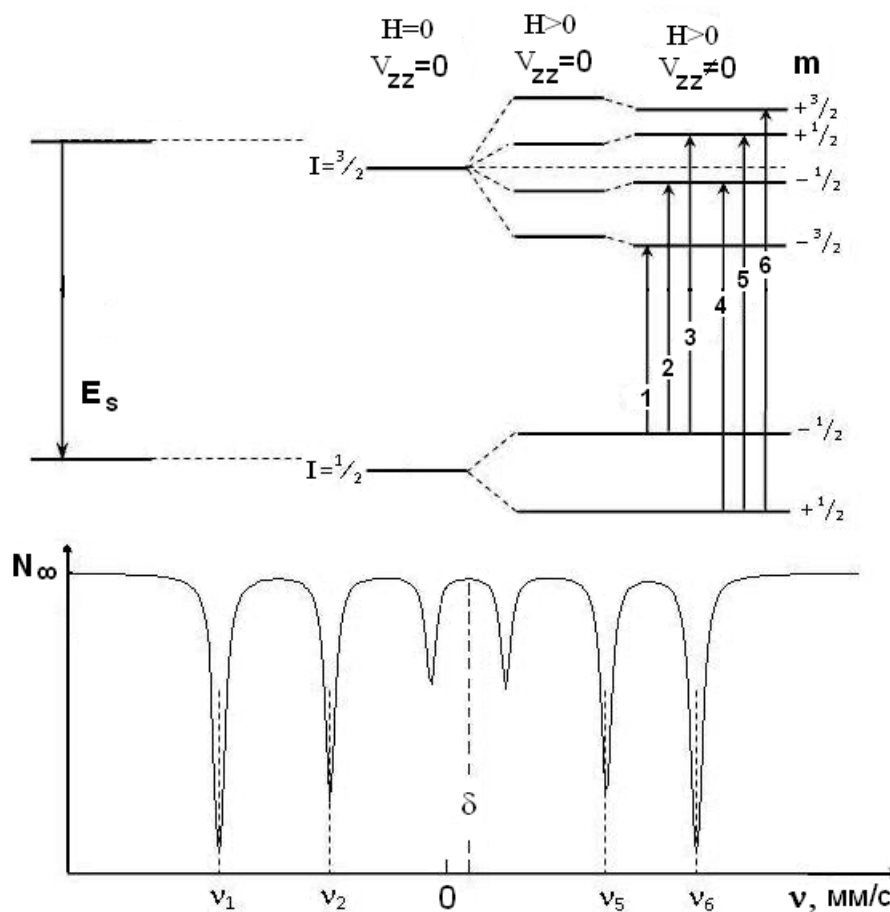


Рис. 10.3. Схема ядерных уровней ^{57}Fe : в отсутствие поля и градиента электрического поля ($H=0; V_{zz}=0$), в случае магнитного сверхтонкого ($H>0; V_{zz}=0$) и комбинированного электрического квадрупольного и магнитного сверхтонкого взаимодействия ($H>0; V_{zz} \neq 0; |\mu H| \gg eQV_{zz}$). E_S - 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 ^{57}Fe . В этом случае при поглощении резонансного γ -кванта ядро переходит из одного из подуровней основного со-

стояния ($I_g = 1/2$) на один из четырех подуровней возбужденного состояния ($I_e = 3/2$). Шесть разрешенных дипольных переходов ($\Delta m=0, \pm 1$) приводят к появлению в месбауэровском 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:

$$\delta_Q = \frac{eQV_{zz}}{4} \frac{3\cos^2\theta - 1}{2} \quad (10.9),$$

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 месбауэровских спектров, позволяя сделать выводы об особенностях электронной, кристаллохимической и магнитных структур изучаемых соединений.

Одна из важных задач, которая может быть решена с помощью месбауэровской 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 месбауэровского атома, а также идентифицировать соединения месбауэровских элементов.

10.2. Получение месбауэровских спектров соединений железа и олова.

Цель работы

Практическое ознакомление с работой месбауэровского 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 γ -излучения: $^{57}\text{Co}(\text{Rh})$ или $\text{Ba}^{119\text{m}}\text{SnO}_3$

Стандартные поглотители для калибровки шкалы скорости: $\text{Na}_2[\text{Fe}(\text{NO})(\text{CN})_5]\cdot 2\text{H}_2\text{O}$; $\alpha\text{-Fe}$; $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$.

Исследуемые соединения железа (FeSO_4 , $\text{Fe}_2(\text{SO}_4)_3$, $\text{K}_4[\text{Fe}(\text{CN})_6]$, $\text{K}_3[\text{Fe}(\text{CN})_6]$ и др.) или олова (SnO , SnO_2 , SnS_2 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 вещество-поглотитель (3) при скорости v_i и зарегистрированных детектором (5), от номера канала.

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

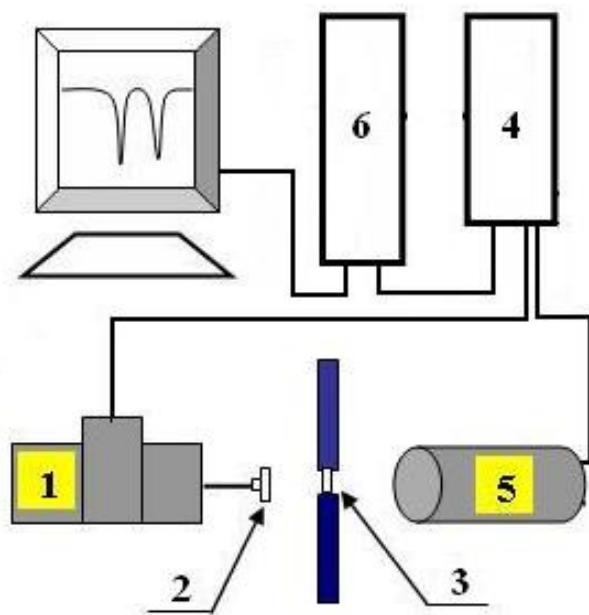


Рис. 10.4. Блок-схема мессбауэровской установки.

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

$\text{Ba}^{119\text{m}}\text{SnO}_3$ (спектрометрия ^{119}Sn) и ^{57}Co , внедренный в металлическую матрицу (Rh или Pd, спектрометрия ^{57}Fe). Гамма-кванты регистрируются детектором сцинтилляционного типа, состоящим из тонкого (0,5 и 0,15 мм в случае ^{119}Sn и ^{57}Fe , соответственно) кристалла NaI(Tl) и фотоэлектронного умножителя ФЭУ-93.

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 δ , полученные при обработке спектров исследуемых образцов, пересчитывают относительно центров тяжести спектров эталонных поглотителей, находящихся при комнатной температуре: $\alpha\text{-Fe}$ (для спектров ^{57}Fe) и $\text{Ba}^{119}\text{SnO}_3$ (для спектров ^{119}Sn).

Для получения спектров используются источники γ -излучения:

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 ^{119}Sn и ^{57}Fe 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 (^{57}Fe) или 23,8 кэВ (^{119}Sn). 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

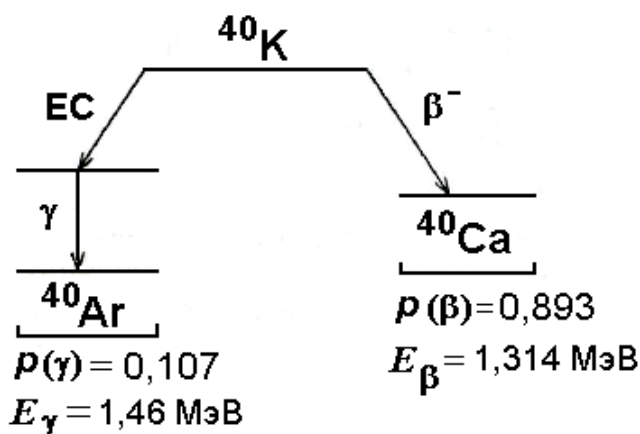


Рис.11.1. Схема распада ^{40}K

Элемент калий помимо двух стабильных нуклидов ^{39}K и ^{41}K (массовая доля 93,08 и 6,91%), содержит также радионуклид ^{40}K (0,012 %). Период полураспада ^{40}K $1,28 \cdot 10^9$ лет, то есть он сохранился на Земле с момента ее образования и является первичным естественным радионуклидом. При распаде ^{40}K 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 $140 \div 160$ ммоль/л, во внеклеточной жидкости – $3 \div 5$ ммоль/л. От соотношения концентрации K^+ 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 $2 \div 4$ г, и полностью обеспечивается при нормальном режиме питания.

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

Для техногенных и природных радионуклидов нормируются допустимые значения их содержания в пищевых продуктах, питьевой воде и воздухе (^{222}Rn и ^{220}Rn). 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 ^{238}U , ^{232}Th и ^{226}Ra ограничиваются величинами 8,4, 2,2 и 0,67 кБк, для мягкого β^- -излучателя ^{14}C – 630 кБк. Для ^{40}K в составе природной смеси изотопов ПГП не нормируется. Введено только ограничение в 24 кБк при поступлении ^{40}K 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 ^{40}K приведены в табл. 11.1.

Таблица 11.1

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

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

Для идентификации ^{40}K и определения его содержания в материалах и природных объектах обычно применяют γ -спектрометрию. Вместе с тем, в ряде случаев определить радиоактивность ^{40}K 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 ^{40}K может только наличие в образце β -излучающих нуклидов.

2. Скорость счета β -излучения пропорциональна концентрации радионуклида, если использовать препараты с толщиной, равной или больше $\frac{3}{4}$ 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 ^{40}K это условие регистрации выполняется для препаратов с толщиной более $0,45 \text{ г/см}^2$. Таким образом, для измерения скорости счета солей калия можно использовать препараты толщиной около 2 мм, для порошкообразных образцов с насыпной плотностью более $0,4 \text{ г/см}^3$ - 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 (номера 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 ⁹⁰Sr и ¹³⁷Cs.

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 среднее значение скорости счета за вычетом фона: $\bar{I}_{эм,i} = \bar{I}_{c,i} - \bar{I}_\phi$ и $\bar{I}_{x,i} = \bar{I}_{np,i} - \bar{I}_\phi$. Рассчитывают погрешности ($\Delta_{\gamma,t}$) определения $\bar{I}_{эм,i}$ 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 $\bar{I}_{эм,i}$ от процентного содержания в них калия ($\omega_{эт,i}$). Определяют коэффициент B линейной зависимости: $I_{эм} = B \cdot \omega$

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 , ^{14}C , ^{35}S), 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:

$$\Gamma = \frac{I}{\varepsilon \cdot m \cdot A_{y\delta} \cdot S_{y\delta}} \quad (12.1),$$

где I – скорость счета (за вычетом фона) адсорбента (имп/мин); $A_{y\delta}$ – удельная радиоактивность меченого соединения в имп/(мин·мг); m – масса адсорбента (г); $S_{y\delta}$ – 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:

$$\Gamma = \frac{(c_0 - c) \cdot V}{m \cdot S_{y\delta}} \quad (12.2),$$

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

Равновесную концентрацию раствора адсорбата, которая пропорциональна

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

$$c = \frac{I}{\varepsilon \cdot V_1 \cdot A_{уд}} = \frac{I_{об.}}{\varepsilon \cdot A_{уд}} \quad (12.3),$$

где I – скорость счета (имп/мин) раствора адсорбата объемом V_1 (мл); $I_{об.}$ – объемная скорость счета (имп/мин·мл) равновесного раствора адсорбата; $A_{уд.}$ – удельная радиоактивность адсорбата в имп/(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, гидроксиапатите 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).

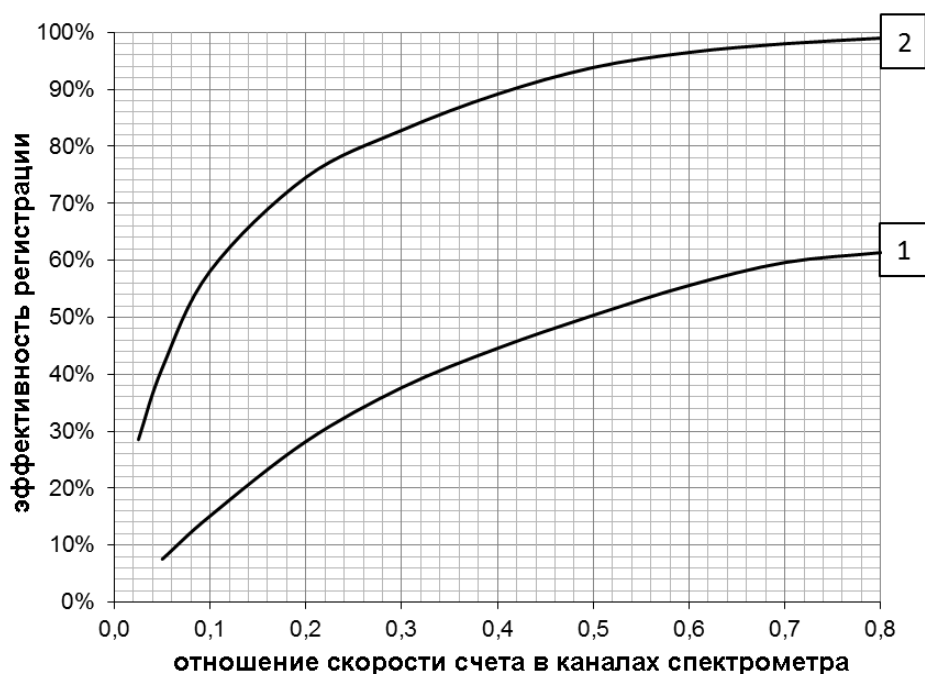


Рис. 12.1. Кривая гашения для определения эффективности регистрации β -излучения трития (1) и углерода-14 (2) при измерении радиоактивности с помощью ЖС спектрометра RackBeta 1215

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 ^3H или ^{14}C ; 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.

№	Масса сухих пробирок, г	Масса пробирок с растворителем, г	Масса пробирок с растворителем и добавкой адсорбата, г	Объем раствора адсорбата в пробирках, мл	Начальная концентрация раствора адсорбата, мг/мл
1					
2					
...					
6					

4. Готовят точные навески адсорбента в микропробирках, в которые затем переносят полученные растворы (табл. 12.2).

Таблица 12.2.

№	Масса пробирок, г	Масса пробирок с навеской адсорбента, г	Масса адсорбента, г	Масса пробирок с навеской адсорбента и раствором адсорбата, г	Объем суспензии, мл
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

№	Объем аликвоты, мл	Скорость счета фона, имп/мин	Скорость счета аликвоты (без фона), имп/мин	Отношение счета в каналах ЖС спектрометра*	Эффективность регистрации β -излучения*	c_i , мг/мл	Γ_i , мг/м ²
1							
2							
...							
6							

* - см. рис. 12.1

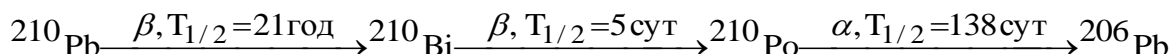
9. Строят изотерму адсорбции – зависимость адсорбции от равновесной концентрации растворенного вещества при постоянной температуре.

Расчетные задачи

1. Построить схему распада нуклида ^{40}K . Тип распада: электронный захват (вероятность $p_{\text{э.з.}} = 0,11$) 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 $^{101}\text{Mo} \rightarrow ^{101}\text{Tc}$ 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 ^{101}Mo .
3. Ядерное превращение $^{219}\text{Rn} \rightarrow ^{215}\text{Po}$ (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 ^{219}Rn .
4. Определить для β -частиц ^{32}P 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 ^{89}Sr . *Ответ: 0,62 см*
6. Определить ослабление потоков β -частиц и γ -квантов, испускаемых ^{40}K , пластинками алюминия толщиной 270 и 810 мг/см² ($\rho_{\text{Al}} = 2,7$ г/см³).
Ответ: поглощается 93 и 100% потока β -частиц; 1,3 и 3,9% потока γ -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 ^{40}K в природной смеси изотопов равна 0,000118). *Ответ: 16121 Бк*
9. В природной смеси изотопов рубидия содержится 27,85% долгоживущего нуклида ^{87}Rb . Определить период его полураспада, если установлено, что скорость счета навески RbCl массой 120 мг равна 447 имп/мин (коэффициент регистрации $\phi = 0,1$).
Ответ: $4,8 \cdot 10^{10}$ 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 ^{144}Pr 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) ^{144}Pr в момент выделения.
Ответ: 2917 имп/мин
12. Для выделения дочернего радионуклида $^{113\text{m}}\text{In}$ ($T_{1/2} = 99$ 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 ^{113}Sn ($T_{1/2} = 115$ суток), предполагая, что было выделено 72% равновесного количества $^{113\text{m}}\text{In}$. *Ответ: 350 МБк*
13. Хроматографическую колонку заполнили сорбентом, на котором было адсорбировано 100 МБк материнского радионуклида ^{140}Ba . Спустя 360 ч, для выделения дочернего ^{140}La , через колонку пропустили 20 мл элюента. Определить удельную активность (кБк/мл) элюата через 24 ч после извлечения ^{140}La , 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 ($T_{1/2} = 3,4$ ч), образующегося при распаде ^{112}Pd ($T_{1/2} = 21$ ч). *Ответ: 10,66 ч*

15. Ниже приведена схема ядерных превращений ^{210}Pb .



Активность ^{210}Po , находящегося в равновесии с ^{210}Pb , равна 120 Бк. Чему равна активность ^{210}Bi и через какое время она уменьшится в 5 раз? *Ответ: 120 Бк, 48,8 года*

16. Имеется цепочка превращений $^{238}\text{U} \rightarrow ^{234}\text{Th} \rightarrow ^{234}\text{Pa} \rightarrow \dots$. Периоды полураспада ^{238}U , ^{234}Th и ^{234}Pa равны, соответственно, $4,5 \cdot 10^9$ лет, 578 ч и 1,18 мин. При $t=0$ число ядер ^{238}U $N_{\text{U},0} = 10^{19}$, а число ядер ^{234}Th $N_{\text{Th},0} = 0$. Чему будет равно число ядер N_{Th} через а) 578 ч, б) $4,5 \cdot 10^9$ лет? *Ответ: а) $7,3 \cdot 10^7$; б) $7,3 \cdot 10^7$*

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 ($T_{1/2} = 15$ 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 $10^{12} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$) для получения препарата $^{76}\text{As}_2\text{O}_3$ с удельной активностью 40 МБк/г. Единственный стабильный нуклид – ^{75}As , эффективное сечение (n, γ) реакции равно $4,3 \cdot 10^{-24} \text{ см}^2$, период полураспада ^{76}As – 27,6 ч. *Ответ: 35 мин*

20. В природной смеси изотопов сурьмы содержится 43% ^{123}Sb и 57% ^{121}Sb . При облучении навески массой 1 г нейтронным потоком (плотность $10^{12} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$) в течение суток в мишени образуется ^{124}Sb ($T_{1/2} = 60$ сут) и короткоживущий ^{122}Sb . Удельная активность мишени, измеренная сразу после окончания облучения, составила 2886 кБк/мг. Определить период полураспада ^{122}Sb , считая, что условия облучения соответствуют случаю тонкой мишени, сечение обеих (n, γ) реакций примерно одинаковы и равны $4,4 \cdot 10^{-24} \text{ см}^2$. *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 см^3 . Определите поглощенную дозу в воздухе за год, если на образование одной пары ионов затрачивается энергия 33,9 эВ. *Ответ: $\sim 278 \text{ мкГр}$*

22. Рассчитайте толщину защитного экрана из свинца, снижающего дозу, создаваемую в течение 6-часового рабочего дня на расстоянии 0,5 м от источника ^{124}Sb активностью 370 МБк, до уровня 72 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 ^{59}Fe активностью 0,5 ГБк. *Ответ: Обеспечит, мощность дозы за защитой 4,12 мкЗв/ч*

24. Определите наименьшее расстояние от источника ^{65}Zn активностью 0,37 ГБк, на котором можно находиться без защитного экрана в течение 1 ч, если величина полученной дозы не должна превышать 30 мкЗв. *Ответ: 98 см*

25. В лаборатории ежедневно в течение 2 ч проводится работа с точечным источником ^{137}Cs ($^{137\text{m}}\text{Ba}$) активностью 394 МБк на расстоянии 30 см. При этом в другое

время источники ИИ не эксплуатируются. Определите: а) дозу, которую может получить экспериментатор, 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 ^{35}S . Установлено, что скорость счета пятна 150 имп/(с·см²). Условия измерения: счетчик Гейгера-Мюллера ($d_{\text{окна}} = 5$ мм/см²), слой воздуха 5 мм, геометрический коэффициент $\eta = 0,5$. Оцените энергию частиц, поглощенную в 1 г биологической ткани в течение 1 ч.

Ответ: $7,08 \cdot 10^{-7}$ Дж/г

27. В организме человека (масса 70 кг) содержится ~ 160 г калия. Оцените эквивалентную дозу от β -излучения ^{40}K в течение года, предполагая равномерное распределение элемента в организме.

Ответ: 0,18 мЗв

28. На карман халата площадью около 120 см² попало 0,5 мл раствора, содержащего равновесную смесь $^{90}\text{Sr}(^{90}\text{Y})$, 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 допустимый уровень, если геометрический коэффициент $\eta = 0,4$.

Ответ: 3070 имп/с; в 2,3 раза

29. Реактор объемом 50 мл, в котором хранился меченный ^{14}C карбонат бария массой 296 мг, заполнили углекислым газом (24°C, 99 кПа), герметично закрыли и выдержали несколько часов при 100°C. Определить степень изотопного обмена, если установлено, что за время нагревания удельная активность $\text{Ba}^{14}\text{CO}_3$ уменьшилась в 1,25 раза.

Ответ: $F = 0,35$

30. Какой объем раствора Na^{131}I (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 ^{131}I между $\text{C}_4\text{H}_9\text{I}$ и Na^{131}I . 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 $\text{C}_4\text{H}_9\text{I}$ и а) 1 мл спиртового раствора Na^{131}I (без носителя) активностью 1 МБк/мл, б) 1 мл спиртового раствора Na^{131}I концентрации 0,01 моль/л и активностью 1 МБк/мл?

Ответ: а) 10^5 , б) $5 \cdot 10^4$

32. Проведено изучение изотопного обмена ^{131}I между изо- $\text{C}_3\text{H}_7\text{I}$ и Na^{131}I в 90% - ном этанольном растворе при концентрации каждого вещества 0,1 моль/л и при температурах 40, 60 и 80°C. Периоды полуобмена $\tau_{1/2}$ оказались равны соответственно $6,27 \cdot 10^4$, $6,88 \cdot 10^3$ и $1,67 \cdot 10^3$ 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 β -насыщенных 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 $5 \cdot 10^{-6}$ г элемента

38. При анализе методом изотопного разбавления раствора, содержащего ионы стронция, к раствору добавили 1,5 мл 0,2 моль/л раствора $^{89}\text{SrCl}_2$ с удельной активностью $2,7 \cdot 10^6$ имп/(мин·моль). Осадив часть стронция в виде сульфата, нашли, что удельная активность полученного осадка равна $9,3 \cdot 10^5$ имп/(мин·моль). Определите массу стронция в анализируемой пробе.

Ответ: 50,2 г

39. Для определения содержания сульфат-иона к раствору прибавили 100 мг BaCl_2 , осадок BaSO_4 отфильтровали и к фильтрату прибавили 100 мг радиоактивного BaCl_2 , содержащего ^{140}Ba (очищенный от дочернего ^{140}La) общей активностью 6650 имп/мин. Из полученного раствора выделили часть BaSO_4 . Измерения показали, что активность 20 мг этого осадка составляет 618 имп/мин. Определите содержание количество вещества сульфат-ионов в исходном растворе.

Ответ: $3,77 \cdot 10^{-6}$ моль

40. Для получения $\text{Sr}_3(\text{PO}_4)_2$, меченного ^{32}P , использовали 0,005 моль/л раствор SrCl_2 , содержащий ^{89}Sr . Объемная регистрируемая активность разбавленного в 50 раз раствора $^{89}\text{SrCl}_2$ составляла 17050 имп/(мин·мл). Осадок $\text{Sr}_3(\text{PO}_4)_2$ был получен добавлением небольшого избытка ортофосфата натрия к 100 мл раствора $^{89}\text{SrCl}_2$. 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) $\text{Sr}_3(\text{PO}_4)_2$ в 0,001 моль/л растворе NaClO_4 . Оцените произведение растворимости этой соли.

Ответ: $s = 3,05$ моль/л, $PP = 1 \cdot 10^{-31}$

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 $\phi = 0,25$.

Ответ: не менее 40 МБк/г

42. Капиллярным методом с использованием радионуклида ^{36}Cl определяли коэффициент самодиффузии иона Cl^- в 1 моль/л водном растворе LiCl при 15° С. Длина использованного капилляра 2,2 см, начальная активность раствора в капилляре 8000 имп/мин, опыт продолжался 30 ч, активность раствора в капилляре по окончании опыта 3190 имп/мин. Найдите значение коэффициента самодиффузии иона Cl^- .

Ответ: $1,29 \cdot 10^{-5}$ см²/с

Литература

1. Лукьянов В.Б., Бердоносков 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., Бердоносков 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. Сапожников Ю.А., Алиев Р.А., Калмыков С.Н. Радиоактивность окружающей среды. Теория и практика. М.: БИНОМ, 2006, 286 с.
4. Бекман И.Н. Радиохимия, том I, Радиоактивность и радиация, М.: Онотопринт, 2011, 397 с.
5. Zvara I., Povinac 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.
7. 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., Кудрявцев А.В. // Защита от ионизирующих излучений. М., Энергоиздат, 1995, 496 с.
10. Сапожников Ю.А, Калмыков С.Н., Алиев Р.А. Методическое руководство к курсу «Основы радиохимии и радиоэкологии». Жидкостно-сцинтилляционная спектроскопия. М.: Химфак МГУ, 2003
11. Хольнов Ю.В. и др. // Оцененные значения ядерно-физических характеристик радиоактивных нуклидов. Справочник. М.; Энергоиздат, 1982, 311 с.
12. Гусев Н.Г., Дмитриев П.П. // Квантовое излучение радиоактивных нуклидов. Справочник. М.: Атомиздат, 1977, 400 с.

ПРИЛОЖЕНИЯ

Таблица П.1

Характеристики радионуклидов [2,11]

Нуклид	Получение и сечение ядерной реакции, барн*	Период полураспада $T_{1/2}$	Тип распада	Энергия E и выход на распад p			
				частицы		γ -кванты	
				<i>E</i> , кэВ	<i>p</i> , %	<i>E</i> , кэВ	<i>p</i> , %
1*	2	3*	4	5	6	7	8
^3_1H , (Т)	$^6\text{Li}(n,\alpha)\text{T}$; 70	12,26 года	β^-	18,6	100	нет	
$^{14}_6\text{C}$	$^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$; 1,81	5700 лет	β^-	156	100	нет	
$^{22}_{11}\text{Na}$	$^{24}\text{Mg}(d,\alpha)^{22}\text{Na}$;	2,60 года	β^+ (90%) $\Xi\text{З}$ (10%)	546	90	511* 1274	180 100
$^{24}_{11}\text{Na}$	$^{23}\text{Na}(n,\gamma)^{24}\text{Na}$; 0,53	15,0 ч	β^-	1390	100	1368 2754	100 100
$^{32}_{15}\text{P}$	$^{31}\text{P}(n,\gamma)^{32}\text{P}$; 0,172 $^{32}\text{S}(n,p)^{32}\text{P}$; 0,154	14,4 сут	β^-	1710	100	нет	
$^{35}_{16}\text{S}$	$^{35}\text{Cl}(n,p)^{35}\text{S}$; 0,19	87 сут	β^-	167	100	нет	
$^{36}_{17}\text{Cl}$	$^{35}\text{Cl}(n,\gamma)^{36}\text{Cl}$; 30	$3,1 \cdot 10^5$ лет	β^- , $\Xi\text{З}$	710	98	нет	
$^{40}_{19}\text{K}$	в природной смеси изотопов 0,0118%	$1,3 \cdot 10^9$ лет	β^- (89%) $\Xi\text{З}$ (11%)	1312	89	1460	11
$^{42}_{19}\text{K}$	$^{41}\text{K}(n,\gamma)^{42}\text{K}$; 1,2	12,4 ч	β^-	1997 3521	19 81	1524	19
$^{45}_{20}\text{Ca}$	$^{44}\text{Ca}(n,\gamma)^{45}\text{Ca}$; 0,72	163 сут	β^-	257	100	нет	
$^{51}_{24}\text{Cr}$	$^{50}\text{Cr}(n,\gamma)^{51}\text{Cr}$; 16	28,7 сут	$\Xi\text{З}$	нет		320	10
$^{52}_{25}\text{Mn}$	$^{52}\text{Cr}(p,n)^{52}\text{Mn}$	5,6 сут	β^+ (28%) $\Xi\text{З}$ (72%)	574	28	511* 744 935 1434	56 87 94 100
$^{56}_{25}\text{Mn}$	$^{55}\text{Mn}(n,\gamma)^{56}\text{Mn}$; 13	2,6 ч	β^-	735	15	847	99
				1037	28	1811	27
				2848	56	2112	14
				+слабые		+другие	
$^{59}_{26}\text{Fe}$	$^{58}\text{Fe}(n,\gamma)^{59}\text{Fe}$; 0,98 $^{59}\text{Co}(n,p)^{59}\text{Fe}$; 0,006	45 сут	β^-	273	45	1099	56
				465	53	1292	43
				+слабые		+другие	
$^{58}_{27}\text{Co}$	$^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}$; 0,23	71 сут	β^+ (15%) $\Xi\text{З}$ (85%)	475	15	511* 811	30 99
				+слабые			
$^{60}_{27}\text{Co}$	$^{59}\text{Co}(n,\gamma)^{60}\text{Co}$; 37	5,27 года	β^-	318	100	1173 1333	100 100

* 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
$^{64}_{29}\text{Cu}$	$^{63}\text{Cu}(n,\gamma)^{64}\text{Cu}$; 4,3	12,7 ч	β^- (37%) β^+ (18%) $\Xi\Xi$ (45%)	578 653	37 18	511*	36
$^{65}_{30}\text{Zn}$	$^{64}\text{Zn}(n,\gamma)^{65}\text{Zn}$; 0,77	244 сут	$\Xi\Xi$ (98,5%) β^+ (1,5%)	330	1,5	511* 1116	3,0 51
$^{74}_{33}\text{As}$	$^{75}\text{As}(n,2n)^{74}\text{As}$	17,8 сут	β^- (34%) β^+ (28%) $\Xi\Xi$ (38%)	716 939 1351 1535	15 25 19 3	511* 596 634	56 59 15
$^{76}_{33}\text{As}$	$^{75}\text{As}(n,\gamma)^{76}\text{As}$; 4,3	26,3 ч	β^-	1216	8	560	45
				2404	35	657	6
				2963	51	1216	4
				+другие		+другие	
$^{82}_{35}\text{Br}$	$^{81}\text{Br}(n,\gamma)^{82}\text{Br}$; 3,1	36,3 ч	β^-	264	2	554	71
				444	98	619	43
						698	28
						776	84
						828	24
						1044	27
				+другие		+другие	
$^{86}_{37}\text{Rb}$	$^{85}\text{Rb}(n,\gamma)^{86}\text{Rb}$; 0,91	18,8 сут	β^-	698	9	1077	9
				1774	91		
$^{89}_{38}\text{Sr} + (^{90\text{m}}\text{Y})$	$\text{U}(n,f)^{89}\text{Sr}$	50,6 сут (16 с)	β^-	1492	100	нет	
$^{90}_{38}\text{Sr}$	$\text{U}(n,f)^{90}\text{Sr}$	28,7 года	β^-	546	100	нет	
$^{90}_{39}\text{Y}$		64 ч	β^-	2274	100	нет	
$^{91}_{39}\text{Y}$	$\text{U}(n,f)^{91}\text{Y}$	59 сут	β^-	1544	~100	1204	0,3
$^{95}_{40}\text{Zr} + (^{95\text{m}}\text{Nb})$	$\text{U}(n,f)^{95}\text{Zr}$; $^{94}\text{Zr}(n,\gamma)^{95}\text{Zr}$; 0,08	64 сут (90 ч)	β^-	366	55	724	44
				399	44	757	55
				+другие		+слабые	
$^{95}_{41}\text{Nb}$		35 сут	β^-	160	100	766	100
$^{106}_{44}\text{Ru} + (^{106}\text{Rh})$	$\text{U}(n,f)^{106}\text{Ru}$	367 сут (30 с)	β^-	39	100	513	20
				2407	10	622	10
				3029	8		
				3541	79		
				+другие		+слабые	
$^{110\text{m}}_{47}\text{Ag}$ ($^{110}_{47}\text{Ag}$)	$^{109}\text{Ag}(n,\gamma)^{110\text{m}}\text{Ag}$; 3	250 сут (25 с)	β^-	84	67	657	94
				531	32	763	23
				2235	5	884	73
				2893	95	937	34
						1384	26
				+другие		+другие	
						1500	15
				+другие		+другие	

1*	2	3*	4	5	6	7	8
$^{111}_{47}\text{Ag}$	$^{110}\text{Pd}(d,n)^{111}\text{Ag}$	7,5 сут	β^-	686 783 1082	7 1 92	245 342	1 7
$^{124}_{51}\text{Sb}$	$^{123}\text{Sb}(n,\gamma)^{124}\text{Sb}$; 4,4	60 сут	β^-	211 611 1579 2302	8 53 5 21	606 645 722 1691	98 7 11 49
$^{131}_{53}\text{I}$	$^{130}\text{Te}(n,\gamma)^{131}\text{Te}$; 0,2 $^{131}\text{Te} \rightarrow \beta^- \rightarrow ^{131}\text{I}$ $\text{U}(n,f)^{131}\text{I}$	8,05 сут	β^-	248 334 606	2 7 90	284 364 637	6 81 7
$^{134}_{55}\text{Cs}$	$^{133}\text{Cs}(n,\gamma)^{134}\text{Cs}$; 30	2,06 года	β^-	89 415 658	27 3 70	567 604 797	23 97 93
$^{137}_{55}\text{Cs} +$ $^{137m}_{56}\text{Ba}$	$\text{U}(n,f)^{137}\text{Cs}$	30 лет (2,6 мин)	β^-	512 1173	95 5	662	85
$^{133}_{56}\text{Ba}$	$^{133}\text{Cs}(d,2n)^{133}\text{Ba}$	10,7 года	$\Xi\Xi$	нет		81 303 356	34 19 63
$^{140}_{56}\text{Ba}$	$\text{U}(n,f)^{140}\text{Ba}$	12,8 сут	β^-	454 567 872 991 1005	25 10 4 36 25	30 162 305 424 537	13 6 4 3 24
$^{140}_{57}\text{La}$	$^{140}\text{Ba} \rightarrow \beta^- \rightarrow ^{140}\text{La}$ $^{139}\text{Ln}(n,\gamma)^{140}\text{La}$; 8,2	40 ч	β^-	1260 1344 1412 1677 2164	23 44 5 20 7	328 487 751 815 867 925 1596	20 44 4 23 6 7 95
$^{141}_{58}\text{Ce}$	$^{140}\text{Ce}(n,\gamma)^{141}\text{Ce}$; 0,6	32,5 сут	β^-	436 581	69 31	145	48
$^{144}_{58}\text{Ce}$	$\text{U}(n,f)^{144}\text{Ce}$	284 сут	β^-	185 238 318	20 5 75	134	11
$^{144}_{59}\text{Pr}$	$^{144}\text{Ce} \rightarrow \beta^- \rightarrow ^{144}\text{Pr}$	17 мин	β^-	810 2300 2996	1 1 98	696 2185	1,3 0,8
$^{155}_{63}\text{Eu}$	$^{154}\text{Sm}(n,\gamma)^{155}\text{Sm}$; 5,5 $^{155}\text{Sm} \rightarrow \beta^- \rightarrow ^{155}\text{Eu}$	4,7 года	β^-	141 160 246	48 27 13	87 105	36 24
				+другие		+другие	

1*	2	3*	4	5	6	7	8
$^{170}_{69}\text{Tm}$	$^{169}\text{Tm}(n,\gamma)^{170}\text{Tm}$; 130	129 сут	β^-	884 968	24 76	84	3
$^{185}_{74}\text{W}$	$^{184}\text{W}(n,\gamma)^{185}\text{W}$; 2,1	75 сут	β^-	432	~100	слабые	
$^{192}_{77}\text{Ir}$	$^{191}\text{Ir}(n,\gamma)^{192}\text{Ir}$; 1120	74 сут	β^- (96%) ЭЗ (4%)	256 536 672	6 41 49	296 308 317 468	29 29 82 48
$^{203}_{80}\text{Hg}$	$^{202}\text{Hg}(n,\gamma)^{203}\text{Hg}$; 5	46,7 сут	β^-	212	100	279	82
$^{204}_{81}\text{Tl}$	$^{203}\text{Tl}(n,\gamma)^{204}\text{Tl}$; 8	3,78 года	β^- (98%) ЭЗ (2%)	763	98	нет	
$^{210}_{83}\text{Bi}$	В ряду ^{238}U $^{210}\text{Pb} \rightarrow \beta^- \rightarrow ^{210}\text{Bi}$	5,0 сут	β^-	1161	100	нет	
$^{210}_{84}\text{Po}$	$^{210}\text{Bi} \rightarrow \beta^- \rightarrow ^{210}\text{Po}$	138 сут	α	5304	100	слабые	
$^{222}_{86}\text{Rn}$	$^{226}\text{Ra} \rightarrow \alpha \rightarrow ^{222}\text{Rn}$	3,82 сут	α	5490	100	слабые	
$^{231}_{90}\text{Th}$	$^{235}\text{U} \rightarrow \alpha \rightarrow ^{231}\text{Th}$	25,6 ч	β^-	140 206 288	2 12 85	25 84 90	14 8 1
$^{232}_{90}\text{Th}$	в природной смеси изотопов 100%	$1,40 \cdot 10^{10}$ лет	α	3954 4013	23 77	слабые	
$^{234}_{90}\text{Th}$	$^{238}\text{U} \rightarrow \alpha \rightarrow ^{234}\text{Th}$	24,1 сут	β^-	22 60 104 199	1 5 21 73	63 93	4 5
$^{234m}_{91}\text{Pa}$	$^{234}\text{Th} \rightarrow \beta^- \rightarrow ^{234m}\text{Pa}$	1,2 мин	β^-	2281	98	слабые	
$^{234}_{91}\text{Pa}$	$^{234m}\text{Pa} \rightarrow \text{И.П.} \rightarrow ^{234}\text{Pa}$	6,7 ч	β^-	424 484 514 654 711 1183	5 50 7 17 5 6	101 131 226 569 882 926 946	57 20 11 13 26 21 20
$^{235}_{92}\text{U}$	в природной смеси изотопов 0,72%	$7,04 \cdot 10^8$ лет	α	4367 4397	17 54	144 186	11 57
$^{238}_{92}\text{U}$	в природной смеси изотопов 99,28%	$4,47 \cdot 10^9$ лет	α	4150 4197	23 77	слабые	

Таблица П. 2

Величины t_γ для различных значений доверительной вероятности γ и числа степеней свободы f

f	Доверительная вероятность γ			f	Доверительная вероятность γ		
	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	∞	1,64	1,96	2,58

Таблица П.3

Значения χ^2 для 5%-ного уровня значимости

Число степеней свободы, f	$\chi^2_{0,05}$	Число степеней свободы, f	$\chi^2_{0,05}$	Число степеней свободы, f	$\chi^2_{0,05}$
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} , слой половинного ослабления $d_{1/2}$ и коэффициенты ослабления μ β -излучения с максимальной энергией $E_{\beta,max}$ в алюминии [2]

$E_{\beta,max}$, МэВ	R_{max} , мг/см ²	$d_{1/2}$, мг/см ²	μ , см ² /Г	$E_{\beta,max}$, МэВ	R_{max} , мг/см ²	$d_{1/2}$, мг/см ²	μ , см ² /Г
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

Линейные коэффициенты ослабления μ' узкого пучка фотонов
для алюминия и свинца в зависимости от энергии E_γ [9]

E_γ , МэВ	μ' , см ⁻¹		E_γ , МэВ	μ' , см ⁻¹		E_γ , МэВ	μ' , см ⁻¹	
	Al	Pb		Al	Pb		Al	Pb
0,02	8,61	939	0,15	0,35	21,8	1,0	0,16	0,771
0,03	2,70	323	0,20	0,32	10,7	1,25	0,15	0,658
0,04	1,30	151	0,30	0,28	4,25	1,5	0,13	0,567
0,05	0,86	82,1	0,40	0,25	2,44	2,0	0,12	0,508
0,06	0,65	50,8	0,50	0,22	1,70	3,0	0,09	0,468
0,08	0,48	23,6	0,60	0,20	1,33	4,0	0,08	0,472
0,10	0,42	60,3	0,662	0,20	1,18	5,0	0,08	0,481
0,145	0,36	24,6	0,80	0,18	0,95	6,0	0,07	0,494

Таблица П. 6

Коэффициенты истинного поглощения μ_e (см²/г) рентгеновского и γ -излучения
в воздухе в зависимости от энергии E_γ (МэВ) [9]

E_γ	μ_e	E_γ	μ_e	E_γ	μ_e	E_γ	μ_e	E_γ	μ_e
0,01	4,570	0,05	0,0374	0,15	0,0247	0,50	0,0298	1,3	0,0261
0,015	1,250	0,06	0,0283	0,20	0,0265	0,60	0,0295	1,5	0,0254
0,02	0,501	0,08	0,0231	0,25	0,0281	0,70	0,0292	2,0	0,0234
0,03	0,139	0,10	0,0227	0,30	0,0287	0,80	0,0287	3,0	0,0205
0,04	0,0616	0,125	0,0241	0,40	0,0294	1,00	0,0278	4,0	0,0193

Таблица П. 7

Керма-постоянные Γ_δ (аГр·м²/с·Бк) и гамма-постоянные Γ_γ (Р·см²/ч·мКи)
некоторых радионуклидов [9]

Нуклид	Γ_δ	Γ_γ	Нуклид	Γ_δ	Γ_γ	Нуклид	Γ_δ	Γ_γ
²² Na	77	11,8	⁷⁶ As	16,7	2,55	¹³⁷ Cs+ ^{137m} Ba	21	3,2
²⁴ Na	111,9	18,1	⁸² Br	87,1	13,3	¹³³ Ba	19	2,9
⁴⁰ K	4,8	0,74	⁸⁶ Rb	3,3	0,5	¹⁴⁰ Ba	7,5	1,13
⁴² K	9,2	1,4	⁸⁹ Sr + ^{89m} Y	3·10 ⁻³	5·10 ⁻⁴	¹⁴⁰ La	76	11,6
⁵¹ Cr	1,7	0,26	⁹¹ Y	0,13	0,02	¹³⁹ Ce	11,8	1,8
⁵² Mn	118	18,0	⁹⁵ Zr + ^{95m} Nb	27,1	4,14	¹⁴¹ Ce	2,8	0,43
⁵⁴ Mn	30	4,6	⁹⁵ Nb	28	4,3	¹⁴⁴ Ce+ ¹⁴⁴ Pr	1,78	0,27
⁵⁶ Mn	56	8,5	¹⁰⁶ Ru+ ¹⁰⁶ Rh	7,6	1,16	¹⁴⁴ Pr	0,92	0,14
⁵⁹ Fe	41	6,2	^{110m} Ag+ ¹¹⁰ Ag	101	15,4	¹⁵⁵ Eu	2,6	0,39
⁵⁷ Co	3,7	0,56	¹¹¹ Ag	0,98	0,15	¹⁷⁰ Tm	0,20	0,03
⁵⁸ Co	35	5,4	^{113m} In	11,7	1,8	¹⁸⁵ W	2·10 ⁻³	3·10 ⁻⁴
⁶⁰ Co	84	12,8	¹¹³ Sn+ ^{113m} In	18,3	2,8	¹⁹² Ir	31	4,7
⁶⁴ Cu	7,4	1,13	¹²⁴ Sb	63	9,6	²⁰³ Hg	8,5	1,3
⁶⁵ Zn	20	3,1	¹³¹ I	14,1	2,16	²²⁶ Ra*	55	8,4
⁷⁴ As	28	4,3	¹³⁴ Cs	57	8,7	²⁴¹ Am	0,92	0,14

* - в равновесии с продуктами распада.

Таблица П.8

Нормализованные парциальные керма-постоянные $\Gamma_{e,i}^*$ ($\text{аГр}\cdot\text{м}^2/\text{с}\cdot\text{Бк}$)
и гамма-постоянные $\Gamma_{\gamma,i}^*$ ($\text{Р}\cdot\text{см}^2/\text{ч}\cdot\text{мКи}$) фотонов с энергией E_{γ} (МэВ) [12]

E_{γ}	$\Gamma_{e,i}^*$	$\Gamma_{\gamma,i}^*$	E_{γ}	$\Gamma_{e,i}^*$	$\Gamma_{\gamma,i}^*$	E_{γ}	$\Gamma_{e,i}^*$	$\Gamma_{\gamma,i}^*$	E_{γ}	$\Gamma_{e,i}^*$	$\Gamma_{\gamma,i}^*$
0,03	5,74	0,876	0,08	2,44	0,373	0,4	15,0	2,292	0,9	32,6	4,98
0,04	3,42	0,522	0,10	2,96	0,452	0,5	18,9	2,89	1,0	35,6	5,44
0,05	2,58	0,394	0,15	4,76	0,727	0,6	22,6	3,45	1,5	48,6	7,42
0,06	2,30	0,351	0,20	6,81	1,040	0,7	26,2	4,00	2,0	59,7	9,11
0,07	2,32	0,354	0,30	11,0	1,679	0,8	29,4	4,89	3,0	78,8	12,0

Таблица П. 9

Дозовые факторы накопления для свинца
(точечный изотропный источник в бесконечной среде) [9]

E_{γ} , МэВ	μd											
	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	1,14	1,22	1,38	1,50	1,61	1,71	1,80	1,89	1,96	2,10	2,42	2,69
0,6	1,14	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

Таблица П.10

Дозовые факторы накопления для алюминия (бетона*)
(точечный изотропный источник в бесконечной среде) [8]

E_{γ} , МэВ	μd						
	1	2	4	7	10	15	20
0,1	2,9	5,8	13	25	57	130	290
0,2	2,9	5,5	12	27	73	230	500
0,4	2,5	4,5	9,9	22	48	120	220
0,5	2,37	4,24	9,47	21,5	38,9	80,8	141
1,0	2,02	3,31	6,57	13,1	21,2	37,9	58,5
2,0	1,75	2,62	4,62	8,05	11,9	18,7	26,3
3,0	1,64	2,32	3,78	6,14	8,65	13,0	17,7
4,0	1,53	2,08	3,22	5,01	6,88	10,1	13,4

* - можно использовать для оценки значения фактора накопления в бетоне

Таблица П.11

Толщина защиты из свинца (см) в зависимости от кратности ослабления k и энергии γ -излучения (широкий пучок)

k	Энергия γ -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

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 $^{90}\text{Sr}(^{90}\text{Y})$	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
РАБОТА 4. Дозиметрия ионизирующего излучения	34
4.1. Радиационная безопасность и основные понятия дозиметрии	34
4.2. Измерение мощности дозы гамма-излучения и расчет защиты	41
РАБОТА 5. Определение загрязненности радиоактивными веществами рабочих поверхностей	42
РАБОТА 6. Изотопные генераторы	46
6.1. Генератор индия-113m	46
6.2. Генератор нептуния-239	49
6.3. Генератор $^{90}\text{Sr} \rightarrow ^{90}\text{Y}$	51
6.4. Генератор $^{44}\text{Ti} \rightarrow ^{44}\text{Sc}$	52
РАБОТА 7. Радиохроматография. Определение радиоактивности аминокислот в их смеси	54
РАБОТА 8. Определение эффективности регистрации трития и углерода-14 по спектрам, полученным с помощью жидкостно-сцинтилляционного спектрометра	60
РАБОТА 9. Определение коэффициента диффузии (самодиффузии) ионов в растворе на примере определения коэффициента самодиффузии иодид-ионов	63
РАБОТА 10. Определение степени окисления и локального окружения атомов железа (олова) в неорганических соединениях методом ядерной гамма-резонансной спектроскопии	67
10.1. Основные параметры мессбауэровских спектров	67
10.2. Получение мессбауэровских спектров соединений железа и олова	74
РАБОТА 11. Определение содержания калия в солях и природных объектах по его радиоактивности	77
РАБОТА 12. Изучение адсорбции на поверхности твердых тел методом радиоактивных индикаторов	80
РАСЧЕТНЫЕ ЗАДАЧИ	84
Литература	88
Приложения	89